

VIEILLISSEMENT DES ACIERS SOUS IRRADIATION - RISQUE DE RUPTURE DES CUVES DES REACTEURS NUCLEAIRES

Thierry de LAROCHELAMBERT^{1*}

¹Professeur Associé à l'Institut FEMTO-ST, Département Energie,
2 avenue Jean Moulin – 90000 Belfort.

* (auteur correspondant : thierry.larochelambert@femto-st.fr)

Résumé – Cette étude a pour but de faire le point sur les travaux de recherche mondiaux les plus récents et les plus approfondis sur le vieillissement thermique des aciers sous irradiation, effectués sur la base des méthodes de mesure les plus performantes (comme la tomographie à sonde atomique et les microscopies à balayage électronique) et des simulations numériques les plus précises de l'échelle nanométrique à l'échelle de la cuve. Ces travaux révèlent et confirment un vieillissement accéléré de ces aciers fortement irradiés par le bombardement neutronique au-delà d'une fluence de 6.10^{19} neutrons/cm², qui se traduit par des modifications des structures atomiques et cristallines des aciers, accélérant leur fragilité (augmentation de la dureté, forte baisse de la résilience - c'est à dire de la résistance aux chocs - et augmentation accélérée de la température de transition ductile-fragile). Ils concernent plus particulièrement les aciers de type 16MND5 utilisés dans les réacteurs nucléaires construits en France.

Le résultat majeur et nouveau de ces travaux est le suivant: les anciens modèles de vieillissement sous-estiment systématiquement et significativement l'augmentation de la température de transition ductile-fragile aux fluences élevées supérieures à 6.10^{19} neutron/cm² (celle déjà atteinte probablement par les cuves nucléaires de 900 MW de Fessenheim et de Tricastin) car ils ne tiennent pas suffisamment compte de la contribution de l'épanouissement lent mais massif des précipités d'impuretés MnNiSiP ("*late blooming precipitates*") qui suit la précipitation rapide du cuivre au sein de la matrice des aciers bainitiques des cuves induite par les déplacements des atomes dus au bombardement de neutrons aux fluences élevées, créant des ségrégations fragilisantes aux joints des grains internes de ces aciers, qui conduisent à des mécanismes de rupture intergranulaire accrue au sein de ces aciers, particulièrement lors des chocs froids sous contrainte.

D'importantes observations confirment ce phénomène dont la principale conséquence réside dans le fait que cette élévation de la température de transition ductile-fragile ΔRT_{NDT} augmente *linéairement* avec la fluence neutronique aux hautes irradiations supérieures à 6.10^{19} neutrons/cm² et *non avec sa racine carrée* comme le prévoient les habituelles formules de prédiction de vieillissement basées sur les mesures d'éprouvettes Charpy.

Cela signifie que le vieillissement thermique des aciers sous irradiation des cuves, des couvercles, des boulons, des buses et des internes des réacteurs nucléaires accélère rapidement au-delà de 40 ans pour tous les réacteurs de 900 MW, ce qui risque de compromettre très fortement leur résistance à un éventuel choc froid sous pression car leur acier devient brusquement cassant si on les refroidit brutalement sous 60 à 80°C (voire 120°C pour les défauts de forte ségrégation d'impuretés Cu-Mn-P dénommées "veines sombres"). En conséquence, la prolongation au-delà de 40 ans des réacteurs 900 MW présente de sérieux problèmes de sécurité, avec un risque d'une rupture brutale de cuve par choc froid sous pression, qui conduirait à la perte du contrôle du réacteur et à l'accident majeur de type Fukushima.

Le démantèlement de la plus vieille centrale nucléaire REP construite en France à Fessenheim pourrait être l'occasion d'un grand projet européen de recherche expérimental sur le vieillissement thermique réel sous irradiation des aciers des réacteurs nucléaires, afin de vérifier les résultats des recherches mondiales et de tester les hypothèses de prolongation de durée de service des réacteurs nucléaires au-delà de 40 ans.

Mots-clés : vieillissement thermique ; irradiation ; ténacité ; rupture par choc froid sous pression ; démantèlement ; prolongation de durée de service.

Abstract – The aim of this study is to take stock of the most recent and in-depth global research on the thermal ageing of steels under irradiation, based on the most advanced measurement methods (such as atomic probe tomography and scanning electron microscopies) and the most accurate numerical simulations from nanoscale up to the vessel scale. This work reveals and confirms an accelerated ageing of these steels when highly irradiated by neutron bombardment beyond a fluence of 6×10^{19} neutrons/cm², resulting in changes in the atomic and crystalline structures which accelerate their brittleness (increase in hardness, sharp drop in fracture toughness - i.e. shock resistance - and increase in the ductile-fragile transition temperature). They concern more particularly the 16MND5-type (A508-3-type equivalent) steels used in the nuclear reactors that have been built in France.

The major and new result of this work is the following: the former ageing models systematically and significantly underestimate the increase of the ductile-fragile transition temperature at high fluences higher than 6×10^{19} neutron/cm² (the one already probably reached by the 900 MW nuclear vessels of Fessenheim and Tricastin) because they do not take sufficiently into account the contribution of the slow but massive “late blooming MnNiSiP precipitates” which follows the rapid Cu precipitation in the bainitic matrix of the vessel steel induced by the atomic displacements due to the bombardment of neutrons at high fluences, creating brittle segregations at the joints of the internal grains of these steels, which lead to increased intergranular fracture mechanisms, particularly during cold stress shock.

Important observations confirm this phenomenon, the main consequence of which lies in the fact that this increase in the ductile-fragile transition temperature ΔRT_{NDT} increases *linearly* with the neutron fluence at high irradiations above 6×10^{19} neutrons/cm² instead of the square root power law used in ageing prediction formulas based on Charpy V-notch impact tests.

This means that the thermal ageing of steels under irradiation of nuclear vessels, covers, bolts, nozzles and internals accelerates rapidly beyond 40 years for all 900 MW reactors, which could deeply compromise their resistance to a possible pressurized thermal shock, their steel becoming suddenly brittle if abruptly cooled down below 60 to 80°C (even 120°C for defects of strong Cu-Mn-P impurities segregation called “dark veins”). Consequently, the lifetime extension beyond 40 years of the 900 MW reactors presents serious safety problems, with a risk of a sudden vessel fracture under pressurized thermal shock, which would lead to loss of reactor control and major Fukushima-like accident.

The dismantling of the oldest PWR nuclear power plant built in France in Fessenheim could be the opportunity for a major European experimental research project on the real thermal ageing under irradiation of nuclear reactor steels, in order to verify the results of worldwide research and to test the hypotheses of extending the operation lifetime of nuclear reactors beyond 40 years.

Keywords: thermal ageing; irradiation; fracture toughness; fracture under pressurized thermal shock; decommissioning; lifetime extension.

Table des matières

INTRODUCTION.....	4
1. LE VIEILLISSEMENT DES MATERIAUX NUCLEAIRES.....	5
1.1 COMPOSANTS ET MATERIAUX DES REACTEURS NUCLEAIRES.....	6
1.2 LE VIEILLISSEMENT THERMIQUE	7
1.3 LES CUVES NUCLEAIRES.....	14
2. LE VIEILLISSEMENT DES ACIERS SOUS IRRADIATION.....	16
2.1 PRINCIPAUX FACTEURS D'IRRADIATION.....	16
2.2 MECANISMES DE VIEILLISSEMENT SOUS IRRADIATION	20
2.3 TRANSITION DUCTILE-FRAGILE.....	28
2.4 PREMIERES CONCLUSIONS.....	32
3. LES RISQUES DE RUPTURE BRUTALE PAR CHOC FROID SOUS PRESSION	33
3.1 RUPTURE BRUTALE DES CUVES NUCLEAIRES 900 MW.....	34
3.2 RUPTURE BRUTALE DES GENERATEURS DE VAPEUR	37
3.3 LE CAS DU GENERATEUR DE VAPEUR 335 DE FESSENHEIM 2.....	38
4. PROJET DE DEMANTELEMENT SCIENTIFIQUE DU REACTEUR	
FESSENHEIM 1.....	42
4.1 PRINCIPAUX OBJECTIFS.....	42
4.2 MOYENS ET PROCEDURES	43
CONCLUSION.....	43

Avertissement

Cet article fait partie du travail de recherche présenté lors du colloque

« **SÛRETÉ ET SÉCURITÉ DES INSTALLATIONS NUCLÉAIRES CIVILES** »

2^{èmes} Entretiens du Grillenbreit – 22 novembre 2019 - Colmar

organisé par le CERDACC (Centre Européen de recherche sur le Risque, le Droit des Accidents Collectifs et des Catastrophes) et l'UHA (Université de Haute-Alsace).

INTRODUCTION

Les questions stratégiques soulevées par la place de l'énergie nucléaire dans le mix électrique français lors des consultations et débats publics¹ en France sur la Programmation Publique de l'Énergie (PPE) pour les années 2019-2023 et 2024-2028 ont peu abordé les aspects techniques liées à la sûreté des réacteurs nucléaires eux-mêmes et leurs conséquences sur la faisabilité des scénarios d'évolution du mix électrique proposés².

En particulier, les problèmes soulevés par le suivi de charge limité des réacteurs nucléaires âgés fonctionnant hors base pour réguler la variabilité croissante de puissance côté demande (utilisateurs) et côté production (électricité éolienne et photovoltaïque variables) ont fait l'objet de très peu de contributions et d'investigations dans ce cadre³.

Le contexte énergétique actuel nécessite pourtant de pouvoir opérer des choix structurels en toute conscience des enjeux (« *choice awareness* »⁴) auxquels ils doivent impérativement pouvoir apporter des réponses fiables, efficaces et soutenables à l'horizon 2050, voire à l'échelle du siècle.

À cet égard, le développement de l'utilisation de l'énergie nucléaire pour la production d'électricité a été marqué, depuis son origine et en particulier en France par :

- *des accidents nucléaires marquants avec fusion des cœurs nucléaires* (St Laurent-des-eaux 1969, 1980 ; Three Mile Island 1979 ; Tchernobyl 1986 ; Fukushima 2011 ; ...?)⁵ qui ont entraîné les sorties programmées de l'énergie nucléaire de certains pays (Allemagne, Belgique, Corée du Sud, Italie, Suisse, etc.)⁶ ;
- *de nombreuses incertitudes dans l'industrie nucléaire* (coûts d'investissements et de production croissants sans effet de retour d'expérience ni de série⁷ ; coûts élevés de grand carénage post-Fukushima⁸ ; fiasco industriel de l'EPR (European Pressure Reactor) ; vieillissement des réacteurs à eau pressurisée (REP) ; affaire des dossiers barrés de Areva – Creusot-Loire ; problèmes de ségrégations carbone anormales dans quarante-six GV et dans plusieurs cuves et couvercles EPR ; non-conformités des traitements thermiques de détensionnement dans de nombreux générateurs de vapeur (GV) et dans un pressuriseur⁹ ; problèmes de stockage permanent des déchets nucléaires HA-MA-VL (projet Cigéo d'enfouissement dans l'argilite *versus* stockage en subsurface^{10,11} ; retraitement *versus* non retraitement des barres de

¹ <https://cpdp.debatpublic.fr/cpdp-ppe/index.html>

² <https://www.ecologique-solidaire.gouv.fr/programmations-pluriannuelles-lenergie-ppe>

³ <https://cpdp.debatpublic.fr/cpdp-ppe/systeme-energetique-efficace-france.html>

⁴ H. Lund, *Choice awareness : the development of technological and institutional choice in the public debate of danish energy planning*, Journal of Environmental Policy & Planning 2 (2000) 249-259.

⁵ D. Jacquemain, *Les accidents de fusion du cœur des réacteurs nucléaires de puissance - Etat des connaissances*, IRSN, EDP Sciences, Fontenay-aux-Roses, 2013.

⁶ http://global-chance.org/IMG/pdf/bl_dte_risque_d_accident_nucle_aire_260313.pdf.

⁷ Cour des Comptes, Communication à la Commission d'Enquête de l'Assemblée Nationale, *Le coût de production de l'électricité nucléaire* -Actualisation 2014.

⁸ Cour des Comptes, *Rapport public annuel 2016 – Maintenance des centrales nucléaires*, février 2016.

⁹ IRSN, *Éléments d'information sur un écart de fabrication déclaré par EDF concernant des équipements de réacteurs nucléaires*, 12 septembre 2019.

¹⁰ <https://www.cigeo.gouv.fr/sites/default/files/2018-09/Avis-de-Thierry-de-Larochelambert-concernant-la-nature-du-projet-Cahier-d%E2%80%99acteurs-pour-le-debat%20public-sur-le-projet-Cigeo.pdf>.

¹¹ <https://www.cigeo.gouv.fr/sites/default/files/2018-09/Avis-de-Thierry-de-Larochelambert-concernant-les-risques-du-projet-Cahier-d-acteurs-pour-le-debat-public-sur-le-projet-Cigeo.pdf>.

combustibles^{12,13,14}) ; méthode et évaluation des coûts de démantèlement des réacteurs nucléaires annoncés par EDF très en dessous des coûts effectifs de démantèlement en cours ou déjà effectués dans d'autres pays^{15,16} ; saturation des installations de stockage des déchets nucléaires TFA-FA-VL¹⁷ ; risques d'attentats terroristes aux conséquences très lourdes ; risques d'accidents majeurs croissants liés au vieillissement des réacteurs, aux chaînes d'erreurs humaines, aux séismes, aux inondations¹⁸ ; fragilité des centrales nucléaires aux événements climatiques de sécheresse et d'inondation de plus en plus fréquents ; risques liés à l'éventuelle prolongation de service des REP au-delà de 40 ans ; etc.).

L'objectif de cet article est de faire le point sur la question particulière et fondamentale sur le plan de la sûreté nucléaire du vieillissement des matériaux et des composants essentiels des réacteurs nucléaires, à la lumière des recherches mondiales les plus récentes et les plus avancées dans ce domaine, afin de cerner les contraintes et d'éclairer les choix qui se présentent actuellement pour la politique nucléaire française et européenne, entre prolongement de service de certains réacteurs nucléaires de 40 à 60 ans, fermeture programmée des réacteurs 900 MW au-delà du seuil de fluence neutronique de 6.10^{19} neutrons/cm², investissement dans de nouveaux réacteurs nucléaire EPR.

1. LE VIEILLISSEMENT DES MATERIAUX NUCLEAIRES

Diverses formes de vieillissement touchent les composants d'un réacteur nucléaire :

- le *vieillissement thermique* : il concerne principalement le circuit primaire (conduits, pressuriseur), les GV (viroles, joints soudés), le couvercle de cuve ;
- les divers types de *corrosion* : corrosion sous contrainte (tubes GV, anneaux de guidage des grappes, couvercle) ; corrosion sous irradiation (gainés combustibles) ; corrosion sous contrainte et irradiation (boulons des internes de cuve) ; la corrosion chimique (tubes de GV, condenseur, boulons, beurrage inox) ; bien connus, ils ne sont pas approfondis ici¹⁹ ;
- la *fragilisation sous irradiation* : elle atteint principalement la cuve et les internes de cuve.

Après une rapide revue des mécanismes et des conséquences du vieillissement thermique, généralement bien connus et intégrés dans la sûreté des installations nucléaires, les avancées dans la compréhension, la mesure et la simulation des mécanismes de fragilisation des aciers sous irradiation sont étudiées en détails pour obtenir un état de l'art suffisamment complet dans ce domaine qui permette d'en dégager les conséquences en matière de sûreté nucléaire et d'orientation possible de la politique nucléaire française.

¹² *Panorama international des recherches sur les alternatives au stockage géologique des déchets de haute et moyenne activité à vie longue*, Rapport IRSN/2019-00318, mai 2019.

¹³ *Analyse des possibilités d'entreposage à sec de combustibles nucléaires usés de type MOX ou URE*, Rapport IRSN n°2019-00265, avril 2019.

¹⁴ *Entreposage du combustible nucléaire usé : concepts et enjeux de sûreté*, Rapport IRSN n°2018-00003, juin 2018.

¹⁵ Commission du développement durable et de l'aménagement du territoire de l'Assemblée Nationale, *Rapport de la Mission d'Information relative à la faisabilité technique et financière du démantèlement des installations nucléaires de base*, 1^{er} février 2017.

¹⁶ OECD, NEA No. 7201, *Costs of Decommissioning Nuclear Power Plants*, 2016.

¹⁷ IRSN, *Déchets radioactifs de très faible activité : la doctrine doit-elle évoluer ? Réflexions de l'IRSN pour une gestion pérenne, équitable et responsable*, Rapport IRSN/DG/2016-00002.

¹⁸ S. Wheatley, B.K. Sovacool, D. Sornette, *Reassessing the safety of nuclear power*, Energy Research & Social Science 15 (2016) 96-100.

¹⁹ CEA, *La corrosion dans les réacteurs à eau : phénoménologie, mécanismes, remèdes* (2008).

1.1 Composants et matériaux des réacteurs nucléaires

Le nombre et la variété des matériaux utilisés dans un réacteur nucléaire de type REP concernés par le vieillissement sont très élevés, particulièrement dans le circuit primaire (Fig. 1) :

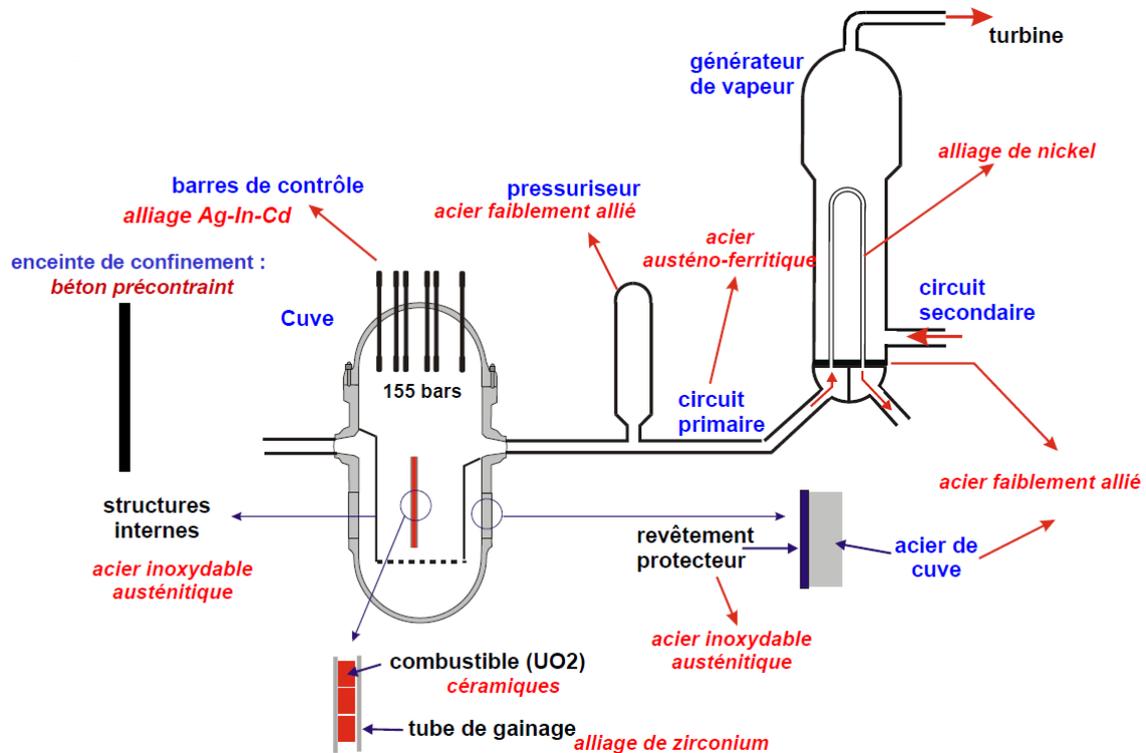


Fig. 1. Composants et matériaux d'un réacteur REP (source : EDF).

- *aciers ferritiques faiblement alliés* (teneurs de chaque élément chimique d'alliage < 5%) :
 - cuves et couvercles nucléaires (norme : F 16MND5, EU 16MnNiMo-5, US A508-CL3) ;
 - générateurs de vapeur (norme F 18MND5) ;
- *aciers inox austénitiques* :
 - revêtement interne de cuve (beurrage inox 24-12 et 18-12 304L-316L) ;
 - tubes de GV (inconel A600 puis A690) ;
 - internes de cuve (inconel 316L, 304 18-10) ;
- *aciers austéno-ferritiques* (coudes moulés Z8CND20-10M à 5-25 % de ferrite) ;
- *aciers martensitiques* (tiges de robinets, goujons en Z12C13, 17-4 PH) ;
- *alliages de zirconium* (gainés combustibles en Zircaloy-4) ;
- *divers* (broches de tubes-guides de grappes en acier inconel X750, barres de contrôle, etc.).

1.2 Le vieillissement thermique

Le vieillissement thermique des matériaux est un phénomène qui touche tous les matériaux d'un réacteur et s'accroît avec le temps de service, essentiellement du fait des *sollicitations thermiques* (fortes variations de température, gradients thermiques élevés) induisant des répétitions de séquences dilatation-contraction pouvant générer des cycles de contraintes mécaniques ; elles peuvent être accélérées par les *contraintes de pression* (composants sous pression) et par les *sollicitations mécaniques* (charges périodiques ou chargements brusques dans les situations d'incidents ou d'accidents) induisant des phénomènes de déformation (fluages), de fatigue et d'usure mécaniques pouvant conduire à différents types de rupture mécanique.

