

Sensibilité d'un alliage FeCrMnNi à la fragilisation par l'eutectique plomb-bismuth liquide

Jorge SALGADO GLAMPAOLI^{1}, Ingrid PRORIOL SERRE¹, Manon BONVALET ROLLAND¹, Franck BECLIN¹, Anna FRACZKIEWICZ²*

¹Univ. Lille, CNRS, INRAE, Centrale Lille, UMR 8207—UMET—Unité Matériaux Et Transformations, 59 000 Lille, France

²Mines Saint-Etienne, Univ Lyon, CNRS, UMR 5307 LGF, Centre SMS, 42023 Saint-Etienne, France

Introduction

Les réacteurs nucléaires pilotés par un accélérateur (ADS) et les réacteurs rapides refroidis aux alliages de plomb (LFR) utilisent du plomb liquide ou l'eutectique plomb-bismuth (Pb45Bi55, noté PbBi) comme liquide caloporteur. L'un des principaux défis dans le développement de tels réacteurs est le choix de matériaux de structure adaptés. En particulier, il est important d'étudier la résistance des matériaux exposés à hautes températures et en présence de métal liquide [1].

Un phénomène récurrent en présence d'alliages ductiles est leur rupture prématurée au contact de métal liquide, phénomène appelé fragilisation par les métaux liquides (FML) [2-3]. La FML correspond à la perte totale ou partielle de la ductilité d'alliages métalliques en présence de métal liquide et ainsi d'un endommagement précoce des matériaux et donc des structures [4]. Les phénomènes de FML peuvent être classifiés en deux catégories distinctes : la fragilisation induite par un mouillage spontané au niveau des joints de grains et la fragilisation produite suite à une déformation plastique en présence de métal liquide [3-4]. La fragilisation par le Pb et le PbBi liquides fait partie de cette deuxième catégorie [5-8]. En effet, c'est après une sollicitation mécanique qu'une fracture fragile peut se produire pour le matériau en contact avec le métal liquide. Aucune FML spontanée (sans contrainte mécanique) n'a été observée en présence du Pb et du PbBi liquides.

Différentes études ont analysé le comportement mécanique de matériaux au contact du Pb ou PbBi liquide à des températures comprises entre 250 et 500°C. Les études montrent que les aciers martensitiques et ferritiques à structure cubique centrée (CC) présentent une sensibilité à la FML entre 250 et 450°C [5-7]. Les essais réalisés pour des matériaux austénitiques à structure cubique à faces centrées (CFC), comme les aciers 316L et 15-15Ti ne montrent qu'une très faible sensibilité à la FML [8-9]. Cependant, les

aciers austénitiques sont très sensibles à la corrosion par Pb et PbBi du fait de la dissolution sélective du Ni [5]. Ainsi, les alliages à haute entropie ou les alliages de composition complexe à structure CFC apparaissent, du fait de leur bonne résistance mécanique et de leurs faibles coefficients de diffusion ainsi que par leur structure CFC peu sensible à la FML, comme des matériaux de structure d'intérêt pour une application en métal liquide à haute température. C'est pourquoi différentes équipes de recherche étudient le comportement de ces matériaux en présence de Pb ou PbBi liquide.

Le travail présenté dans cet article est l'étude du comportement mécanique en présence de PbBi liquide d'un alliage à haute entropie de structure CFC et de composition FeCr15Mn17Ni22 at.%. Les faciès de rupture et les chemins de fissuration sont analysés après des essais de traction (à l'air et en présence de PbBi) ce qui permet d'explicitier la sensibilité à la FML de cet alliage.

Matériaux et méthodes

L'alliage étudié, de composition FeCr15Mn17Ni22 at.% et appelé « Y3 », a été conçu et évalué expérimentalement au MINES de St-Etienne [10]. Pour les besoins de l'