• Mécanismes

Le comportement en service des matériaux est conditionné par sa courbe de *traction rationnelle* $\sigma = F/S$ – *déformation rationnelle* $\varepsilon = \ln(L/L_0)$ qui permet de délimiter le « *domaine athermique* » (pratiquement indépendant de la température, donnant lieu au phénomène de *rupture ductile*) et le « *domaine thermiquement activé* » (fortement dépendant de la température, correspondant au mode de *rupture fragile*). Dans ce dernier mode, la limite d'élasticité augmente (la déformation diminue) avec l'abaissement de température (Fig. 2).

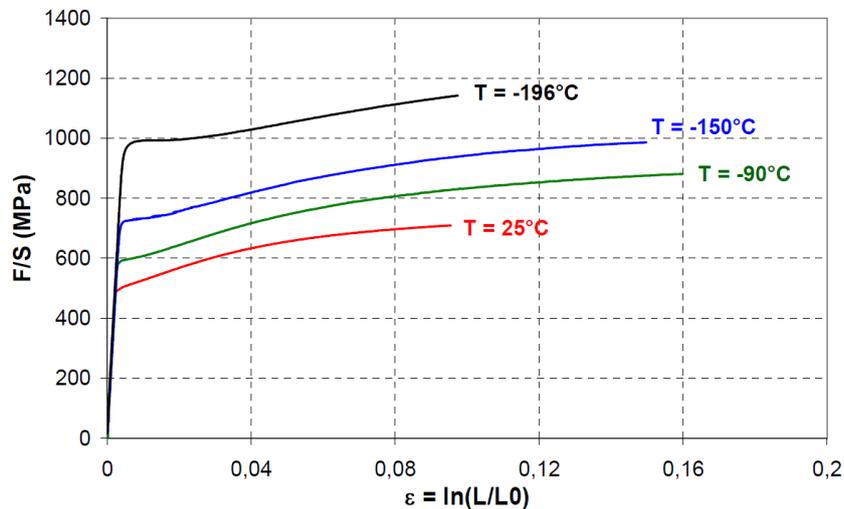


Fig. 2. Courbe $\sigma(\varepsilon)$ de la bainite dans l'acier 16MND5 (Libert 2005)²⁰.

La durée de service d'un matériau est liée aux *déformations à chaud sous contrainte* (fluage) dans le temps (Fig. 3), pouvant générer des endommagements par *diffusion de dislocations ponctuelles* et de *défauts microcristallins* (déplacements atomiques et lacunaires) *intergranulaires* (les défauts se concentrent aux joints des grains microscopiques du matériau) et *intra-granulaires* (les défauts se disséminent à l'intérieur des grains), et aller jusqu'à la *rupture* par coalescence des dislocations en microcavités puis en microfissures puis par propagation des microfissures.

²⁰ M. Libert, *Influence des mécanismes de plasticité sur la transition ductile fragile des aciers faiblement alliés. Etude de l'irradiation sur le comportement*, Thèse de l'Ecole Centrale, 2002
Sûreté, démantèlement, prolongation de fonctionnement des réacteurs nucléaires et transition énergétique (extraits), Pr T. de Laroche Lambert

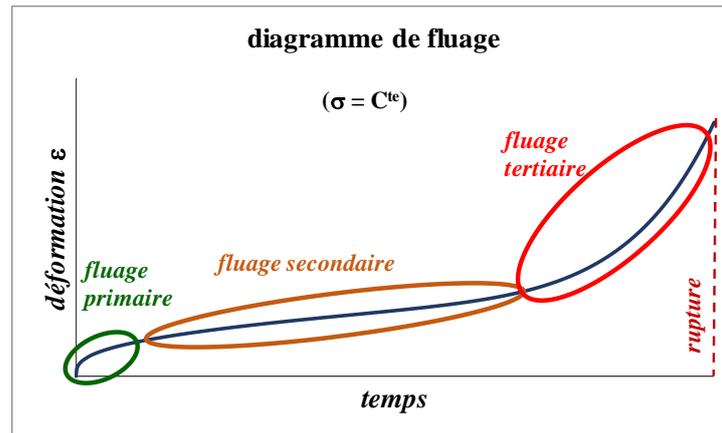


Fig. 3. Courbe de fluage d'un acier.

Ce vieillissement thermique se traduit par un *décalage de la courbe de résilience* $K_{CV}(T)$ ou $K_{CU}(T)$ (Fig. 4), mesure de la *résistance au choc* par l'énergie absorbée par unité de surface (en daJ/cm^2) pour briser une éprouvette Charpy normalisée à entaille en V ou en U (Fig. 6).

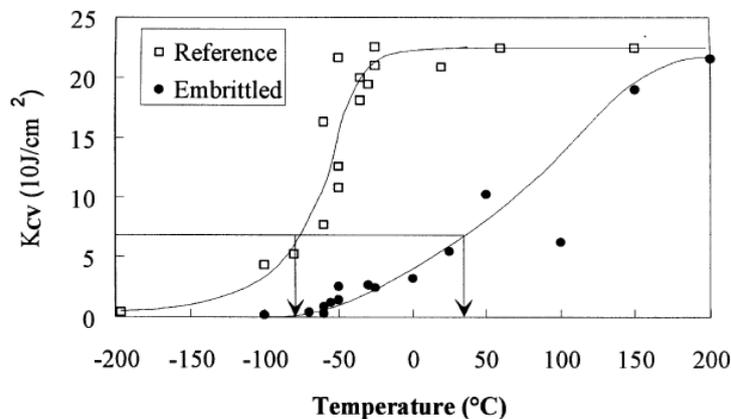


Fig. 4. Courbe de résilience de l'acier A508 vieilli (d'après Yahia et al, 1998)²¹.

La *résistance à la propagation des fissures* est aussi mesurée par la *ténacité* $K_{IC} = (EG_C)^{1/2}$, valeur-seuil du *facteur d'intensité des contraintes* $K_{CP} = \beta\sigma(\pi a)^{1/2}$ caractérisant le champ des contraintes à l'endroit du germe de fissure sous un chargement donné, au-dessus de laquelle une fissure se propage d'elle-même, c'est-à-dire si $K_{CP} > K_{IC}$ (E est le *module d'Young* du matériau ; G_C est l'énergie surfacique absorbée pour créer une fissure ; $\beta = 1/(1 - \nu^2)$ est un facteur correctif lié au *module de Poisson* ν du matériau ; σ est la contrainte de chargement ; a est la longueur de la fissure). Les courbes de ténacité présentent elles aussi un décalage vers les hautes températures après vieillissement thermique (Fig. 5, acier de zone affectée thermiquement ; en pointillés : *Master Curves* de norme ASTM, peu adaptées au vieillissement ; Fig. 6).

²¹ O.M.L. Yahia et al., *Statistical modelling of intergranular brittle fracture in a low alloy steel*, Fatigue & Fracture of Engineering Materials & Structures 21 (1998) 1485-1502
 Sûreté, démantèlement, prolongation de fonctionnement des réacteurs nucléaires et transition énergétique (extraits), Pr T. de Laroche Lambert

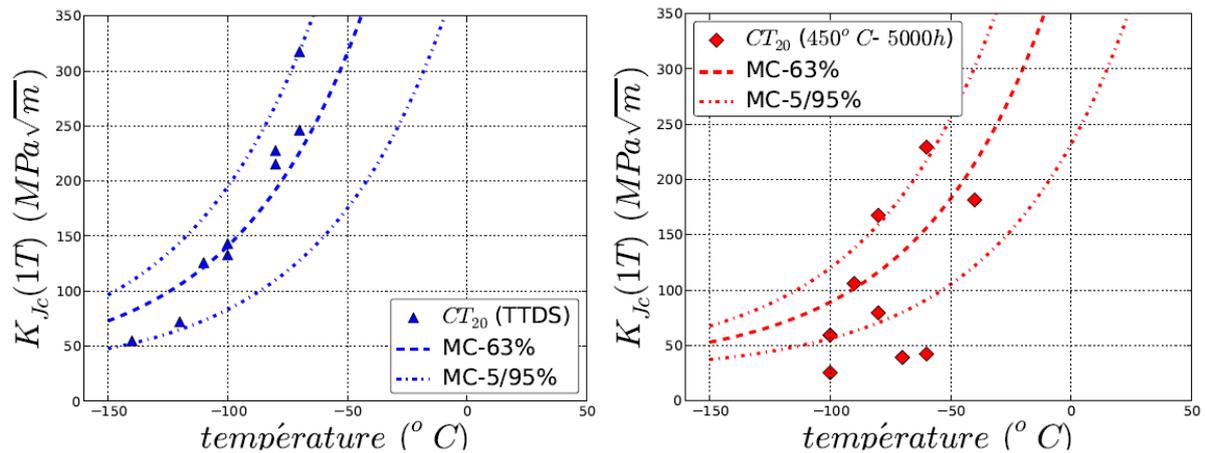


Fig. 5. Ténacité acier 18MND5 de ZAT avant et après vieillissement (Andrieu 2013)²².

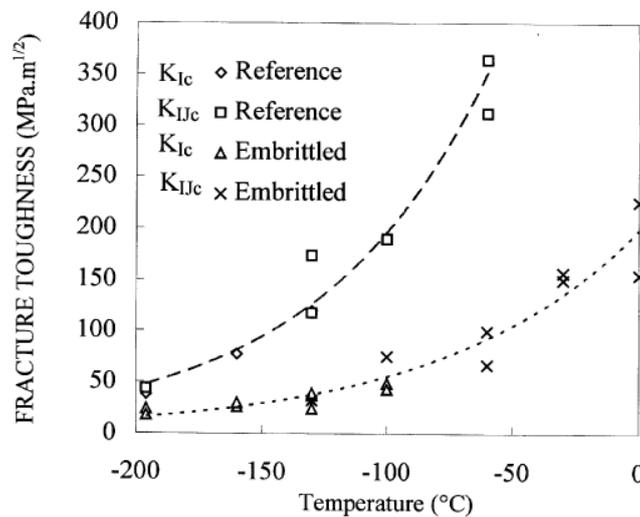


Fig. 6. Courbes de ténacité de l'acier A508 vieilli (embrittled \equiv fragilisé) (Yahia et al., 1998).

Il résulte du vieillissement thermique une élévation de la **température de transition ductile-fragile** (TTDF, ou *ductile to brittle transition temperature DBTT* ou *fracture appearance transition temperature FATT*), mesurée par la température à laquelle la résilience atteint une valeur de référence (56 J pour la norme TK7, 68 J pour la norme US T68) ou celle à laquelle la ténacité atteint $100 \text{ MPa m}^{1/2}$, ou la *température de référence* RT_{NDT} à ductilité nulle (Fig. 7).

Au-dessus de la TTDF, la rupture du matériau après choc est de type *ductile* par déchirement des microcavités autour des précipités d'impuretés (Fig. 8, zone en bas à droite) ; en dessous de la TTDF, la rupture est de type *fragile* par *clivage transgranulaire* (Fig.8, en haut à gauche) du fait de l'augmentation de la limite élastique et de la dureté due au vieillissement (contrainte de clivage inférieure à la limite élastique, Fig. 9a), ou *par décohésion intergranulaire* provoquée par un affaiblissement de cohésion aux joints des grains par ségrégation d'impuretés (Fig. 9b).

²² A. Andrieu, *Mécanismes et modélisation multi-échelle de la rupture fragile trans-et inter-granulaire des aciers pour Réacteurs à Eau sous Pression, en lien avec le vieillissement thermique*, Thèse ParisTech, 2013
 Sûreté, démantèlement, prolongation de fonctionnement des réacteurs nucléaires et transition énergétique (extraits), Pr T. de Laroche Lambert 9/44

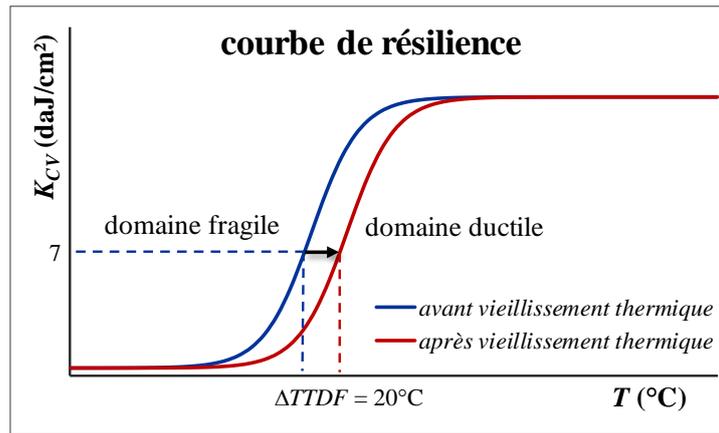


Fig. 7. Effet du vieillissement thermique sur la température de transition ductile-fragile.

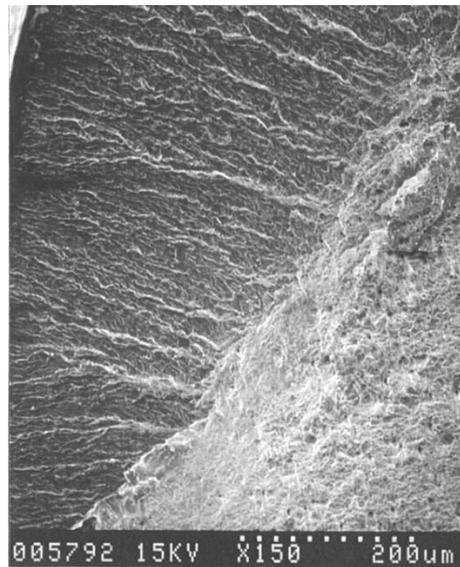


Fig. 8. Rupture par choc : zones fragile/ductile (source : J.H. Schmitt, École Centrale Paris).

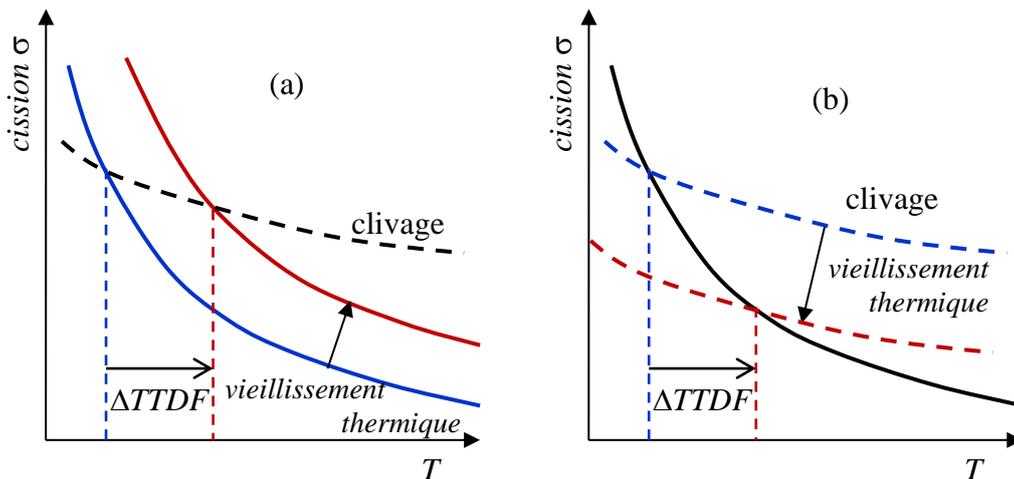


Fig. 9. Modes de rupture fragile a) transgranulaire ; b) intergranulaire.

• **Influence des éléments d'addition**

En effet, la *diffusion des atomes d'éléments d'addition* (souvent appelés improprement « *impuretés* ») et leur ségrégation aux joints des grains, favorisée par l'élévation de température, ainsi que la taille des grains sont les principaux facteurs susceptibles de renforcer le vieillissement thermique et d'abaisser la limite d'élasticité (Fig. 10).

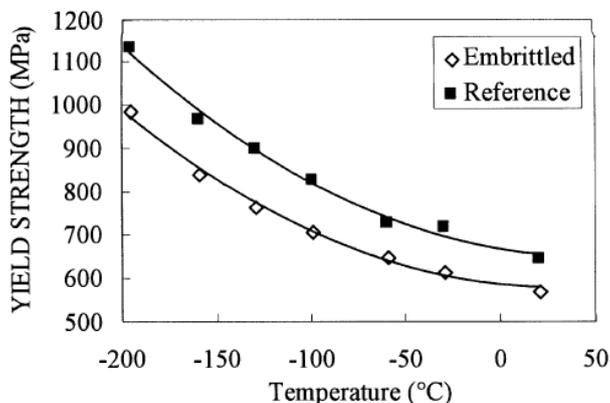


Fig. 10. Limite d'élasticité de l'acier A508 vieilli (*embrittled* \equiv *fragilisé*) (Yahia et al., 1998).

Certains éléments comme le *silicium*, l'*antimoine*, l'*étain*, l'*arsenic*, le *soufre* et surtout le *phosphore* (au-dessus d'une concentration minimale de 50 ppm) sont des *éléments fragilisants* car ils abaissent fortement l'énergie de cohésion des grains : les joints de grains dans l'acier A508 sont subdivisés par la ségrégation du phosphore et la matrice des grains est grêlée de ségrégations d'impuretés après vieillissement thermique (Fig. 11a) en comparaison de l'état des grains avant vieillissement (Fig. 11b). Ainsi, dans un acier à 0,04% massique de phosphore, la concentration dans les joints peut grimper à 0,8% ($\times 20$) après recuit de 10 min à 810°C²³.

En outre, le *manganèse* et le *nickel* favorisent le phénomène de ségrégation des « *impuretés* » ; l'effet fragilisant du *phosphore*, qui élève la TTDF, s'accroît très fortement avec la concentration de l'élément *manganèse* sans seuil minimum pour celle-ci (Fig. 12).

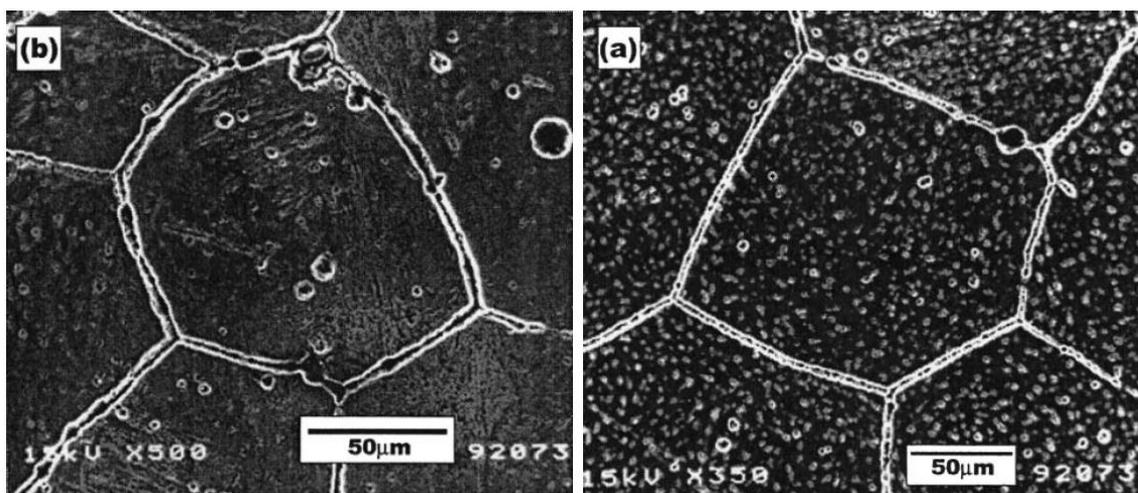


Fig. 11. Fragilisation des joints de grains austénitiques, acier 21/4CrMo (Islam et al., 2003)²⁴.

²³ X. Song et al., *Effect of Phosphorus Grain Boundaries Segregation and Precipitations on Mechanical Properties for Ti-IF Steel after Recrystallization Annealing*, J. Mater. Sci. Technol., 26 (2010) 793-797.

²⁴ M.A. Islam et al., *Effect of phosphorus segregation on fracture properties of 2.25 Cr-1Mo pressure vessel steel*, Journal of Materials Engineering and Performance 12 (2003) 244-248.

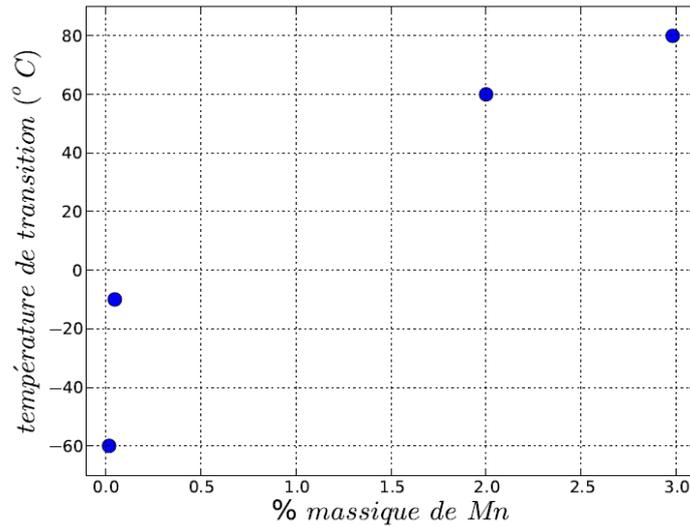


Fig. 12. Influence du manganèse sur la TTDF, acier faiblement allié (d'après Mega et al, 2003)²⁵.

• **Influence des microstructures**

D'autre part, la *taille des grains* joue un rôle capital dans le mécanisme de rupture fragile intergranulaire car la propagation des fissures est d'autant plus facilement bloquée qu'elle se heurte plus fréquemment aux joints de grains (Fig. 13) : la contrainte critique d'amorçage de la rupture fragile diminue ainsi d'autant plus que la taille des grains est grande. C'est ce qui explique que la *microstructure martensitique* d'un acier subit une plus grande élévation de la TTDF que la *microstructure bainitique*, même si celle-ci présente une contrainte d'amorçage critique de clivage plus basse et des températures de transition plus élevées et donc une moins bonne résistance mécanique²⁶.

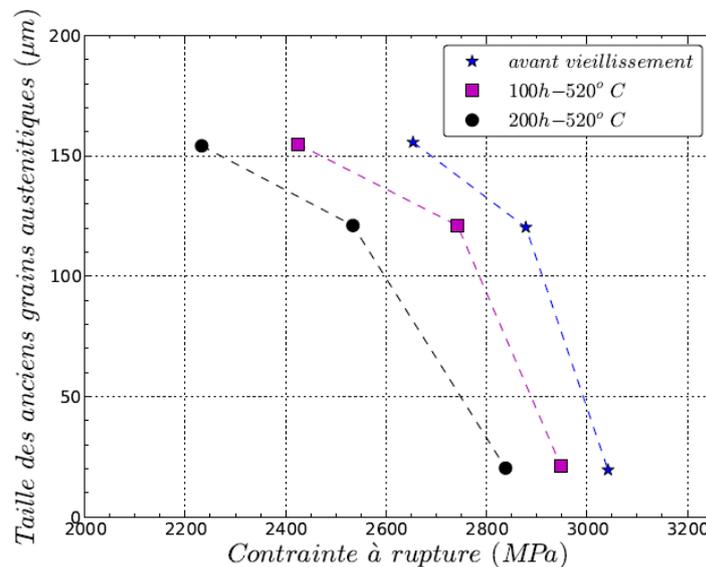


Fig. 13. Influence de la taille des grains, acier faiblement allié (d'après Khan et al, 2003)²⁷.

²⁵ T. Mega et al., *Grain boundary segregation of phosphorus, boron and manganese in high tensile strength steel sheet*, Materials Transactions-JIM 37 (1996) 323-329 (cité dans la Thèse A. Andrieu, 2013).

²⁶ R. Viswanathan and A. Joshi. *Effect of microstructure on the temper embrittlement of Cr-Mo-V steels*, Metallurgical Transactions A, 6 (1975) 2289-2297.

²⁷ S.A. Khan and M.A. Islam, *Influence of prior austenite grain size on the degree of temper embrittlement in Cr-Mo steel*, Journal of materials engineering and performance 16 (2007) 80-85 (cité dans la Thèse A. Andrieu, 2013).

• **Influence des températures de service et des traitements thermiques**

De plus, la *cinétique du vieillissement* est d'autant plus rapide que la température isotherme (de fonctionnement d'un réacteur nucléaire par exemple) est élevée, mais l'élévation de la TTDF peut croître continûment et s'intensifier à températures isothermes plus basses (Fig. 14).

Par ailleurs, les *traitements thermiques de détensionnement* utilisés pour réduire les contraintes résiduelles à l'issue d'un procédé de soudage peuvent induire une fragilisation accrue des aciers par vieillissement thermique, mais la TTDF peut diminuer fortement en augmentant la vitesse de trempe après le traitement thermique (Fig. 15). Les normes préconisent de ce fait un contrôle isotherme du traitement thermique de détensionnement des soudures sans gradient entre 595°C et 625°C avant trempe.

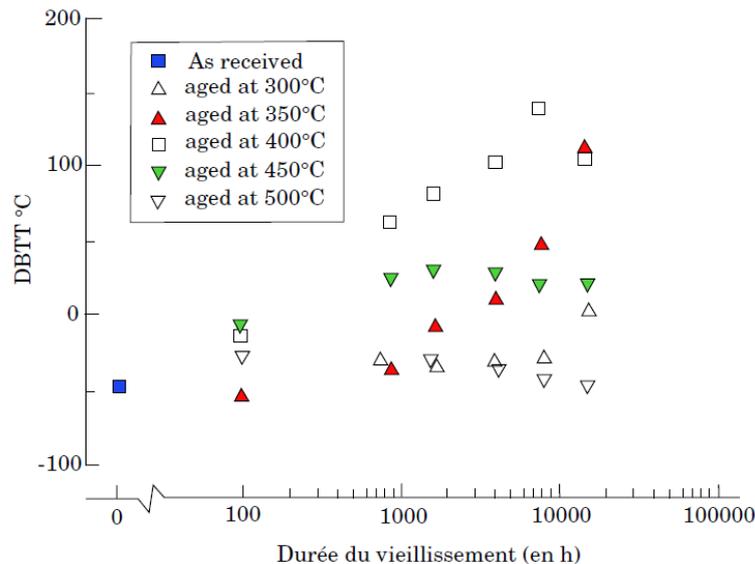


Fig. 14. Vieillessement d'une ZAT, acier gros grains A533B, C_P 90 ppm (d'après Druce et al.)²⁸.

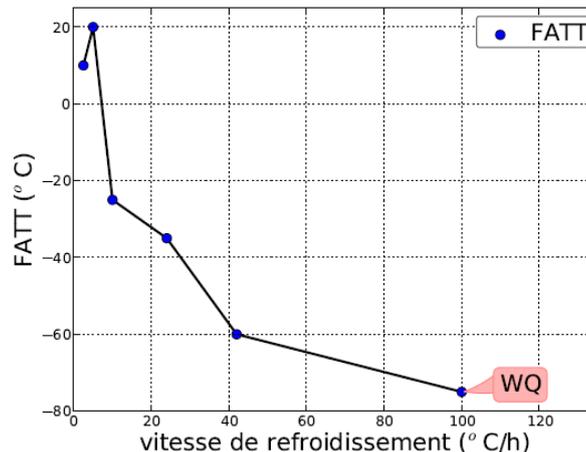


Fig. 15. Influence de la vitesse de refroidissement, acier martensitique CrMoV (d'après Spink)²⁹.

²⁸ S.G. Druce, G. Gage, and G. Jordan, *Effect of ageing on properties of pressure vessel steels*, Acta Metallurgica 34 (1986) 641-652 (cité dans la Thèse A. Andrieu, 2013).

²⁹ G.M. Spink, *Reversible temper embrittlement of rotor steels*, Metallurgical Transactions A 8 (1977) 135-143 (cité dans la Thèse A. Andrieu, 2013).

1.3 Les cuves nucléaires

L'acier forgé utilisé pour la fabrication des viroles de cuve des REP construits à partir de 1974 en France sous licence Westinghouse est un acier de type 16MND5 (nomenclature européenne 16MnNiMo-5, nomenclature US A508-CL3) faiblement allié, choisi pour concilier de bonnes qualités mécaniques (de traction, pour tenir à la pression de service 155 bar et à des températures de service de 290°C à 330°C ; de ténacité, pour résister en situation accidentelle : ajout de *manganèse* et de *cuivre*), une bonne soudabilité (ajout de *molybdène*), une bonne homogénéité à la trempe (ajout de *nickel*), une bonne résistance à la corrosion (ajout de *chrome*), à la corrosion atmosphérique (ajout de *cuivre*) et à l'irradiation (faibles additifs *phosphore*, *cuivre*, *soufre*). Le tableau 1 montre la composition moyenne de la matrice des viroles et celle relevée dans les joints soudés des viroles des cuves ainsi que dans les « veines sombres ».

impureté % masse	C	Mn	Ni	Mo	Si	Cr	Cu	P
matrice	0,16	1,35-1,46	0,8-0,84	0,5-0,58	0,25-0,28	0,15-0,23	0,08	0,005-0,013
joints soudés	-	-	0,78	-	-	-	0,13	0,019
veines sombres	-	1,97-2,32	0,98-1,06	1,28-2,33	0,35-0,38	0,31-0,47	0,11-0,14	0,024-0,034

Tab. 1. Composition de l'acier 16MND5 (matrice de viroles, joints soudés, veines sombres).

La structure microscopique de l'acier 16MND5 est du type *bainite revenue* (lattes de ferrite aux joints de grains austénite) à bainite supérieure (cémentite Fe₃C inter-lattes) et inférieure (carbures Fe_xC inter-lattes) avec bainites granulaires et aciculaire (Fig. 16).

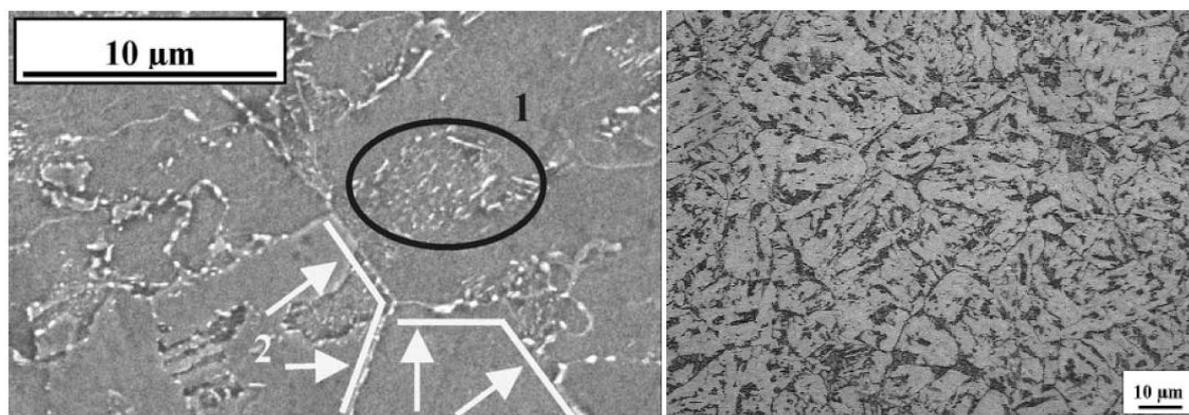


Fig. 16. Structure bainite revenue de l'acier 16MND5 (a. Pesci et al.³⁰ ; b. Garcia-Rodriguez³¹).

Lors du refroidissement du lingot d'acier avant forgeage et traitement thermique, de fortes *macro-ségrégations positives et négatives* de carbone et d'éléments d'alliage se forment inévitablement et migrent vers l'intérieur du fait de leur accumulation dans le liquidus, mais également des *méso- à micro-ségrégations* à très fortes concentrations d'éléments alliés, présentes sous la forme de « *veines sombres* » sur la face interne de la cuve après perçage du lingot.

La composition des veines sombres en impuretés (P, Mn, Mo, Si, Cu, S, Ni), parfaitement visibles au microscope (Fig. 17a), est mesurable par microanalyse par rayons X, spectroscopie

³⁰ R. PESCI et al., *Distribution des contraintes dans l'acier bainitique 16MND5. Analyse expérimentale et modélisation polycristalline*, Mécanique et Industries 4 (2003) 457-465.

³¹ D. Garcia-Rodriguez, *Optimisation d'un code de dynamique des dislocations pour l'étude de la plasticité des aciers ferritiques*, Thèse de l'Université de Grenoble, 2011.

d'électrons Auger (Fig. 17b) ; elle présente des concentrations beaucoup plus élevées que dans la matrice (*cf.* Tab. 1), à l'origine d'une fragilisation accrue des viroles de cuve au vieillissement thermique d'une part, mais également au vieillissement sous irradiation (*cf.* section 2.2).

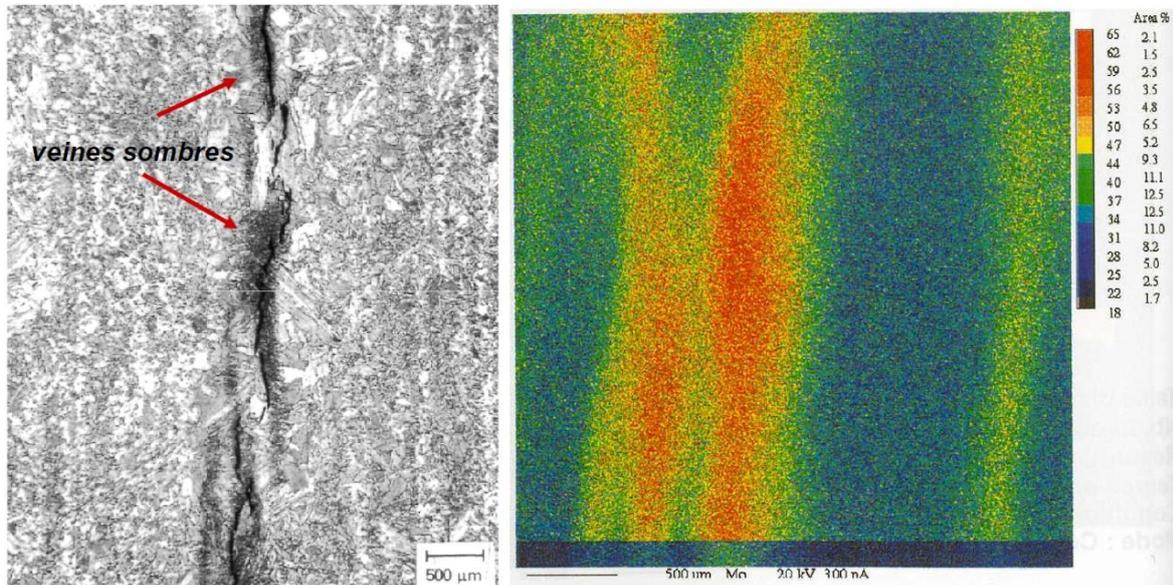


Fig. 17. Veines sombres en face interne des viroles (J. Ruste, 2013)³².

Ces veines sombres sont à l'origine des *fissures* apparues lors des opérations de beurrage de l'acier inox sur la face interne de certaines viroles (DSR, *défauts sous revêtement*), particulièrement sur les premiers réacteurs nucléaires construits en France (Fig. 18)³³. Leur vieillissement plus rapide que celui de la matrice des viroles fait l'objet d'un suivi et d'une surveillance lors des visites décennales des centrales³⁴.

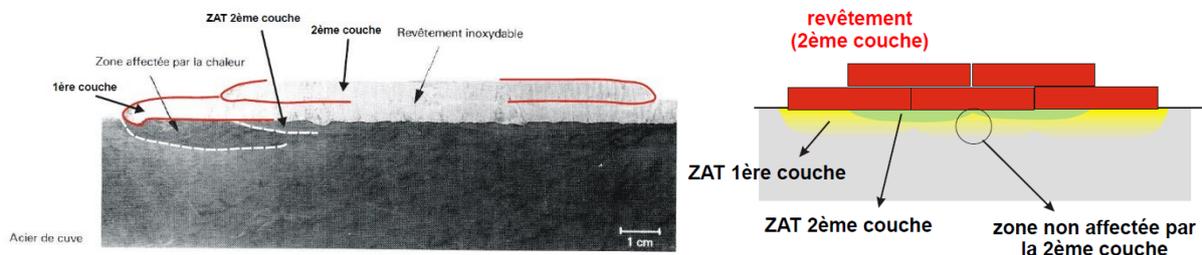


Fig. 18. Revêtement inox de l'acier des viroles (J. Ruste, 2013).

Le *risque de propagation des fissures préexistantes* constitue en effet un problème de sûreté majeur qui se pose aux cuves des réacteurs les plus âgés, lié au vieillissement thermique sous irradiation et sous contrainte, particulièrement lors des refroidissements de sécurité ou des variations de régime dues au suivi de charge (*cf.* section 3.1), du fait de l'augmentation de la température de transition ductile-fragile induite par l'irradiation.

³² J. Ruste, *Les matériaux du nucléaire endommagement et évolution*, Ecole Doctorale Univ. Limoges, 2013.

³³ IRSN, *Le point de vue de l'IRSN sur la sûreté et la radioprotection du parc électronucléaire français en 2010*. Rapport DSR N° 466, pages 78-85

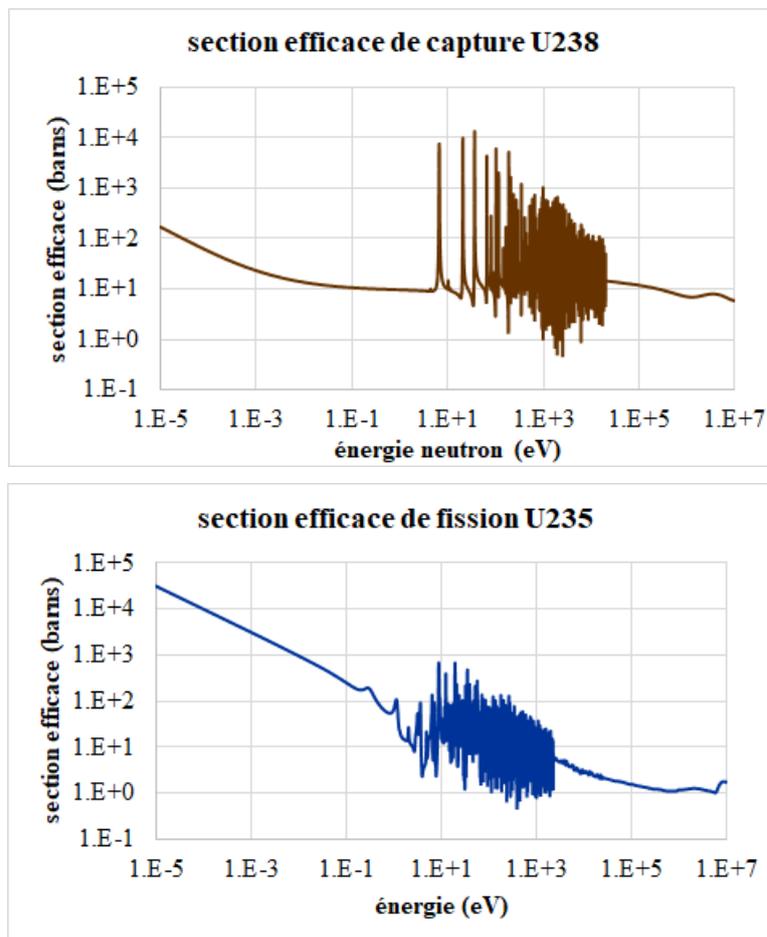
³⁴ *Rapport sur la visite décennale n°3 du réacteur 2 du CNPE de Fessenheim*, GSIEN, 2012.

2. LE VIEILLISSEMENT DES ACIERS SOUS IRRADIATION

2.1 Principaux facteurs d'irradiation

Durant le fonctionnement d'un réacteur, les différents composants proches du cœur (viroles et joints soudés de cuve, internes, couvercles, boulons, buses de circuit primaire) sont irradiés en permanence par le flux de *neutrons rapides*, *thermiques* et *retardés* de spectre énergétique très large entre quelques dixièmes d'électron-volt (eV) et 2 MeV (Fig. 19), de particules α (noyaux d'hélium), de photons électromagnétiques γ et d'électrons émis par les fissions des noyaux lourds (uranium 235, plutonium 239 et autres transuraniens) et par les divers noyaux radioactifs issus de ces fissions. Selon leur niveau d'énergie, l'impact de ces électrons, photons et neutrons sur les atomes des composants de cuve provoque leur *excitation énergétique* (échauffement) ou leur *déplacement* au sein du réseau cristallin du matériau, voire leur *activation radioactive* lorsqu'ils sont absorbés par leurs noyaux (les matériaux irradiés deviennent alors de plus en plus radioactifs au cours du temps de service).

En France comme aux USA, les études du vieillissement des matériaux nucléaires sous irradiation ne prennent en compte que l'impact des *neutrons* d'énergie cinétique supérieure à 1 million d'électron-volt (1 MeV). Cependant, ce critère ne correspond à aucun seuil d'excitation ou de déplacement atomique ; il est largement au-dessus des spectres de résonance des principaux noyaux émetteurs (Fig. 19) et de l'énergie des neutrons retardés (0,2 à 0,6 MeV) et semble plutôt arbitraire ; des seuils de 0,5 MeV sont par exemple utilisés dans les études nucléaires en Inde ou en Russie (sections efficaces en barn $\equiv 10^{-24} \text{ cm}^2$).



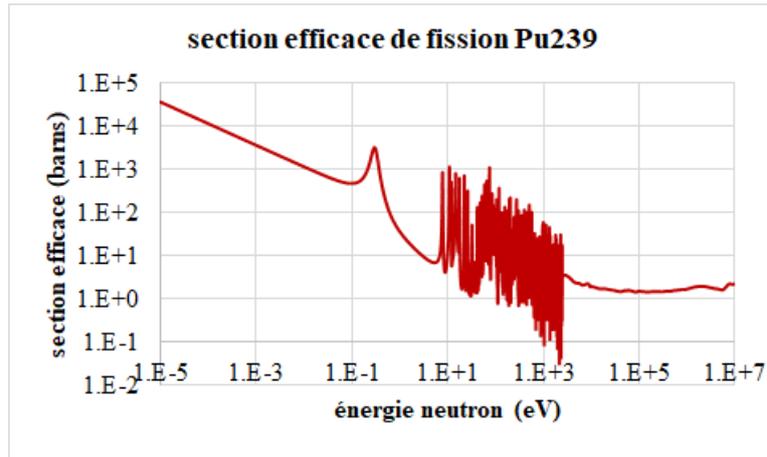
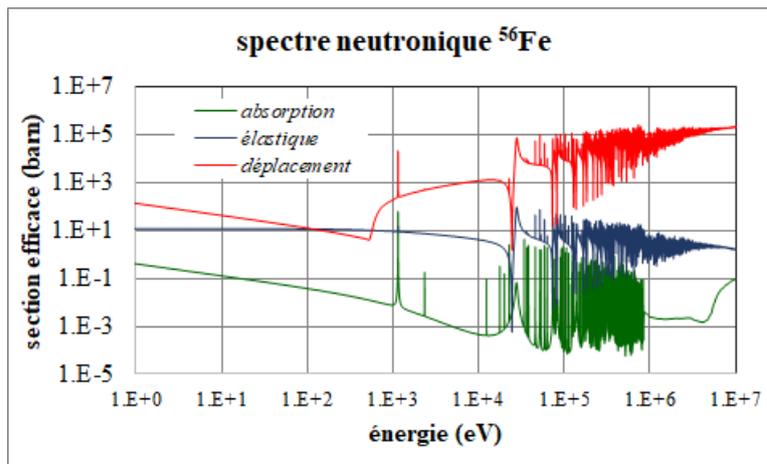


Fig. 19. Sections efficaces neutroniques de capture et fission de ^{238}U , ^{235}U , ^{239}Pu .

Un déplacement d'un atome au sein de la matrice cristalline de l'acier ou du zircaloy peut en fait survenir après impact avec un neutron d'énergie beaucoup plus faible (quelques keV), selon le spectre neutronique d'absorption, de diffusion élastique et d'endommagement (déplacement) des différents atomes de la matrice³⁵. On peut en effet observer ci-dessous (Fig. 20) les très grandes différences entre les spectres énergétiques de section efficace de choc neutronique des noyaux de ^{56}Fe , de ^{55}Mn , de ^{63}Cu et de ^{31}P .



³⁵ R. E. MacFarlane, A. C. Kahler, *Methods for Processing ENDF/B-VII with NJOY*, Nuclear Data Sheets 111 (2010) 2739–2890.

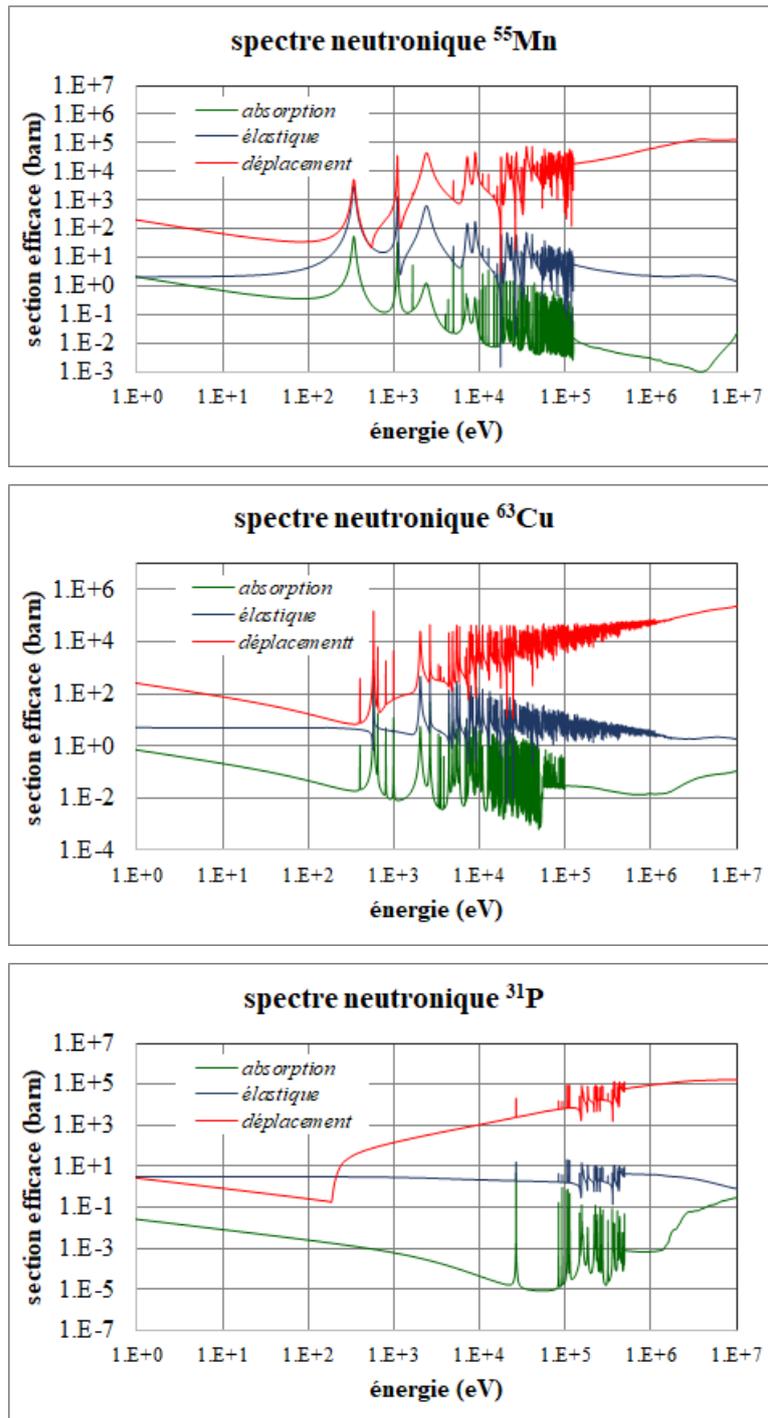


Fig. 20. Spectres neutroniques du ^{56}Fe , ^{55}Mn , ^{63}Cu , ^{31}P .

En effet, les énergies de déplacement des atomes dans leur matrice sont de l'ordre de quelques dizaines d'eV (norme ASTM³⁶ : 40 eV dans le fer ; 27 eV dans le cuivre), ce qui est largement à portée des neutrons bien en dessous de l'énergie du premier atome heurté (PKA, *primary knock-on atom*) produit par des neutrons de 1 MeV, de l'ordre de quelques dizaines de keV. Il faut donc considérer que la valeur d'énergie-seuil de 1 MeV pour les neutrons incidents pris en compte dans les courbes d'irradiation ne prend pas en compte tous les dommages possibles (déplacements en cascade) produits par l'ensemble du spectre neutronique, et que les

³⁶ OECD/NEA, Primary Radiation Damage in Materials, 2015.

mesures de flux de neutrons et de leurs conséquences sont donc des valeurs *minimales* et non maximales, que ce soit pour l'évaluation et la mesure de l'élévation des TTDF ou pour les simulations numériques des mécanismes de vieillissement thermique sous irradiation des matériaux nucléaires.

Si les émissions de particules α , essentiellement produites au sein de la matrice, génèrent la coalescence de *bulles d'hélium* néfastes à la cohésion locale de la matrice, les *électrons* émis par radioactivité β dans le cœur peuvent aussi générer des *défauts* au sein de la matrice (1 défaut de Frenkel³⁷ par électron \equiv déplacement d'un atome de son site, créant simultanément un *site vacant* et un *atome interstitiel*, Fig. 21) car leur spectre d'énergie E_c s'étale de 100 keV à 1 MeV. Par comparaison, l'énergie de PKA transférée dans un cristal de cuivre par un électron de 1 MeV (section efficace de choc 30 barn) est de 25 eV, suffisante pour créer une paire de Frenkel, alors qu'elle est de 45 keV pour un neutron de 1 MeV (section efficace 600 barn).

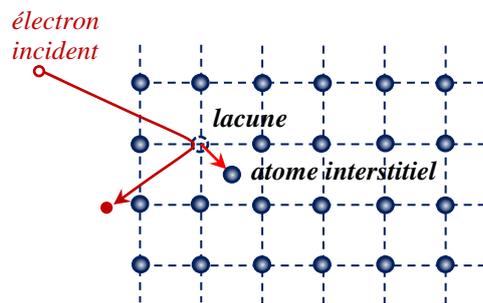


Fig. 21. Paire de Frenkel induite par un électron énergétique.

D'une manière générale, l'énergie cinétique maximale de recul transférée à un atome de masse M par une particule de masse m (électron, neutron) d'énergie cinétique incidente E_c peut être calculée par probabilité de transfert³⁸ et s'écrit $T_{max} = 4 mME_c/(m + M)^2$, ce qui conduit à une énergie de PKA de 39 eV pour un atome de ⁵⁶Fe heurté par un électron de 1 MeV et de 69,6 keV s'il est heurté par un neutron de 1 MeV. Des irradiations avec des électrons ou des neutrons générant des énergies de PKA plus faibles produisent des paires de Frenkel et des amas de défauts aux échelles nano- à microscopiques qui peuvent naître et grossir par diffusion³⁹. La fonction d'efficacité de défaut des électrons irradiants peut même dépasser celle des neutrons aux faibles énergies de recul de PKA (Fig. 22).

³⁷ W. Soppe et E. Kotornin, *Aggregation of Frenkel defects under irradiation: a mesoscopic approach*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 91 (1994) 87-91.

³⁸ S. Marguet, *La physique des réacteurs nucléaires*, EDF R&D, Tec & Doc Lavoisier (2013).

³⁹ S. J. Zinkle, *Radiation-Induced effects on microstructure*, Comprehensive Nuclear Materials, volume 1, Elsevier (2012) pp. 65-98.

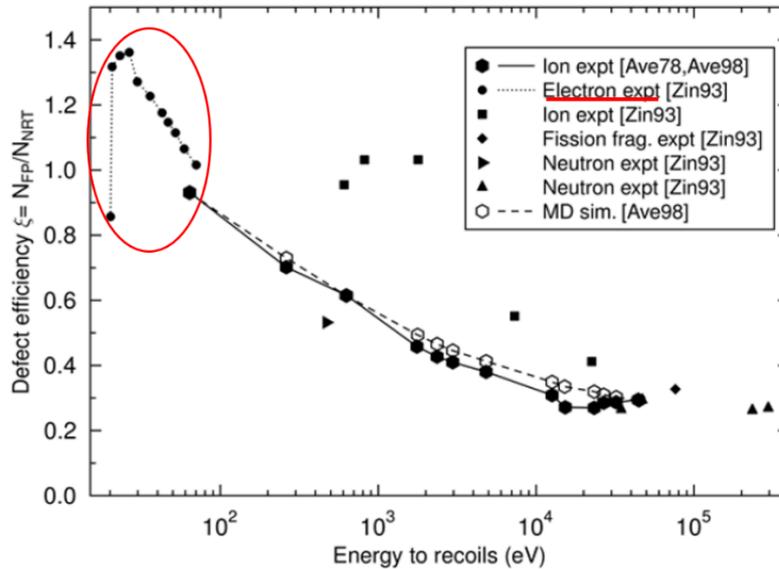


Fig. 22. Efficacité de production de défauts dans le cuivre (source : OCDE/NEA⁵⁸).

2.2 Mécanismes de vieillissement sous irradiation

Les cascades de déplacements atomiques étant très majoritairement produits par les neutrons rapides directement produits par les fissions de noyaux, par les neutrons thermiques ralentis par les modérateurs (eau, poisons) et par les neutrons retardés (issus des produits de fission après désintégration β^-), les recherches mondiales sur l'interaction du **flux de neutrons** F ($n \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) avec les matériaux de cuve sont très intenses pour parvenir à une compréhension fine des mécanismes de vieillissement de ces matériaux, dans l'optique d'une meilleure évaluation de leur comportement réel durant l'exploitation des réacteurs, une meilleure prévention des risques d'accidents et une évaluation réaliste des possibilités de prolongation de service au-delà des durées initialement prévues à leur construction.

En effet, jusqu'à tout récemment, il subsistait de nombreuses incertitudes, tant pour la mesure des **fluences neutroniques** ϕ_t (quantité cumulée de neutrons reçue par unité de surface, en n/cm^2), des **déplacements par atome** dpa (nombre de déplacements total d'atomes sur une durée donnée dans un volume de matériau irradié, divisé par le nombre total d'atomes dans ce même volume), des températures de transition ductile-fragile (TTDF, RT_{NDT}), que pour la prise en compte de tous les mécanismes physiques dans les modélisations déterministes et probabilistes, la simulation et les méthodes de résolution numérique permettant de reproduire les modifications structurales des matériaux depuis l'échelle atomique jusqu'à la taille réelle des installations nucléaires de manière la plus réaliste possible.

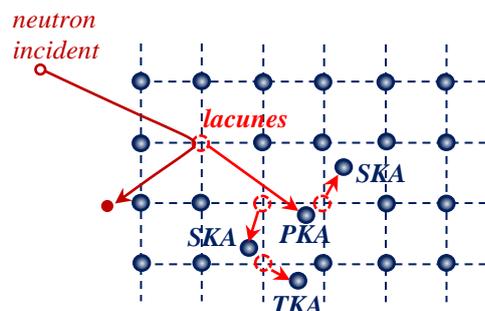


Fig. 23. Production d'une cascade d'atomes interstitiels et de lacunes par un neutron.

Si la très grande majorité des résultats des travaux de recherche sur le vieillissement des matériaux nucléaires irradiés utilise le paramètre de *fluence neutronique* ϕ_t pour évaluer les dommages de l'irradiation, il serait plus rigoureux d'utiliser plutôt le *déplacement par atome* *dpa* comme paramètre car la fluence ϕ_t ne dit rien du spectre neutronique qui peut produire un large éventail d'énergies de recul des atomes impactés et donc d'atomes interstitiels déplacés et de lacunes produites par cascade pour un neutron reçu⁴⁰ (Fig. 23).

- **Progrès métrologiques**

L'évolution rapide des techniques micro- et nanoscopiques permet aujourd'hui de mesurer les concentrations volumiques des atomes d'éléments chimiques d'alliage dans l'épaisseur des matériaux depuis leur surface, la quantité et le volume de ségrégations d'atomes, d'amas de précipités de solutés, ainsi que la présence de défauts et de microfissures (Fig. 24) :

- tomographies à rayons X et ultrasons, spectroscopies γ et Raman, résistivité électrique, spectroscopie d'impédance ;
- PES (*photoemission spectroscopy*), LIBS (*laser-induced breackdown spectroscopy* ou spectroscopie d'émission atomique de plasma induite par laser), STEM (*scanning transmission electron microscopy*), SANS (*small angle neutrons spectroscopy*), LAPT (*local atom probe tomography*), PAS (*positron annihilation spectroscopy*), EPMA (*electron probe micro-analysis*), EDS (*energy dispersive X-ray spectroscopy*), ESCA-XPS (*Electron Spectroscopy for Chemical Analysis X-ray spectroscopy*), AES (*Auger electron spectroscopy*), SEI (*secondary-electron imaging*), BSEI (*back-scattered electron imaging*), WDS (*wavelength dispersive spectroscopy*), EBSD (*Electron Backscatter Diffraction*), etc.

L'utilisation combinée des techniques ATP et STEM-ADS a permis par exemple de montrer que les **précipités de nickel, manganèse, silicium** qui apparaissent dans la matrice des aciers faiblement alliés pendant l'irradiation contiennent également jusqu'à 6% d'atomes de fer, et que par conséquent retirer ceux-ci des données correctives des enregistrements APT est incorrect⁴¹. Elle a en outre permis de montrer que *ces précipités Ni-Mn-Si radio-induits se forment préférentiellement aux joints des grains d'acier* avec des tailles plus petites que dans la matrice, et qu'il se forme simultanément des *zones libres de précipité* de part et d'autre des joints, suggérant un phénomène supplémentaire de *diffusion* de ces précipités. Ces résultats expérimentaux récents expliquent en grande partie la fragilisation des aciers sous irradiation, comme le montrent les tests de résilience, mais ils sont aussi très importants pour le calage des modèles numériques de vieillissement sous irradiation.

⁴⁰ Cf. cit. 36.

⁴¹ P.D. Edmondson et al., *Using complimentary microscopy methods to examine Ni-Mn-Si precipitates in highly-irradiated reactor pressure vessel steels*, Acta Materialia 134 (2017) 31-39.

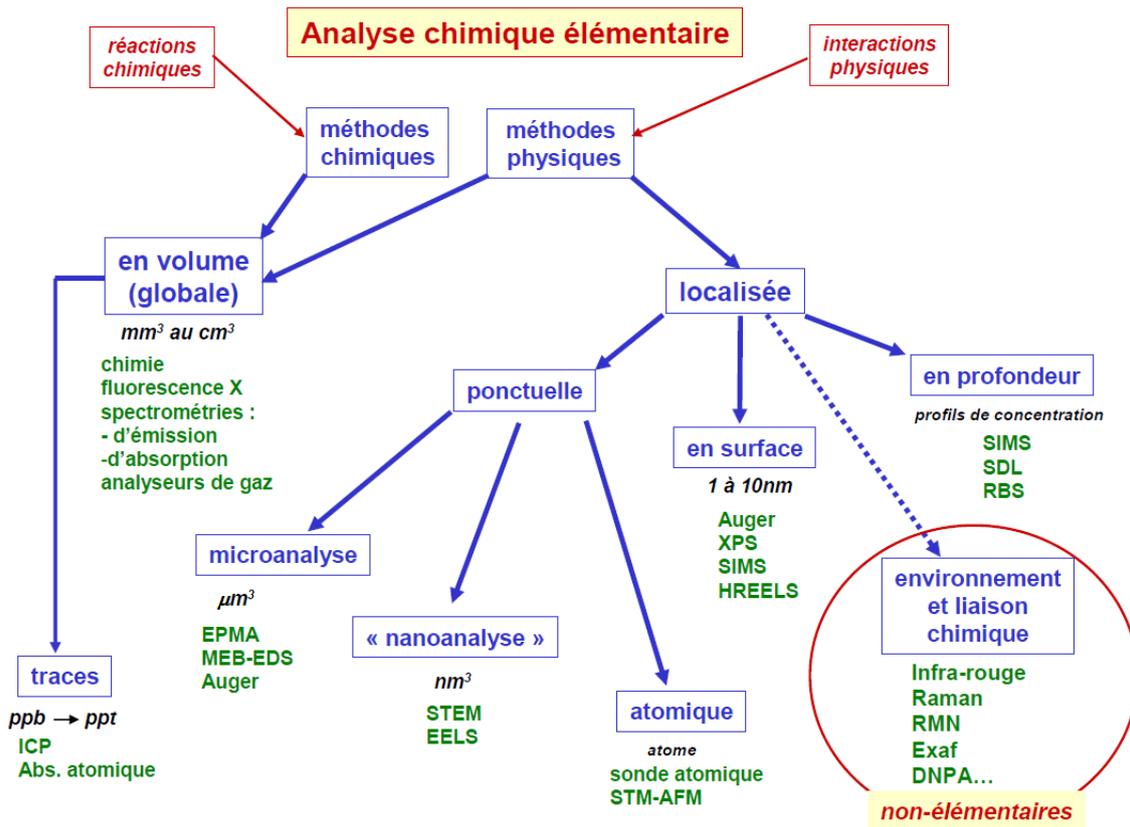


Fig. 24. Techniques de microanalyse des matériaux (J. Ruste)⁴².

• Progrès expérimentaux

L'irradiation permanente des matériels de cuves nucléaires par les neutrons est connue pour provoquer leur *fragilisation* et leur *durcissement* progressifs qui se traduisent par l'élévation régulière de la TTDF, ce qui augmente progressivement le risque de leur *rupture lors de refroidissements rapides sous pression* et compromet la prolongation de leur service au-delà d'une durée actuellement encore incertaine.

Grâce à de très nombreuses études de laboratoires chauds⁴³, on sait depuis les années 70 que la fragilisation des aciers de cuves nucléaires est principalement due à la formation de **précipités de cuivre** et de **défauts cristallins stables et instables**. Depuis un peu plus d'une vingtaine d'années, plusieurs chercheurs ont suggéré que divers phénomènes de **ségrégation conjointe d'amas d'impuretés** (particulièrement de nickel, de manganèse et de silicium, mais aussi de molybdène, de phosphore, de soufre, etc.) pouvaient être également responsables de la fragilisation constatée des aciers irradiés, surtout aux concentrations de cuivre très faibles ou nulle. La preuve de l'apparition et de la croissance de ces ségrégations d'amas avec l'irradiation a pu être apportée une dizaine d'années plus tard grâce aux progrès des techniques APT⁴⁴.

Par ailleurs, les calculs théoriques des précurseurs (équipes de G.R. Odette à l'ORNL - Oak Ridge National Laboratory) sur des bases thermodynamiques prédisaient une apparition lente

⁴² J. Ruste, *La place du MEB dans les techniques expérimentales*, Microscopie électronique à balayage et microanalyses, EDP Science, 2008.

⁴³ J.E. Zeleny, *Understanding thermally induced embrittlement in low copper RPV steels utilising atom probe tomography*, Materials Science and Technology 31(8) 981-988.

⁴⁴ M.K. Miller, *Embrittlement of RPV steels: An atom probe tomography perspective*, Journal of Nuclear Materials 371 (2007) 145-160.

mais irréversiblement croissante de ces précipités retardés, appelés *late blooming phases* (LBP)⁴⁵. La communauté scientifique a longtemps débattu pour savoir si l'accroissement des ségrégations d'amas de solutés au sein de la matrice était induit ou favorisé par l'irradiation et si le phénomène des LBP avait une réalité quelconque, mais il est devenu de plus en plus manifeste, à mesure que les techniques de mesure à l'échelle atomique se sont affinées et que les méthodes de résolution des simulations numériques progressaient avec la puissance de calcul des ordinateurs, que la formation des LBP est bien un phénomène majeur induit par le rayonnement neutronique et que les ségrégations d'amas de solutés sont à la fois induites et renforcées par l'irradiation⁴⁶.

L'apparition progressive des LBP aux fluences élevées avait pourtant déjà été observée par ses effets et partiellement modélisée dès 2004 par l'équipe de G.R. Odette⁴⁷ à l'ORNL : la variation $\Delta\sigma_y$ de la *limite d'élasticité* avec la fluence ϕ_t présente un plateau en présence de précipités riches en cuivre (CRP) mais s'élève ensuite fortement et continûment avec la fluence (*durété*) s'il se forme également des précipités Mn-Ni-Si-P (notés MF pour *matrix features*) ; les courbes $\Delta\sigma_y(\phi_t)$ s'abaissent avec la diminution de concentration des atomes de cuivre et de nickel et remontent fortement aux hautes fluences pour rejoindre, voire dépasser celles des aciers riches en cuivre : ceci traduit un *effet d'accélération et de prédominance des LBP aux fluences élevées dans les aciers faiblement alliés en cuivre*⁴⁸.

Les observations expérimentales très récentes de formation des précipités Mn-Ni-Si effectuées sur des aciers faiblement alliés de type A508-4N (de compositions proches de celle de la nuance 16MND5 mais de meilleure qualité de résistance à l'irradiation, avec des concentrations atomiques de cuivre comprises entre 0,03 et 0,06% seulement, et de nickel entre 0,22 et 3,29%), irradiés et thermiquement vieillis dans des réacteurs de recherche à des fluences élevées $\phi_t = 14.10^{19}$ n/cm², révèlent une *grave fragilisation par durcissement induit*⁴⁹. On observe que le *nickel est le facteur majeur de la formation des précipités Mn-Ni-Si* ; que leur *concentration volumique et la limite d'élasticité augmentent avec la concentration de manganèse*, particulièrement aux hautes concentrations de nickel ; qu'à des concentrations très faibles de cuivre et faibles à moyennes de nickel, les précipités Mn-Ni-Si peinent à apparaître de manière homogène dans une matrice exempte de défauts, mais que les *réseaux de dislocations locales* et les *boucles d'atomes interstitiels radio-induites* agissent comme des *sites de nucléation* (formation) hétérogène ; et enfin que l'*augmentation de la limite d'élasticité $\Delta\sigma_y$* est proportionnelle à la racine carrée de la fraction volumique f des précipités Mn-Ni-Si.

L'excellente synthèse des mesures les plus récentes⁵⁰ présentées par G.R. Odette, effectuées sur une très large gamme d'aciers faiblement alliés de fractions massiques en solutés très différentes (Cu de 0,02 à 0,41% ; Ni de 0,18 à 1,68% ; Si de 0,17 à 0,63% ; P de 0,005 à 0,020%) et

⁴⁵ G.R. Odette, *Radiation Induced Microstructural Evolution in Reactor Pressure Vessel Steels*, Materials Research Society Symposium Proceedings, 373, Materials Research Society, Warrendale, 1995, 137-148.

⁴⁶ C. Pareige et al., *Behaviour of P, Si, Ni impurities and Cr in self ion irradiated Fe-Cr alloys – Comparison to neutron irradiation*, Journal of Nuclear Materials 456 (2015) 471-476.

⁴⁷ Odette, G. R., T. Yamamoto, and B. D. Wirth, *Late Blooming Phases and Dose Rate Effects in RPV Steels: Integrated Experiments and Models*, Proceedings of the Second International Conference on Multiscale Materials Modeling, ed. N. M. Ghoniem, University of California, 355, 2004.

⁴⁸ R.K. Nanstad, G.R. Odette, R.E. Stoller, T. Yamamoto, *A Physically Based Correlation of Irradiation-Induced Transition Temperature Shifts for RPV Steels*, Review of Draft NUREG Report on Technical Basis for Revision of Regulatory Guide 1.99, Oak Ridge National Laboratory ORNL/NRC/LTR-08/03, March 2008.

⁴⁹ N. Almirall et al., *Precipitation and hardening in irradiated low alloy steels with a wide range of Ni and Mn compositions*, Acta Materialia 179 (2019) 119-128.

⁵⁰ G.R. Odette et al., *On the history and status of reactor pressure vessel steel ductile to brittle transition temperature shift prediction models*, Journal of Nuclear Materials 526 (2019) 151863.

des fractions massiques moyennes habituelles en manganèse (Mn de 1,20 à 1,69%) est certainement la plus importante et utile pour la compréhension et la prévision de leurs comportements sous irradiation : les *fluences neutroniques* auxquelles ces aciers ont été soumis s'étendent en effet de $3,1 \cdot 10^{17}$ n/cm² à $1,1 \cdot 10^{21}$ n/cm² (neutrons > 1 MeV) avec des *flux* de $8,4 \cdot 10^{14}$ n m⁻² s⁻¹ à $2,3 \cdot 10^{18}$ n m⁻² s⁻¹, ce qui correspond à des fluences très largement supérieures à celles que pourraient atteindre des réacteurs nucléaires jusqu'à 80 ans de service ($\phi_t \sim 6,5 \cdot 10^{19}$ n/cm² pour un REP à 40 ans ; $\phi \sim 10^{10}$ n cm⁻² s⁻¹ à 10^{12} n cm⁻² s⁻¹ selon les REP et l'emplacement).

On peut alors observer très clairement (Fig. 25) *la croissance rapide des précipités riches en cuivre aux faibles fluences dans les aciers de concentration élevée en cuivre (0,41% en masse), qui ralentit rapidement une fois le soluté entièrement précipité, puis une croissance due aux ségrégations d'amas Mn-Ni-Si-P, initialement beaucoup moins concentrés mais qui émergent lentement en accélérant continûment au-delà d'une fluence de l'ordre de $6 \cdot 10^{19}$ n/cm².*

À l'autre extrémité, *dans les aciers aux très faibles concentrations de cuivre (0,01% en masse), la formation de précipités riches en cuivre est négligeable mais la ségrégation d'amas de précipités Mn-Ni-Si-P, très lente aux faibles fluences, accélère rapidement et continûment d'autant plus fortement que le flux neutronique est faible (Fig. 25).*

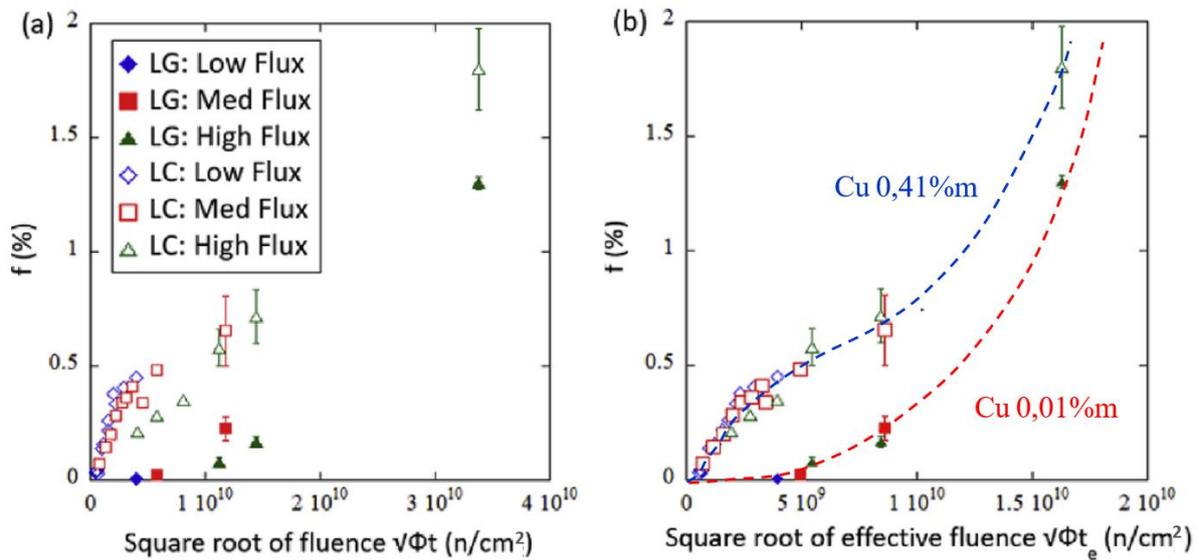


Fig. 25. *Effet de la fluence et du flux de neutrons sur la formation de précipités de solutés dans les aciers faiblement alliés pauvres en cuivre (symboles plein) et riches en cuivre (symboles vides), d'après R.G. Odette⁵⁰.*

Les auteurs montrent qu'il est possible de regrouper l'ensemble des points de mesure de précipitation en fonction de la fluence pour chacune des deux nuances extrêmes d'aciers en deux courbes limites, l'une pour les aciers à 0,41% de cuivre et l'autre pour les aciers à 0,01% de cuivre, en utilisant une *fluence effective* $\phi_{te} = g_s(\phi) \phi_t \approx \phi_t (\phi_r/\phi)^p$ où la fonction $g_s(\phi)$ représente la fraction des lacunes qui échappent à la recombinaison avec les atomes interstitiels et qui diminue avec le flux ϕ (ϕ_r est une valeur référence de ϕ et l'exposant $p \approx 0,25$).

Les mesures des fractions volumiques, des densités et des rayons des précipités qu'ils obtiennent par tomographie à sonde atomique ATP (Fig. 26) montrent très clairement les ségrégations autour des atomes de cuivre (CRP) et les amas de précipités de Mn-Ni-Si (MNSP) *qui se forment prioritairement aux réseaux de dislocations de la matrice d'un acier faiblement allié à bas taux de cuivre après une forte irradiation (fluence $\phi_t = 14 \cdot 10^{19}$ n/cm²).*

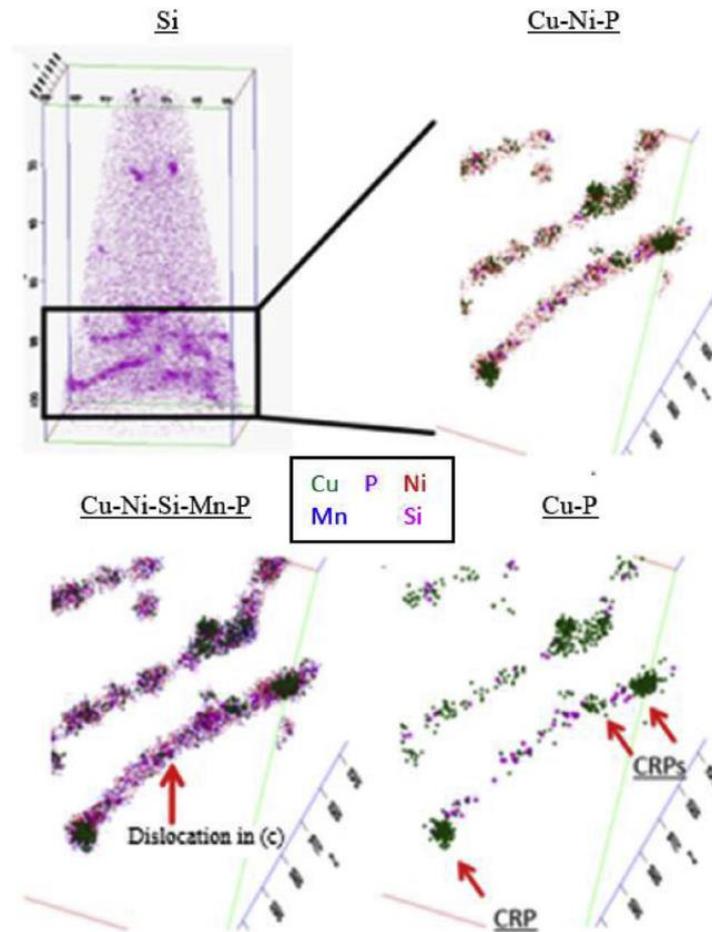


Fig. 26. Précipités et ségrégations de solutés aux réseaux de dislocation mesurés par sonde atomique dans un acier faiblement allié à faible taux de cuivre après forte irradiation (G.R. Odette)⁵⁰.

- **Simulation numérique des mécanismes de vieillissement thermique sous irradiation**

On a aujourd'hui une vision claire des mécanismes du vieillissement thermique sous irradiation, qui s'appuie à la fois sur la très grande précision des mesures obtenues grâce aux nouvelles techniques spectroscopiques et tomographiques jusqu'à l'échelle de l'atome, et sur la prise en compte de l'ensemble des interactions et des énergies mises en jeu dans les phénomènes de déplacements des différents atomes et des lacunes produits par l'irradiation des matériaux en fonction de leur composition, de leur température, du flux et de la fluence neutroniques.

Les méthodes de simulation numérique de type Dynamique d'Amas (CD, *Cluster Dynamics*), Cinétique Cristalline Monte-Carlo (KLMC, *Kinetic Lattice Monte-Carlo*), Avrami (JMAK, *Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov models*) fournissent désormais des résultats d'une très grande précision et permettent de bien rendre compte des mesures dans les aciers irradiés en laboratoire dans une large gamme de flux neutronique jusqu'à des fluences très élevées.

Les mécanismes du vieillissement des aciers nucléaires faiblement alliés peuvent être regroupés et résumés selon le diagramme ci-dessous (Fig. 27).

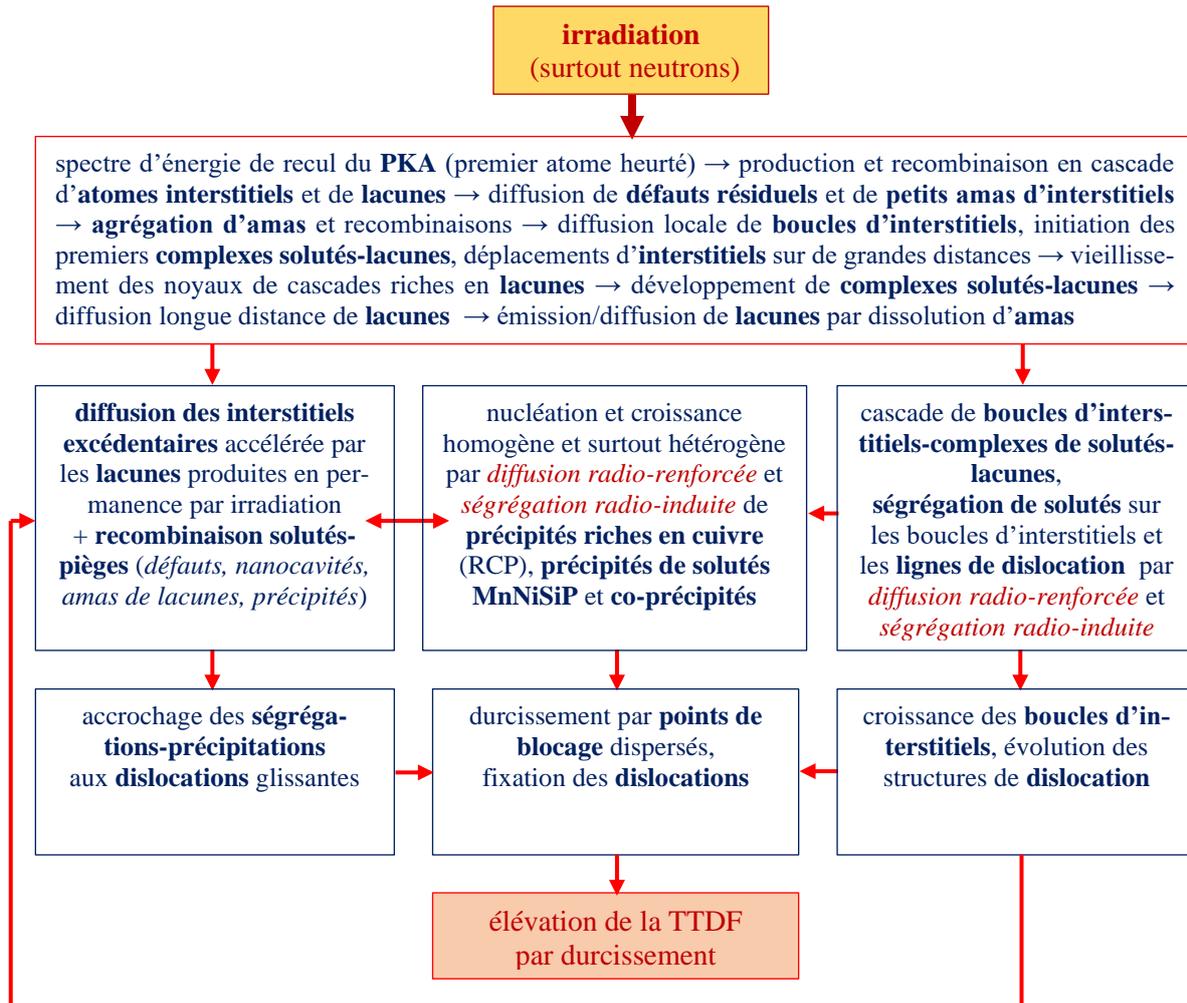


Fig. 27. Mécanismes de vieillissement des aciers sous irradiation (d'après R.G. Odette et al.)⁵⁰

Les phénomènes de *diffusion radio-renforcée* (RED, *radiation enhanced diffusion*) et de *ségrégation radio-induite* (RIS, *radiation induced segregation*) participent de manière étroite et couplée aux mécanismes du vieillissement sous irradiation et sont pris en compte dans les simulations numériques. Ils dépendent du flux neutronique si la recombinaison lacunes-atomes interstitiels est significative.

Le durcissement des aciers sous irradiation, particulièrement les aciers faiblement alliés, est étroitement lié à la ségrégation des boucles d'interstitiels, des précipités autour des atomes de cuivre et des amas de solutés-lacunes, formant des complexes qui se stabilisent par thermalisation et se fixent aux différents défauts cristallins existants ou radio-induits (amas de lacunes, précipités d'interstitiels eux-mêmes), conduisant au blocage progressif des dislocations de manière irréversible. Du fait de leur potentiel chimique bas, les atomes de cuivre précipitent rapidement les premiers et agglomèrent ensuite d'autres solutés Mn, Ni, Si, P, etc. (Fig. 28), tandis que les amas de précipités de solutés se forment lentement mais irrémédiablement avec une vitesse croissante sous l'effet du rayonnement neutronique à partir des boucles d'interstitiels et de la dissolution des complexes : c'est le phénomène de croissance des late blooming phases (LBP), d'autant plus intense que la concentration de nickel est élevée, quelle que soit la

concentration de cuivre dans l'acier. Les simulations numériques les plus récentes par CD⁵¹ montrent très clairement que la densité des précipités NiMnSi augmente et leur taille diminue avec le flux ϕ ; leur densité et leur fraction volumique augmente avec la baisse de température ; presque toute la fraction de cuivre précipite dans les premières années de service des réacteurs, alors que les précipités de Mn-Ni-Si-P continuent de grossir et de se densifier continûment avec la fluence ϕ_t .

Aux fluences très élevées, ils continuent de croître et de se densifier de plus en plus rapidement, et d'augmenter en conséquence la dureté, d'abaisser la ténacité et de déplacer la température de transition ductile-fragile vers des valeurs de plus en plus élevées, ce qui augmente le risque de rupture fragile par refroidissement (cf. section 3).

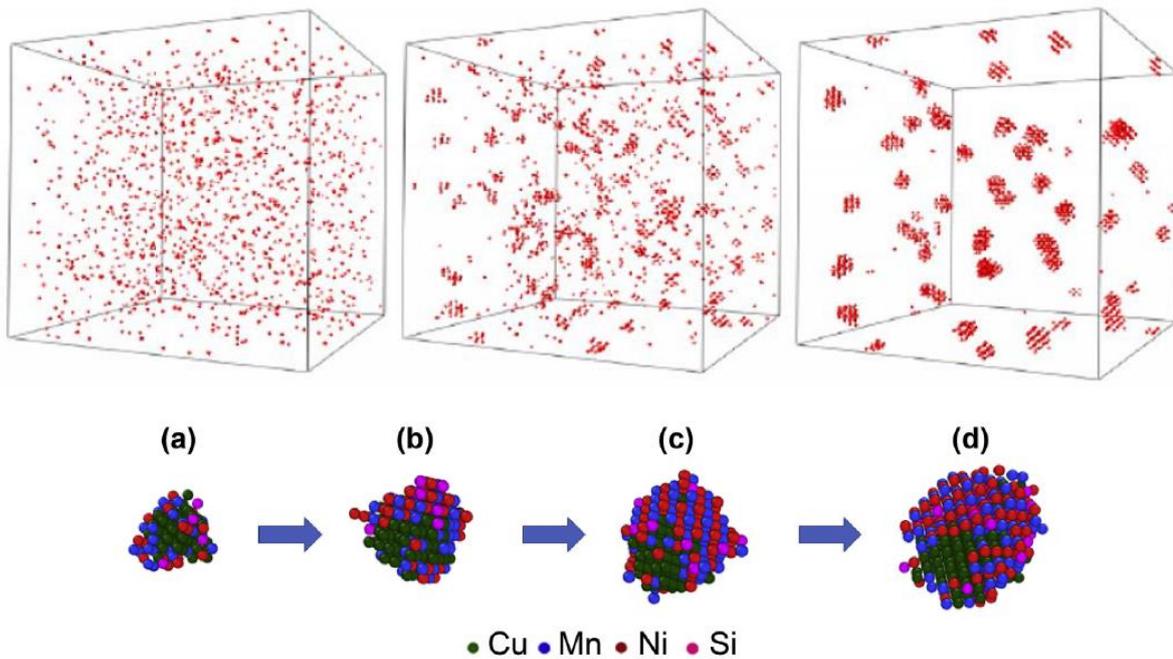


Fig. 28. Simulation Monte-Carlo KLMC : (en haut) de la précipitation du Cu dans un acier à 300°C ; (en bas) de l'évolution d'un précipité MnNiSi à partir d'un amas Cu (R.G. Odette et al.)⁵⁰.

- **Simulation numérique prévisionnelle de la fragilisation des aciers sous irradiation**

Les dernières mesures de l'augmentation de limite d'élasticité $\Delta\sigma_y$ et de la température de transition ductile-fragile ΔT_{TDF} des aciers faiblement alliés de toutes compositions en solutés aux fluences élevées ($4.10^{19} \text{ n/cm}^2 < \phi_t < 14.10^{19} \text{ n/cm}^2$) sous flux neutronique élevé révèlent une *augmentation linéaire en fonction de la fluence*, très au-dessus des valeurs prévues par les anciens modèles semi-expérimentaux EONY⁵² (Eason, Odette, Nanstad, Yamamoto) et E900⁵³ de l'ASTM (American Section of the International Association for Testing Materials) de 2007 (Fig. 29) qui s'appuyaient sur les modèles traditionnels de croissance de $\Delta\sigma_y$ et $\Delta T_{TDF} \propto \phi_t^{0.5}$

⁵¹ M. Mamivand et al., *CuMnNiSi precipitate evolution in irradiated reactor pressure vessel steels: Integrated Cluster Dynamics and experiments*, Acta Materialia 180 (2019) 199-217.

⁵² R.K. Nanstad, G.R. Odette, R.E. Stoller, T. Yamamoto, *A Physically Based Correlation of Irradiation-Induced Transition Temperature Shifts for RPV Steels*, Review of Draft NUREG Report on Technical Basis for Revision of Regulatory Guide 1.99, Oak Ridge National Laboratory ORNL/NRC/LTR-08/03, March 2008.

⁵³ E900-15, *Standard Guide for Predicting Radiation-Induced Transition Temperature Shift in Reactor Vessel Materials*, ASTM, 2015.

proportionnelle à la racine carrée de la fluence. Elles montrent également que *l'intensité du flux neutronique ϕ n'a pas ou peu d'influence sur le phénomène ; il concerne donc aussi tous les réacteurs nucléaires en service de type REP (réacteurs à eau pressurisée) et REB (réacteurs à eau bouillante)*.

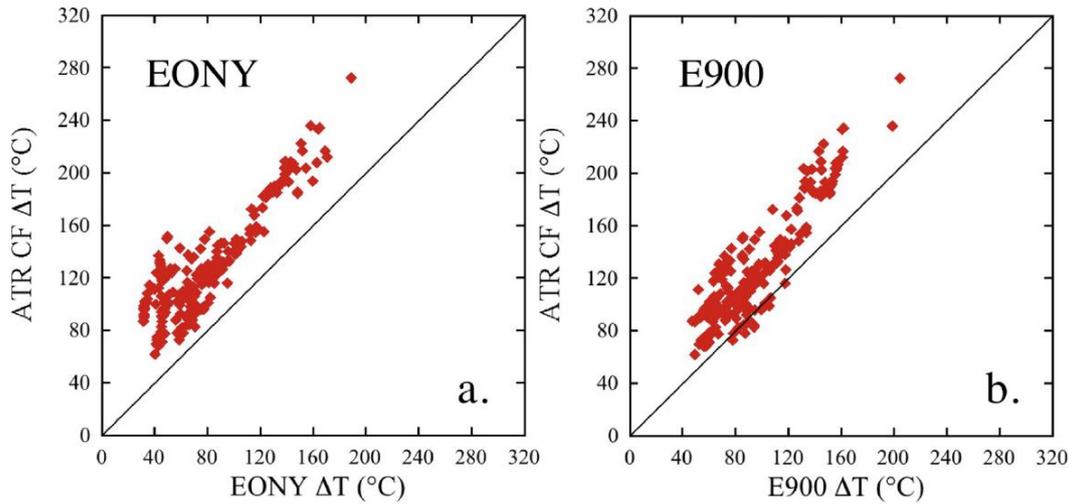


Fig. 29. Comparaison mesures ΔT_{TDF} – modèles EONY et E900 aux fluences élevées sur divers aciers faiblement alliés (G.R. Odette et al.)⁵⁰.

Cette augmentation linéaire est tout à fait consistante avec les derniers modèles de vieillissement sous irradiation SMF-Avrami qui prennent bien en compte les mécanismes de croissance retardée des phases de solutés LBP (*late blooming phases*) précipitant sur les différents pièges de la matrice (SMF, *solute matrix features*).

Par ailleurs, la limite d'élasticité $\Delta\sigma_y$ augmente quasi-linéairement avec la teneur en phosphore aux fluences élevées ($10^{19} \text{ n/cm}^2 < \phi_t < 9.10^{19} \text{ n/cm}^2$), indépendamment de la teneur en cuivre⁵⁴.

2.3 Transition ductile-fragile

L'irradiation des aciers conduit à une modification profonde de la courbe de *résilience* des aciers, ce qui traduit *l'affaiblissement de leur résistance aux chocs*, d'autant plus important que la fluence est élevée, particulièrement pour les aciers faiblement alliés. L'irradiation abaisse fortement la courbe de transition ductile-fragile de résilience de l'acier aux températures élevées (palier ductile) et la décale fortement vers les hautes températures, ce qui étend le domaine fragile aux températures élevées, conduisant à l'élévation de la $T_{TDF} \Delta T_c$ (Fig. 30). Elle décale également la courbe de *ténacité* de l'acier vers les hautes températures, ce qui traduit un *affaiblissement de la résistance des aciers irradiés à la propagation des fissures*.

⁵⁴ R. Chaoudi, *Neutron irradiation hardening of chemically-tailored RPV steels with respect to Cu/P and Ni/Mn elements*, Journal of Nuclear Materials 519 (2019) 188-204.

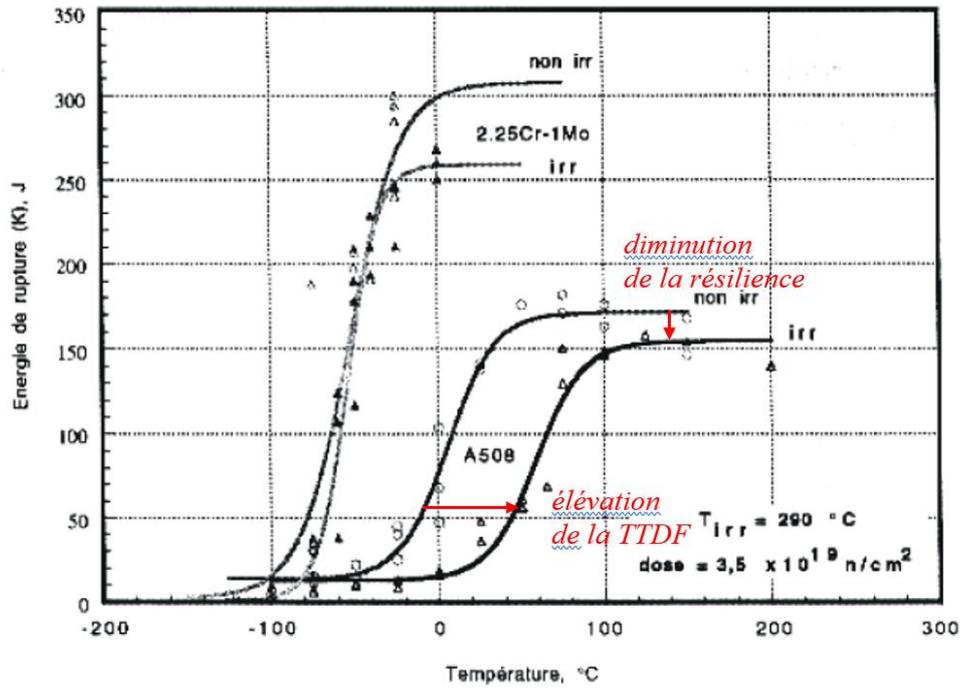


Fig. 30. Effet de l'irradiation sur la résilience de l'acier A508 (d'après J. Ruste, 2013)⁵⁵.

Cette élévation de la température de transition ductile-fragile des aciers avec la fluence ϕ_t ou avec la fluence effective ϕ_{te} est directement liée à celle de la limite d'élasticité par une loi quasi-linéaire de la forme $\Delta T_c(\phi_t) = C_c \Delta \sigma_y(\phi_t)$ basée sur un modèle micromécanique⁵⁶, dont il s'avère qu'il est bien adapté au cas des fluences élevées (Fig. 31).

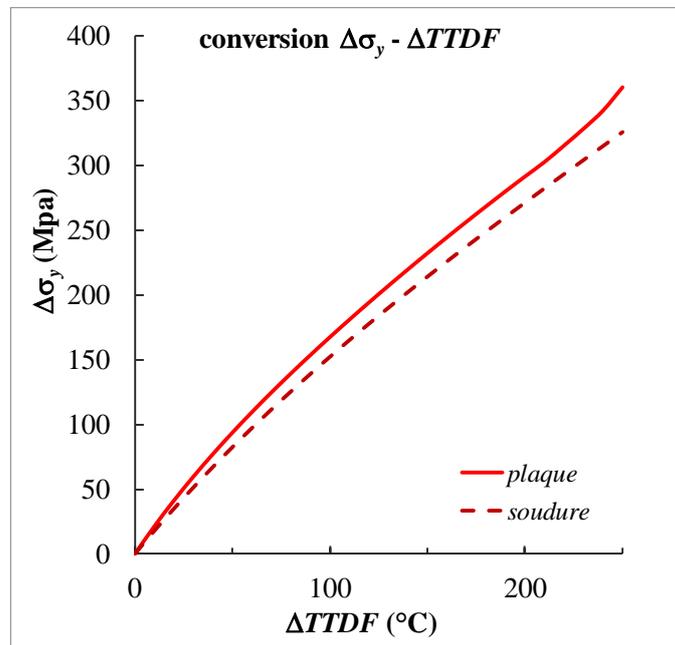


Fig. 31. Conversion de l'élévation de la limite d'élasticité en élévation de température de transition ductile-fragile des aciers faiblement alliés irradiés (d'après G.R. Odette).

⁵⁵ J. Ruste, *Microstructure et comportement mécanique - Introduction à la mécanique de la rupture*, 2013.

⁵⁶ ONRL (G.R. Odette et al.), *Light Water Reactor Sustainability Program - A Reduced Order Low Flux-High Fluence RPV Steel Irradiation Induced Transition Temperature Shift Prediction Model*, UCSB ATR-2 2019-1, Sept. 2019.

Les courbes d'élévation $\Delta T T D F$ (φ_t ou φ_{te}) résultant des mesures effectuées sur les aciers faiblement alliés fortement irradiés à des fluences au-dessus de 6.10^{19} n/cm² présentent effectivement une forme linéaire, proportionnelle à φ_t , alors qu'elles sont plutôt proportionnelles à $\varphi_t^{1/2}$ aux fluences inférieures à 6.10^{19} n/cm².

Elles s'écartent donc notablement des courbes de prévision empiriques élaborées en France lors du *programme de surveillance de l'irradiation* (PSI) des réacteurs nucléaires (Fig. 32), obtenues à partir des éprouvettes retirées des réacteurs REP à l'occasion des visites décennales⁵⁷ pour conduire à des *formules sous irradiation supérieure* (FIS) censées fournir la limite supérieure possible de l'élévation de la TTDF ($\Delta R T_{N D T}$) en fonction de la fluence et de la composition chimique de l'acier, obtenues à partir des mesures de ténacité $K_{J C}$. L'IRSN avait d'ailleurs noté en 2006 : « Lorsque les fragilisations mesurées sont comparées avec les fragilisations prévisionnelles, l'IRSN a constaté que les cas de dépassement correspondent principalement aux fragilisations prévisionnelles les plus grandes. Ceci semble indiquer que le caractère enveloppe de la formule prévisionnelle s'altère au fur et à mesure que la fluence augmente. (...) Au-delà d'une fluence de 7.10^{19} n/cm², les formules de prévision n'apparaissent plus comme enveloppes ».

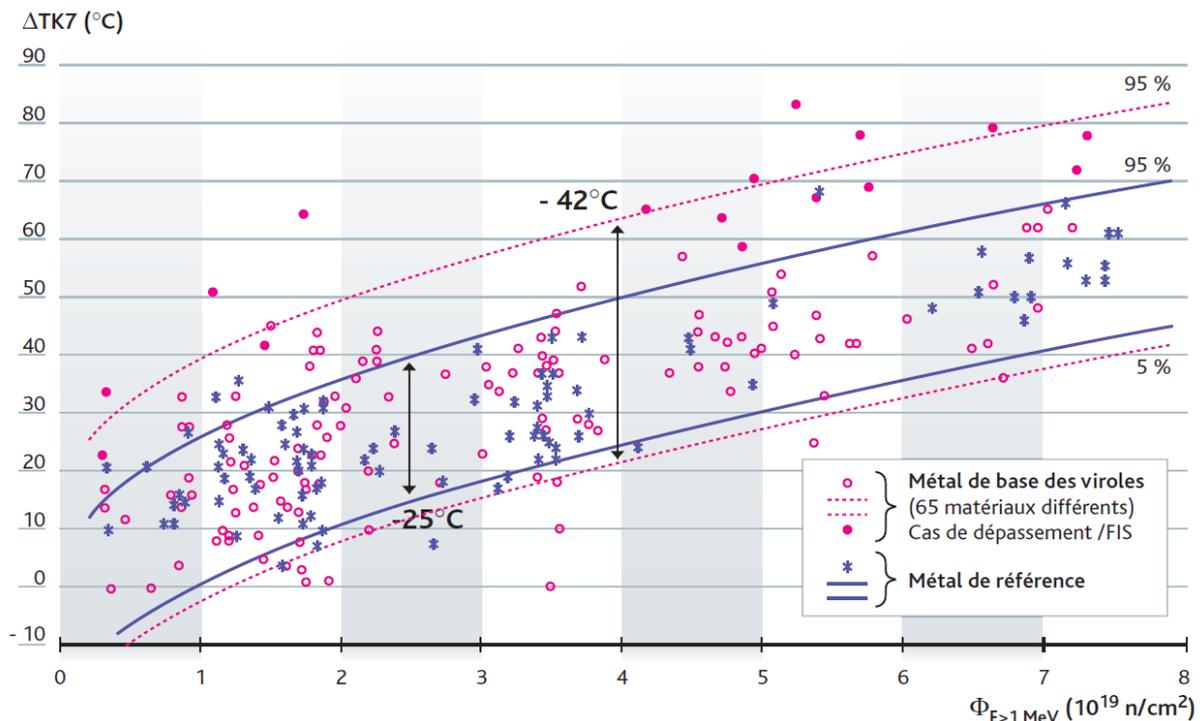


Fig. 32. Fragilisations mesurées lors du programme PSI, acier 16MND5, viroles 900 MW (EDF).

De fait, la formule FIS a dû être modifiée plusieurs fois pour tenir compte des recommandations de l'IRSN, et l'exposant m de la loi de puissance $\Delta R T_{N D T} = f(C_P, C_{Cu}, C_{Ni}) \times \varphi_t^m$ est ainsi passé de $m = 0,35$ à $m = 0,59$ pour l'acier 16MND5 des viroles (neutrons > 1 MeV) :

$$\Delta R T_{N D T} = A [1 + 35,7 (C_P - 0,008)_+ + 6,6 (C_{Cu} - 0,08)_+ + 5,8 C_{Ni}^2 C_{Cu}] (\varphi_t / 10^{19})^{0,59}$$

avec $A = 15,4$ pour les viroles et $A = 15,8$ pour les soudures, φ_t étant en n/cm².

Le résultat correspondant (Fig. 33, courbes noires), basé sur un calcul d'ajustement statistique, s'il apparaît mieux adapté aux faibles fluences ($\varphi_t < 6.10^{19}$ n/cm²) que celui de la Fig. 34,

⁵⁷ B. Monnot, *Le vieillissement sous irradiation des cuves de réacteurs nucléaires à eau sous pression*, Développement des méthodes, études sur la sûreté et la sécurité des exploitations, IRSN, Rapport technique, 2006. *Sûreté, démantèlement, prolongation de fonctionnement des réacteurs nucléaires et transition énergétique* (extraits), Pr T. de Laroche Lambert 30/44

ne semble toutefois pas suivre correctement les accroissements plus rapides de ΔRT_{NDT} observables aux plus fortes irradiations, pour lesquels une loi d'accroissement linéaire semblerait plus fidèle pour $\varphi_t > 6.10^{19} \text{ n/cm}^2$ (Fig. 33, courbes vertes), comme le suggère l'ONRL.

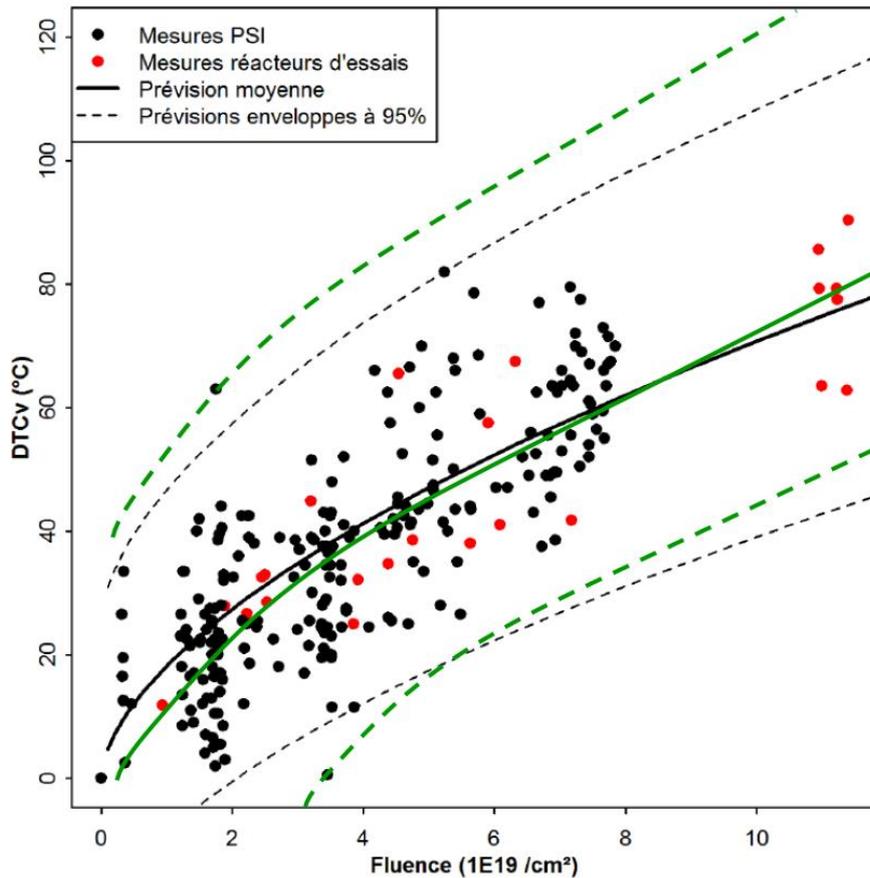


Fig. 33. Modification de la formule d'irradiation supérieure (d'après H. Chirier-Bossenec et al.)⁵⁸.

Les mesures de résilience et de ténacité effectuées par EDF sur éprouvettes de capsules insérées dans le petit réacteur REP Chooz A de 305 MW (actuellement en cours de démantèlement) suggèrent d'ailleurs assez nettement une telle loi linéaire aux hautes fluences (Fig. 34).

⁵⁸ H.Churier-Bossenec, *Le vieillissement sous irradiation de l'acier de cuve*, SFEN, Science et Technologie des Matériaux, CND, Chimie, L'irradiation dans les matériaux des réacteurs nucléaires, 2011.

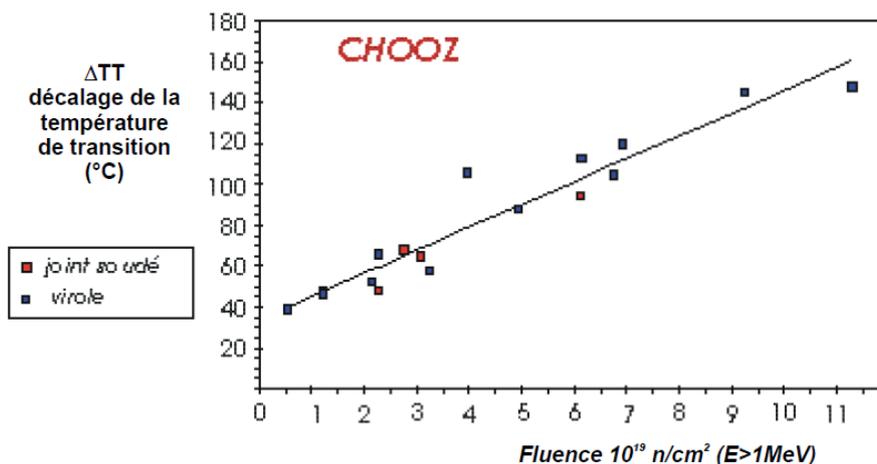


Fig. 34. Elévation de la TTDf aux fluences élevées (mesures cuve 305 MW Chooz A, J. Ruste 2013).

La fluence prévisible atteinte par les aciers des cuves REP au bout de 40 ans de fonctionnement étant de l'ordre de $6,5 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$, l'analyse des courbes PSI a conduit l'IRSN à considérer que la température de transition ductile-fragile peut atteindre 40°C à 80°C dans les parties les plus irradiées des viroles de cuves 900 MW après 40 ans (cf. réf 57). Elle pourrait en outre dépasser largement ces valeurs dans les *veines sombres* en face interne des cuves, beaucoup plus ségréguées en solutés additifs comme le phosphore, le cuivre, le manganèse ou le silicium (cf. section 2.1). De plus, la confiance accordée par les chercheurs eux-mêmes aux mesures de la fluence reçue par les éprouvettes dans les capsules et de la représentativité de celles-ci sur le futur vieillissement des aciers de cuve est assez relative, compte tenu des masques possibles produits par les supports internes et des emplacements choisis (et parfois modifiés lors des visites décennales) pour les capsules disposées autour des cœurs des réacteurs.

2.4 Premières conclusions

Les nouveaux résultats des études expérimentales les plus récentes du vieillissement sous forte irradiation des aciers faiblement alliés, obtenus au moyen des techniques micro- et nanoscopiques les plus performantes, montrent une fragilisation supérieure à celle que prévoient les actuelles formules prévisionnelles utilisées pour évaluer la tenue des réacteurs nucléaires 900 MW au-delà de 40 ans de service, dont les cuves sont davantage irradiées que celles des réacteurs 1300 et 1450 MW du fait de leur plus grand diamètre. La température de transition ductile-fragile en particulier présente une loi d'augmentation linéaire avec la fluence neutronique aux grandes fluences, révélant une fragilisation plus grande que prévue de ces aciers au-delà de $6,5 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$.

Ces résultats sont largement confirmés par les modèles physiques de vieillissement sous irradiation des aciers qui montrent l'importance du phénomène de croissance lente irrémédiable des précipités de solutés au sein de la matrice ces aciers (LBP, *late blooming phases*), qui accélère aux grandes fluences et accroissent fortement la fragilisation des aciers, particulièrement les aciers faiblement alliés.

Il en résulte une *interrogation sur la résistance mécanique des aciers de cuve*, et plus particulièrement des viroles et joints de viroles, mais aussi des couvercles, des internes, des boulons de cuve et des buses de conduits primaires soudés aux viroles, en cas de prolongation de service des réacteurs 900 MW au-delà de 40 ans.

Sachant que les doses d'irradiation peuvent induire des déplacements par atomes *en moyenne* entre 0,1 dpa dans l'acier des cuves et jusqu'à 120 dpa dans l'acier des internes de cuve, cette

interrogation ne peut qu'inciter à la prudence, comme le souligne G.R. Odette lui-même : « même lorsqu'ils sont très précis et fiables, les modèles ΔT prédictifs ne sont qu'une partie du processus multidisciplinaire d'évaluation de l'intégrité des cuves de réacteurs nucléaires, qui comprend maintenant de puissants outils de propagation statistique des incertitudes, *ainsi qu'un jugement technique prudent concernant les marges de sécurité appropriées. Il est donc important que les implications des nouveaux résultats, présentés dans ce document, soient soigneusement examinées dans ce cadre bien établi* »⁵⁹.

3. LES RISQUES DE RUPTURE BRUTALE PAR CHOC FROID SOUS PRESSION

L'élévation de la TTDF des aciers induits par l'irradiation résulte à la fois du *durcissement accru* (augmentation de la limite d'élasticité σ_y) et de l'*accroissement de la fragilisation* (abaissement de la contrainte de clivage du fait des ségrégations aux joints des grains, en particulier celle du phosphore) par décohésion intergranulaire (Fig. 35).

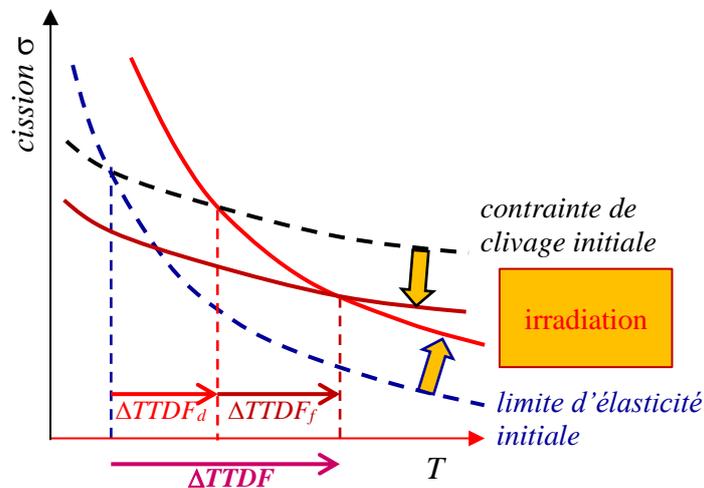


Fig. 35. Élévation totale de la TTDF d'un acier par irradiation.

Le vieillissement thermique des aciers des cuves nucléaires lors des *cycles de suivi de charge*, des *séquences d'arrêt-démarrage* tout au long de la durée de service d'un réacteur s'ajoute au vieillissement dû à l'irradiation, particulièrement en présence de fissures préexistantes en parois internes de cuve (DSR, défauts sous revêtement inox) ou aux joints des buses primaires⁶⁰.

La microstructure de l'acier lui-même est un facteur supplémentaire pouvant aggraver le vieillissement : la *martensite* est par exemple plus résiliente que la *bainite* et beaucoup plus sensible au vieillissement thermique, mais elle durcit moins sous irradiation que la bainite⁶¹.

⁵⁹ G.R. Odette et al., *On the history and status of reactor pressure vessel steel ductile to brittle transition temperature shift prediction models*, Journal of Nuclear Materials 526 (2019) 151863.

⁶⁰ S. Mohanty et al., *Thermal-mechanical stress analysis of pressurized water reactor pressure vessel with/without a preexisting crack under grid load following conditions*, Nuclear Engineering and Design 310 (2016) 112–124.

⁶¹ B. Marini et al., *Effect of the bainitic and martensitic microstructures on the hardening and embrittlement under neutron irradiation of a reactor pressure vessel steel*, Journal of Nuclear Materials 465 (2015) 20-27.

3.1 Rupture brutale des cuves nucléaires 900 MW

Choc froid sous pression

Pendant le fonctionnement d'un réacteur, il est impératif que l'acier de cuve reste dans le *domaine ductile* à droite de la courbe de ténacité $K_{IC}(T)$ en fonction du chargement mécanique imposé par la pression (la pression de service est de 155 bar) et de la température à laquelle est soumis l'acier (la température de service entrée-sortie de cuve est comprise entre 290 et 352°C).

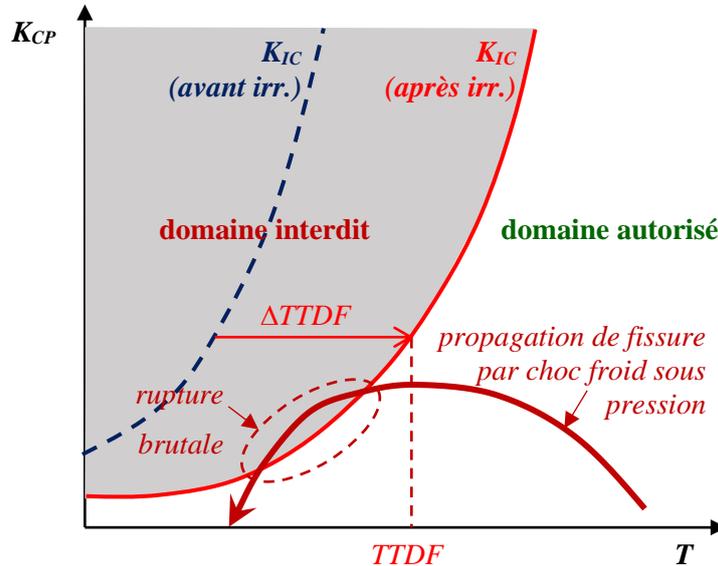


Fig. 36. *Domaine de sûreté mécano-thermique d'une cuve REP.*

Si, à la suite d'un incident (perte d'eau par rupture de canalisation primaire, blocage de pompe primaire, blocage de barres de contrôle en position éjection du cœur, etc.), le réacteur est refroidi par injection de sécurité d'eau froide dans le retour primaire près de la cuve : la cuve et le conduit primaire subissent alors un transitoire brusque de refroidissement sous pression (**choc froid sous pression**) pouvant conduire l'acier de cuve à sortir du domaine ductile et à pénétrer dans le domaine fragile si le facteur d'intensité des contraintes K_{CP} à l'endroit d'une fissure préexistante de taille minimale dépasse la ténacité $K_{IC}(T)$ de l'acier (Fig. 36). Il y a alors propagation de la fissure illimitée jusqu'à **rupture brutale de la cuve**. Certains calculs montrent que cette situation pourrait effectivement survenir après 40 ans de vieillissement ($\phi_t > 6,5 \cdot 10^{19}$ n/cm²) pour une fissure de 6 à 9 mm de long, bien inférieure à la longueur d'une fissure de référence (quart de l'épaisseur de cuve), compte tenu de la fragilisation accrue aux joints soudés des viroles, de la présence de veines sombres, des défauts sous revêtement et de la non prise en compte des neutrons d'énergie inférieure à 1 MeV et des électrons β^- dont l'impact sur le vieillissement est pourtant réel.

Le risque d'accident majeur

La température de transition ductile-fragile pourrait en effet avoir déjà atteint par endroit 40 à 80°C, voire davantage, ce qui se traduit localement par un très grand décalage de la courbe de ténacité (Fig. 36), restreignant le domaine de fonctionnement (P, T) du réacteur particulièrement étroit : toute situation accidentelle pouvant entraîner un rapide refroidissement du cœur sous pression devient incontrôlable et conduit les fissures à se propager et devenir débouchantes.

La cuve se brise irréversiblement, l'eau de refroidissement primaire fuit massivement dans le puits de cuve, les barres de combustibles ne sont plus refroidies (dénoyage du cœur) et s'échauffent plus ou moins rapidement selon la position des barres de contrôle absorbant les

neutrons, se déforment, se fissurent et s'oxydent, avec production d'hydrogène (*risque d'explosion hydrogène* de type Fukushima). La température du cœur nucléaire dépasse la température de fusion des gaines de zircaloy (1850°C). Il y a alors fusion du cœur qui s'écoule et forme un magma (*corium*) pouvant dépasser 3000°C qui perce très rapidement la cuve en 1 à 3h et attaque le *radier* (socle en béton sous la cuve) : *c'est l'accident majeur*.⁶²

Suivant son épaisseur (1,5 m à 4 m), le radier peut être percé en quelques heures (14h à 49h) et le corium peut entrer en contact avec le sol et la nappe phréatique sous-jacente.

Prévention du risque de rupture par choc froid sous pression

Du fait du vieillissement des réacteurs nucléaires 900 MW en France, dont une grande partie a atteint (Fessenheim) ou va atteindre une durée de service correspondant à la fluence ϕ_t maximale de $6,5 \cdot 10^{19}$ n/cm² considérée à juste titre comme un seuil limite de sûreté pour le vieillissement sous irradiation (cf. section 2.2), l'IRSN et l'ASN préconisent le *relèvement de la température de l'eau d'injection de sécurité* du réservoir PTR d'eau borée de +3 à +20°C selon l'état et l'âge des réacteurs⁶³.

L'état des équipements de régulation et de commande est crucial pour la *prévention des transitoires pénalisants*, que ce soit pour la cuve ou pour les autres équipements des circuits primaires et secondaires (pressuriseurs, générateurs de vapeur, vannes, soupapes, équipements électriques et électroniques, etc.). L'IRSN et l'ASN adressent régulièrement à l'exploitant EDF des centrales nucléaires des recommandations à cet égard, pouvant aller jusqu'à des démonstrations de simulation numérique de situations pénalisantes⁶⁴.

Le *suivi de charge* du réseau électrique impliquant de nombreuses variations de pression et de température pendant les modulations de puissance des réacteurs, il est essentiel de l'éliminer totalement ou de le réduire au strict minimum nécessaire pour les réacteurs en âge d'atteindre la fluence limite avant les VD4 (quatrième visites décennales), et de manière préventive à partir des VD3. À cet égard, les anciennes études menées sur le suivi de charge des réacteurs par différents constructeurs nucléaires^{65, 66} et les recommandations de l'OECD-NEA⁶⁷ paraissent particulièrement optimistes, au vu des derniers résultats de recherche sur le vieillissement thermique sous irradiation présentés plus haut (cf. section 2.2).

Divers travaux de recherche internationaux tentent de simuler au mieux l'impact d'un choc froid sous pression par des méthodes déterministes et probabilistes, de manière à mieux pouvoir les anticiper et les prévenir en termes de conduite de pilotage et de surveillance de fragilisation. Ils soulignent l'*écart de représentativité des éprouvettes Charpy par rapport à l'état réel du matériau de la cuve*⁶⁸ pour l'estimation de l'élévation de la température de transition ductile-fragile ΔRT_{NDT} , et recommandent l'utilisation de la *méthode Master Curve*, basée sur la théorie du maillon le plus faible, pour calculer la distribution de la ténacité K_{JC} à chaque température

⁶² Jacquemain, Les accidents de fusion du cœur des réacteurs nucléaires de puissance. État des connaissances, IRSN, EDP Sciences 2013.

⁶³ Lettre d'EDF du 1 juillet 2010 à l'ASN, en réponse aux recommandations du GPESPN du 10 juin 2010.

⁶⁴ Avis IRSN n°2019-00221, *Poursuite de l'exploitation des réacteurs de 900 MWe jusqu'à la VD4+10 ans. Instruction du dossier cuve - viroles de cœur*, octobre 2019.

⁶⁵ C. Cany et al., *Nuclear power supply: Going against the misconceptions. Evidence of nuclear flexibility from the French experience*, Energy 151 (2018) 289-296.

⁶⁶ ATW, H. Ludwig et al., *Load cycling capabilities of German Nuclear Power Plants (NPP)*, International Journal of Nuclear Power 55 (2010).

⁶⁷ OECD-NEA, *Technical and Economical Aspects of Load Following with Nuclear Power Plants*, juin 2011.

⁶⁸ G.Qian, M. Niffenegger, *Procedures, methods and computer codes for the probabilistic assessment of reactor pressure vessels subjected to pressurized thermal shocks*, Nuclear Engineering and Design 258 (2013) 35-50.

par une distribution de Weibull à trois paramètres (ASTM, 1997)⁶⁹. Ils recommandent également de poursuivre le *développement du code ouvert de simulation FAVOR* et la *constitution d'une base de données des fissures pour une centrale électrique spécifique ou générale*.

Une évaluation récente⁷⁰ de simulation de l'intégrité d'un REP soumis à un transitoire de choc froid sous pression (PTS, *pressure thermal shock*) permet de comparer les codes de calcul français RCC-M et RSE-M – qui n'appliquent pas de « *critère de sélection* » pour la *fragilisation maximale admissible du matériau* et utilisent une *approche déterministe des mécanismes de rupture* – aux codes FAVOR et ASME (américain) qui développent ce critère sur la base d'un calcul *probabiliste* du mécanisme de la rupture. Les résultats montrent que la méthode du code RCC-M, qui tient compte de l'influence du revêtement de cuve sur le *facteur d'intensité des contraintes* (SIF en anglais), peut être *non-conservative* et ne pas représenter correctement la séquence du PTS. Le SIF peut même presque doubler si l'on tient compte de la contrainte résiduelle des soudures. Les auteurs concluent que les approches méthodologiques des codes diffèrent sur de nombreux aspects, ce qui peut entraîner des différences importantes dans les résultats de l'évaluation de chocs froids sous pression ou d'autres situations. Par conséquent, l'homogénéisation des codes devrait être entreprise si la durée d'exploitation des centrales nucléaires devait être allongée.

Fermetures des réacteurs 900 MW

Compte tenu du contexte mondial, européen et français lié au dérèglement climatique, à la maturité et la compétitivité des énergies renouvelables, à la mise en place des futurs systèmes énergétiques renouvelables intelligents, aux contraintes et coûts croissants de l'électricité nucléaire, *la question se pose de la fermeture des réacteurs nucléaires les plus âgés lorsque leur vieillissement thermique sous irradiation (caractérisés par la fluence des cuves et les déplacements par atomes des zones irradiées) atteint les limites évoquées en section 2.2*. Cette question est abordée plus loin (*cf.* section 4).

Dans le passé, plusieurs réacteurs ont ainsi dû être définitivement arrêtés puis démantelés⁷¹ :

- réacteur de Yankee Rowe (USA), définitivement fermé en 1992 après 31 ans de fonctionnement ; c'était par ailleurs le 1^{er} réacteur nord-américain pour lequel une demande de prolongation de licence de 40 à 60 ans avait été déposée. L'enquête de sécurité avait révélé qu'une soudure de la cuve avait déjà atteint un stade critique de fragilisation ;
- centrale de Stade (Allemagne), arrêtée définitivement en novembre 2003 après moins de 32 ans de fonctionnement (soudures de cuve particulièrement fragilisées par un taux élevé de soluté de cuivre) ;
- réacteur à eau bouillante de Würgassen (Allemagne) arrêté définitivement en mai 1995 après moins de 24 ans de fonctionnement (graves fissures dans l'enveloppe du cœur).

⁶⁹ ASTM-E1921-02, *Test Method for Determination of Reference Temperature, T₀, for Ferritic Steels in the Transition Range*, 1997.

⁷⁰ M. Chen et al, *Application of the French Codes to the Pressurized Thermal Shocks Assessment*, Nuclear Engineering and Technology 48 (2016) 1423-1432.

⁷¹ *Vieillissement des centrales nucléaires et sécurité. Les dangers de la prolongation de la durée de vie des réacteurs belges*, Rapport Amis de la Terre, Bond Beter Leefmilieu, Greenpeace, Inter-Environnement Wallonie, Voor Moeder Aarde et WWF, octobre 2006.

3.2 Rupture brutale des générateurs de vapeur

Écarts de fabrication lors du traitement thermique de détensionnement

Les écarts de fabrication récents concernant le traitement thermique de détensionnement – appliqué depuis 2008 par Framatome aux joints soudés réalisés lors de l’assemblage des viroles de nombreux générateurs de vapeur et d’un pressuriseur qui ont été installés sur plusieurs réacteurs nucléaires – résultent d’une mauvaise procédure de chauffage de ces gros équipements après fabrication pour relâcher les contraintes générées dans les aciers par le soudage des joints de viroles. Pour l’acier des viroles de générateur de vapeur, les règles de conception et de construction des matériels mécaniques des îlots nucléaires REP (RCC-M⁷², édité par l’AFCEN) fixent la plage de réalisation de ce traitement thermique entre 595 °C et 620 °C. L’économie de moyens appliquée par le fabricant en utilisant des mouffles chauffants inefficaces plutôt qu’un four à induction a produit des *inhomogénéités de température* et des *dépassements de la plage des températures supérieures et inférieures*, conduisant à une diminution des marges de contraintes en cas de choc froid sous pression et à une diminution de la limite d’élasticité, de la résistance à la traction et de la ténacité du matériau.

Elles ont fait l’objet d’investigation de l’ASN et de l’IRSN qui ont conclu à leur validation. Cependant, la tenue mécanique lors de transitoires thermiques sous pression pouvant survenir dans ces équipements pourrait ne pas être garantie après vieillissement thermique. Il est possible que le vieillissement beaucoup plus élevé des cuves ait relativisé l’appréciation du risque de rupture de ces équipements, mais il n’en reste pas moins que la plus grande rigueur devrait être exigée de l’ensemble de l’industrie nucléaire, au regard des risques que représente l’utilisation de l’énergie nucléaire.

Ségrégations carbone dans les générateurs de vapeur

L’excès de carbone (jusqu’à 0,39%) par rapport aux spécifications, découvert fin 2014 dans l’acier au centre du couvercle et en fond de cuve du *réacteur EPR de Flamanville* après fabrication par Creusot Forge, découlait à la fois du choix technique effectué et d’un défaut de qualification du procédé de fabrication, conduisant à l’abaissement de la ténacité et de la RT_{NDT} , et au risque de rupture brutale par choc froid sous pression si l’EPR est mis en service un jour^{73, 74}.

D’autres anomalies de fabrication ayant été découvertes par la suite, l’ASN a demandé en 2015 au fabricant Areva-NP de procéder à une revue complète de la qualité des pièces produites à l’usine du Creusot, qui a mis en évidence 87 *irrégularités* portant sur les réacteurs en fonctionnement d’EDF, 20 concernant des équipements du réacteur EPR de Flamanville, 1 affectant un générateur de vapeur non encore installé et 4 relatives à des emballages de transport de substances radioactives. Elle a révélé également des dysfonctionnements et des infractions aux règles de sécurité couvrant de nombreuses *anomalies* dans des « dossiers barrés » et des « dossiers non barrés », dont des soupçons de *non-conformité de fabrication* et de *ségrégation carbone dans les fonds primaires de 46 générateurs de vapeur*, dont les nouveaux GV du réacteur nucléaire n°1 de Fessenheim fabriqués au Japon, entraînant l’arrêt de 12 réacteurs pendant plusieurs mois. Après examens non destructifs par EDF, l’ASN autorisera leur redémarrage les uns

⁷² C. Baylac, *The French code RCC-M: Design and construction rules for the mechanical components of PWR nuclear islands*, Nuclear Engineering and Design 129 (1991) 239-254.

⁷³ IRSN, Note d’information, *Parc nucléaire d’EDF en fonctionnement : anomalies et irrégularités constatées lors des investigations consécutives à l’anomalie concernant les calottes de la cuve du réacteur EPR de Flamanville*, octobre 2016.

⁷⁴ Rapport ASN référencé CODEP-DEP-2017-019368 - Rapport IRSN/2017-00011, Analyse des conséquences de l’anomalie des calottes de la cuve du réacteur EPR de Flamanville sur leur aptitude au service, Rapport présenté au GPESPN, 26 et 27 juin 2017.

après les autres, dont celui de Fessenheim 1 en décembre 2016 comme plusieurs autres réacteurs en *mode compensatoire* (fonctionnement dégradé) :

- prévention des chocs thermiques
- réduction des vitesses de refroidissement/réchauffement de 55°C/h à 14°C/h
- limitation à 15°C de l'écart des températures de l'eau d'injection aux joints des GMPP (groupes motopompes primaires) et du refoulement de RRA (refroidissement réacteur à l'arrêt) si les pompes primaires sont arrêtées.

3.3 Le cas du générateur de vapeur 335 de Fessenheim 2

• *Rappels*

Le cas de l'anomalie de fabrication du générateur de vapeur (GV) n°3 équipant le réacteur n°2 de Fessenheim est différent et révélateur des questions qui touchent à la sûreté des composants, car il résulte d'une décision erronée du fabricant Creusot Forge en 2008 qui a décidé de ne pas éliminer l'extrémité (masselotte) de la *virole basse* 335 (cf. Fig. 37) par chutage comme il se devait, la longueur de pièce étant insuffisante à l'issue des premières opérations de forgeage. Or, la plus grande partie de la masselotte (350 mm sur 500 au total), toujours présente dans la virole VB 335 du GV 3 de Fessenheim 2, aurait dû être éliminée car son acier contient des éléments additionnels (« impuretés ») en trop grandes concentrations, ce qui abaisse notablement ses propriétés de résilience, d'élasticité et de ténacité.

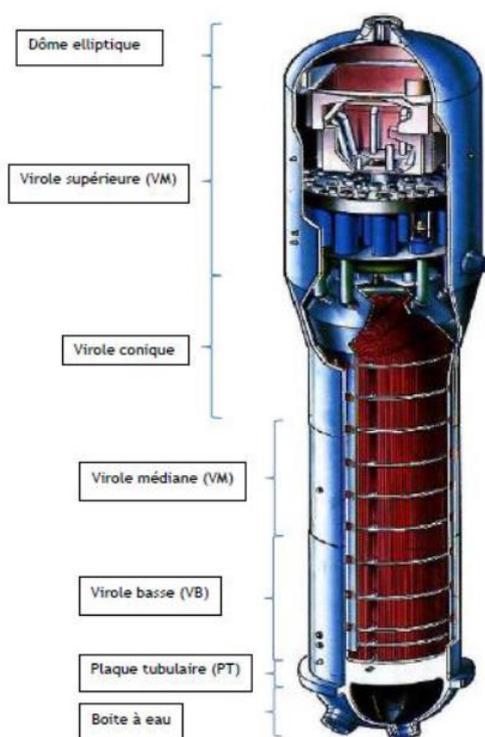


Fig. 37. Coupe d'un générateur de vapeur (source ASN).

Après découverte de l'anomalie, EDF a arrêté le réacteur 2 le 13 juin 2016 et l'ASN a suspendu le certificat d'épreuve du générateur de vapeur le 18 juillet 2016, maintenant le réacteur 2 à l'arrêt. Après près de deux ans d'essais non destructifs et d'analyses sur deux viroles sacrificielles fabriquées par après avec le même acier, et malgré des conclusions pourtant critiques et des demandes complémentaires de l'IRSN dans ses rapports de janvier 2018, l'ASN a levé très opportunément la suspension du certificat d'épreuve du GV 335 le 12 mars 2018, avant le

délai fatidique des deux ans d'arrêt entraînant réglementairement la mise à l'arrêt définitive d'une installation nucléaire⁷⁵.

• **Analyse du risque de rupture brutale par choc froid sous pression du GV 335**

Dans son avis IRSN /2018-00011 du 18 janvier 2018⁷⁶, l'IRSN analyse la validité des examens réalisés par Areva et EDF sur les viroles sacrificielles B et C coulées et forgées par Areva dans des conditions similaires à la virole basse VB335 originale. Elle émet les constats suivants :

- 1) « *la teneur en carbone varie significativement le long de la circonférence des viroles sacrificielles, ainsi que d'une virole à l'autre* » ; « *les données recueillies ne permettent donc pas d'apprécier la variabilité de propriétés entre les pièces forgées. La connaissance des propriétés mécaniques de la zone macro-ségrégée en tête des lingots creux [est] par ailleurs très faible* » ;
- 2) un doute subsistait après sa fabrication par Creusot Forge sur l'orientation tête-pied de la virole basse VB335 soudée dans le GV 335, qu'il a fallu lever après examen attentif des documents fournis par le fabricant, lui-même hésitant sur l'orientation de la pièce, ce qui jette une lumière particulièrement crue sur le manque de rigueur dans la fabrication d'un composant nucléaire censé être **en exclusion de rupture** ;
- 3) « *l'IRSN relève l'observation de plusieurs cas de rupture intergranulaire à 0°C sur des éprouvettes de Charpy V (mesure de résilience) prélevées en zone ségrégée* », et « *un tel mode de rupture n'est pas attendu à 0°C sur les nuances 16-18 MND 5 pour des pièces à l'état non-irradié* ». Pour rappel, ce genre de défaut peut conduire à des ruptures de choc thermique sous pression dans des aciers pour lesquels la température de la transition ductile-fragile s'est élevée de 45°C après vieillissement thermique du fait-même des ségrégations carbone anormales (supérieures à 0,39% par endroit) ;
- 4) « *Areva NP n'[avait] déterminé la RTNDT en zone d'anomalie d'aucune des deux viroles sacrificielles* », ce qui paraît pour le moins négligeant. La différence entre les températures de transition fragile-ductile mesurées en zone en anomalie et en zone de recette sur des éprouvettes issues de viroles sacrificielle VB 335-B a par la suite été estimée par Areva NP à 45°C. À ce stade, étant donnés les écarts importants constatés dans les teneurs de carbone, de phosphore et de soufre entre les viroles sacrificielles VB 335-B et C, particulièrement dans les zones ségrégées (voir les sections 2 et 3 ci-dessous), **il est très prématuré de conclure d'une part à la représentativité de ces viroles vis-à-vis de la virole basse VB 335, d'autre part à la validation de la résistance à une rupture brutale de la VB 335 lors d'un choc froid sous pression.**

Dans son avis IRSN /2018-00011 du 18 janvier 2018⁷⁷, l'IRSN effectue l'analyse du risque de rupture brutale de la virole basse VB335 fournie par l'exploitant EDF. Les examens non destructifs (END) menés par EDF ayant montré que *la zone ségrégée en carbone est proche de la paroi interne et située dans la partie supérieure de la virole basse* (donc proche de la soudure de la virole médiane), *le risque de rupture brutale par choc thermique froid sous pression est plus grand* (« combinaison pénalisante »). EDF a donc effectué des simulations numériques par logiciel pour « *l'identification puis la caractérisation des transitoires thermo-hydrauliques de chocs froids pénalisants* ». L'IRSN fait les constats suivants :

⁷⁵ LTEPCV: « Art. L. 593-24.- Si une installation nucléaire de base cesse de fonctionner pendant une durée continue supérieure à deux ans, son arrêt est réputé définitif. »

⁷⁶ Avis IRSN/2018-00011, Virole basse 335 de Fessenheim 2 – Dossier de justification de la tenue en service - Examens non destructifs et caractérisation des matériaux, 18 janvier 2018.

⁷⁷ Avis IRSN/2018-00006, Virole basse 335 de Fessenheim 2 – Dossier de justification de la tenue en service., 9 janvier 2018.

- 1) « *l'IRSN considère que l'exhaustivité de la liste des situations prises en compte dans le dossier d'EDF n'est pas acquise* » ; effectivement, les situations pénalisantes d'une brusque et longue injection d'eau froide dans le tore noyé, et la même mais sous haute pression dans le tore dénoyé n'avaient pas été simulées ;
- 2) « *Afin d'augmenter les marges vis-à-vis du risque de rupture brutale, l'exploitant a proposé une mesure d'exploitation, qui consiste à assurer une température de l'eau du système ASG supérieure ou égale à 15°C, alors que les spécifications techniques d'exploitation (STE) prescrivent une température minimale de 7°C* ». Cette proposition de prévention, certes anticipatrice, traduit un manque de confiance de l'exploitant dans la tenue du GV335 ; elle pose aussi la question de la capacité de pouvoir faire face à une situation accidentelle nécessitant un refroidissement plus rapide du GV pour compenser une défaillance du circuit primaire ;
- 3) « *le logiciel [-] utilisé pour simuler le comportement thermohydraulique de la partie secondaire d'un GV via une modélisation monodimensionnelle [-] dispose de modèles spécifiques afin de représenter les conditions thermohydrauliques de la partie secondaire d'un GV. Au terme de son instruction, l'IRSN estime qu'il existe un certain nombre de lacunes dans la validation de ce logiciel. Notamment, certains des modèles physiques dominants du logiciel [-] n'ont pas pu être validés dans des conditions représentatives, ou dans des conditions dans lesquelles ces phénomènes seraient aussi isolés que possible les uns des autres. Par ailleurs, certains recalages de modèles sont réalisés sur un nombre de configurations restreint, sans assurance de leur transposabilité aux conditions thermohydrauliques rencontrées lors des différentes situations étudiées* ». En conséquence, « *le caractère enveloppe des gradients de température calculés par ce logiciel n'est donc pour l'IRSN pas établi* » et « *l'IRSN estime que la validation du logiciel ANETH n'est pas suffisamment complète pour statuer sur le caractère enveloppe de la caractérisation de certains transitoires de catégorie 2* » (baisse de pression et de température des circuits primaire et secondaire associée à l'arrêt du réacteur, avec diminution brutale de 30°C de la température du circuit primaire à l'état liquide). Il peut paraître en effet étonnant qu'un code de calcul présentant de telles limitations soit utilisé pour caractériser des situations thermiques et mécaniques aussi complexes que des zones de mélange vapeur-liquide à gradients élevés de température et de pression ; **il est plus surprenant encore que les simulations soient effectuées en représentation monodimensionnelle** alors qu'une virole est *a minima* un objet cylindrique bidimensionnel ; que l'apparition des contraintes et la propagation des fissures se font dans les trois dimensions de l'espace ; et que le matériau n'est précisément pas homogène, du fait de l'existence-même des ségrégations carbone ;
- 4) « *l'IRSN n'a pas l'assurance du caractère conservatif des corrélations utilisées pour le calcul du réchauffement du jet d'eau froide issue de l'ASG dans la vapeur environnante (qui conditionne la température du fluide en contact avec la virole)* ». Effectivement, l'utilisation de corrélations en régime stationnaire Nu (Re , Pr , Gr , Pe)⁷⁸ pour l'étude de phénomènes thermo-fluidiques transitoires dans des installations fortement anisothermes n'est pas scientifiquement valide, pas plus que l'utilisation de « *coefficients d'échange entre le fluide et la virole* » : **la notion-même de coefficient d'échange pose problème en régime instationnaire ou transitoire, et est remise en cause par de nombreux chercheurs car elle n'est plus pertinente dans ces cas**, pas plus que les nombres adimensionnels de Nusselt Nu , Reynolds Re ,

⁷⁸ Nu , Pr , Gr , Pe sont des nombres adimensionnels caractéristiques des écoulements fluides et des transferts thermiques définis dans diverses conditions parfaitement identifiées géométriquement et thermiquement.

Prandtl *Pr*, Peclet *Pe*, du fait des *déphasages temporels* entre les flux thermiques, les flux de matière (vapeur-liquide), les températures, les pressions et les masses volumiques^{79,80}.

- **Sûreté du GV335**

À la lumière de ces rapports et de ces réflexions, la levée de la suspension du GV335 peut paraître surprenante (sauf information supplémentaire non publique), d'autant plus que les analyses chimiques^{81, 82} révèlent des **concentrations en carbone** en tête de la VB 335-B atteignant 0,278% du côté interne dans la zone d'intérêt (et jusqu'à 0,411% dans la casquette susceptible d'être coupée), et 0,344% du côté interne dans la zone d'intérêt (0,364% dans la casquette) en tête de VB 335-C, ce qui pourrait poser des problèmes de soudabilité de la tête de la VB 335 au pied de la virole médiane (micro-fissurations de la soudure, fragilisation thermique de la soudure lors des brusques changements de température).

Les phénomènes fragilisants bien connus de **co-ségrégation de l'excès de carbone avec les éléments chimiques alliés** (P, Mn, Cu, Ni, Mo) ne peuvent que s'en trouver accrus, renforçant par là-même la variabilité chimique de composition et donc la *non-représentativité* des VB 335-B et C vis-à-vis du comportement thermique et mécanique par rapport à la VB 335.

Par ailleurs, les teneurs en phosphore (élément très fragilisant, cf. section 2.1), pourraient dépasser par endroits 0,007% à 0,009% dans l'acier de la VB 335 au vu de la forte dispersion des teneurs observées dans les têtes des viroles sacrificielles. **Elles pourraient par conséquent entraîner des concentrations de plus de 13% de phosphore aux joints des grains austénitiques à mesure des sollicitations thermiques du GV, pouvant initier des ruptures intergranulaires et une élévation accrue de la température de transition ductile-fragile de plusieurs dizaines de °C**, ce risque étant d'autant plus probable que la zone en anomalie carbone-phosphore est précisément proche de, voire identique à la zone affectée thermiquement (ZAT) par la soudure à la virole médiane. La dispersion des valeurs de ténacité mesurées sur les éprouvettes des viroles sacrificielles pourrait être liée à cette dispersion de concentration C-P.

Enfin, les facteurs de marge *Fm* entre la ténacité et le facteur d'intensité de contrainte, évalués par AREVA dans différentes situations critiques, pourrait descendre à 1,58 en cas d'arrêt à froid avec une ASG de 7°C, voire à 1,33 dans une situation d'épreuve hydraulique à 90 bar et 18°C dans le circuit secondaire, *ce qui laisse assez peu de marge si la courbe de transition ductile-fragile est sous-estimée et davantage décalée vers les hautes températures et les basses ténacités, du fait des co-ségrégations C-P en tête de VB 335, qui restent toujours incertaines puisque non mesurées.*

Compte tenu de l'ensemble de ces éléments et sous réserve d'autres éléments non rendus publics, il apparaît que le GV335 présente des risques de rupture par choc froid sous pression suffisamment élevés, compte tenu des dispersions mesurées, pour que sa suspension soit définitive. La levée de sa suspension par l'ASN paraît dès lors surprenante.

⁷⁹ A. Degiovani, B. Remy, *An alternative to heat transfer coefficient: a relevant model of heat transfer between a developed fluid flow and a non-isothermal wall in the transient regime*, Int. J. Therm. Sc. 102 (2016) 62-77.

⁸⁰ T. de Laroche Lambert, P. Nika, *Analytical heat transfer and friction coefficients in alternating incompressible flows between parallel plates - I: transient flows, II: phase lags, scale analysis and annular effect* (à paraître).

⁸¹ Areva, Dossier de justification de l'aptitude au service D02-PEEM-F-16-0371 (version G), 26.10.2017 (201 pages) ;

⁸² Rapport ASN au GPESPN du 23 février 2018 référencé CODEP-DEP-2018-008378 pour la séance du 27 février 2018 en addendum au premier rapport ASN du 14 février 2018.

4. PROJET DE DEMANTELEMENT SCIENTIFIQUE DU REACTEUR FESSENHEIM 1

La fermeture de la première centrale nucléaire construite en France après le lancement du plan PEON en 1973 est l'occasion de répondre à plusieurs questions qui se posent à la filière nucléaire et à la politique française de l'énergie. Elle représente également une opportunité et une chance dont les grandes lignes sont tracées ci-dessous.

Les propositions qui suivent ont été remises à sa demande au Préfet du Haut-Rhin le 14 mars 2019 sous la forme d'un rapport⁸³.

4.1 Principaux objectifs

Les deux réacteurs nucléaires de Fessenheim étant les plus anciens du parc PWR (REP) construit en France, il paraît essentiel de ne pas procéder à un démantèlement industriel à but de standardisation pour la cuve du réacteur n°1 (la plus ancienne et la plus irradiée) et son circuit primaire, mais de mettre en œuvre une procédure de démantèlement scientifique sélectif de ces éléments pour un *projet de recherche et d'investigations approfondies sur le vieillissement thermique sous irradiation* des aciers de cuve et des revêtements, sur l'extension et l'évolution des fissures sous revêtement dans les diverses zones (viroles, soudures, boulons, couvercle) irradiées par le flux neutronique.

À cet effet, il sera particulièrement intéressant sur le plan scientifique de mettre en place ce programme de recherche avec un *consortium européen de laboratoires de recherche publics* (pour la France : CNRS, CEA, UHA, Unistra, UBFC, FEMTO-ST, IRSN, etc. ; pour l'Allemagne : Fraunhofer-Institut, Max-Planck-Institut, etc. ; pour la Suisse : Unige, etc.).

Comme cela est apparu dans les sections 2 et 3, il y a un *réel besoin urgent à l'échelle mondiale de disposer d'une grande base de données scientifiques sur le vieillissement réel des matériaux nucléaires issus de réacteurs nucléaires commerciaux en fin de vie* après 40 ans de fluence neutronique, issues de l'analyse de très grandes quantités d'échantillons prélevés sur tout le réacteur pour établir le diagnostic complet de l'état du vieillissement de chaque partie de la cuve, du couvercle, des internes, des boulons, des joints de virole, des buses de circuit primaire, des mécanismes de commande des barres, etc. en fonction de l'historique thermomécanique complet du réacteur.

Ce programme de recherche (cf. section 4.2) ciblé sur le vieillissement thermique sous irradiation des aciers de cuve diffère très notablement de l'idée avancée par la Région Grand Est d'un « *centre mondial de référence dans le domaine des énergies* » avec un volet dédié au démantèlement du nucléaire. Étant donnée la concurrence entre les industriels européens, américains, russes et chinois sur l'actuel et futur marché du démantèlement des réacteurs nucléaires qui arrivent déjà en fin de vie, il est difficile de défendre la création d'un tel centre « mondial » de démantèlement des centrales nucléaires et d'y injecter de l'argent public français. Il semble plus réaliste de séparer clairement les opérations de démantèlement à caractère commercial (pour le réacteur n°2 de Fessenheim) et les recherches fondamentales et appliquées sur le vieillissement des matériaux sous irradiation.

⁸³ T. de Laroche Lambert, PROPOSITIONS POUR LA TRANSITION ÉNERGÉTIQUE DANS LE HAUT-RHIN ET LE TERRITOIRE DE BELFORT APRÈS FERMETURE DÉFINITIVE DE LA CENTRALE NUCLÉAIRE DE FESSENHEIM, 14 mars 2019.

4.2 Moyens et procédures

Ce programme de recherche devrait être orienté vers la mesure fine et la modélisation aux échelles micro- et nanoscopiques des modifications structurelles induites par la fluence neutronique dans les aciers (en particulier le 16MND5), les variations de température de transition ductile-fragile ΔRT_{NDT} , les déplacements par atome (dpa), en fonction de l'emplacement des échantillons prélevés dans toutes les zones représentatives du circuit primaire, de la cuve et du couvercle.

Les différentes techniques de mesure de pointe actuellement disponibles étudiées en section 2.2 nécessitent la collaboration d'un maximum de laboratoires. En complément des mesures classiques statiques et dynamiques de ténacité, résistance et fluage, elles doivent pouvoir être appliquées à l'étude de ces zones et aux échantillons qui en seront extraits par différentes méthodes de découpe.

Ce consortium de recherche devrait pouvoir être constitué en amont avec des financements français (par exemple de type ANR) ou européens (de type FEDER) pour être opérationnel au plus tôt en début de phase de démantèlement des parties radioactives du réacteur n°1 qui doivent débiter très rapidement après le décret de démantèlement. Une bonne coordination devrait être opérée entre l'État français (à travers notamment l'IRSN et l'ASN), les laboratoires de recherche indépendants et l'exploitant de la centrale EDF.

L'étanchéité de certaines parties du bâtiment réacteur mises en dépression avec filtrages fins des poussières et des éléments radioactifs est essentielle pour la protection extérieure contre les émissions radioactives lors des opérations de démontage du circuit secondaire, des GV puis du circuit primaire, effectuées après lavage et filtrage des dépôts radioactifs (cobalt 60 en particulier, de période de demi-vie radioactive 5,27 ans et de haute activité $4,19.10^{16}$ Bq kg^{-1}).

L'examen fin de la cuve et du couvercle avant découpage doit pouvoir être mené d'abord à sec – une fois le couvercle séparé – et à distance après la période nécessaire à la décroissance des éléments radioactifs de courte période (^{60}Co), après lavage et filtrage des dépôts radioactifs contaminants. Ceci requiert un entreposage interne protégé des effluents et des filtres en silos étanches.

Pour le démontage et le découpage de la cuve, du couvercle et des éléments du circuit primaire, la protection des opérateurs requiert l'utilisation de robots spécifiquement développés pour autoriser l'analyse ultérieure des échantillons après découpe grossière par le robot dédié. Il doit pouvoir être envisagé de construire un *bâtiment résistant pour le stockage des pièces radioactives ainsi découpées, conditionnées et mises en forme pour analyses ultérieures dans les laboratoires de recherche*. L'expertise des organismes de recherche universitaire et de surveillance nucléaires (CEA, CNRS, IRSN côté français) sera essentielle pour l'élaboration des protocoles, de la phase initiale de nettoyage-démontage à la phase finale d'extraction-analyse des échantillons, en passant par la phase d'analyse in-situ avant découpe.

CONCLUSION

Le vieillissement thermique sous irradiation des matériaux dans les réacteurs nucléaires 900 MW pose un problème important pour la prolongation envisagée de leur durée de fonctionnement au-delà de 40 ans. L'analyse des travaux de recherche mondiaux les plus récents sur le vieillissement thermique des aciers sous irradiation, effectués sur la base des méthodes de mesure les plus performantes et des simulations numériques les plus précises depuis l'échelle nanométrique jusqu'à l'échelle de la cuve révèlent en effet un vieillissement accéléré des aciers

fortement irradiés au-delà d'une fluence de 6.10^{19} neutrons/cm², qui se traduit par des modifications très importantes des structures atomiques et cristallines des aciers, accélérant rapidement leur fragilité au-delà de cette limite.

La principale conséquence de ce vieillissement accéléré est que l'élévation de la température de transition ductile-fragile ΔRT_{NDT} augmente *linéairement* avec la fluence neutronique aux fortes irradiations et non avec sa racine carrée comme aux faibles et moyennes irradiations, avec un risque croissant plus élevé que prévu de rupture des cuves nucléaires 900 MW par choc froid sous pression conduisant à un accident majeur.

Au vu de ces nouvelles données, la question de la prolongation de service des réacteurs 900 MW se pose de manière plus aiguë dans un contexte de transition énergétique accéléré indispensable pour répondre à l'urgence climatique.

Le démantèlement du réacteur REP n°1 de la plus vieille centrale nucléaire construite en France à Fessenheim pourrait être l'occasion de lancer un *grand projet européen de recherche expérimental sur le vieillissement thermique réel sous irradiation des aciers des réacteurs nucléaires industriels* afin de vérifier les résultats des recherches mondiales et de tester les hypothèses de prolongation de durée de service des réacteurs nucléaires au-delà de 40 ans.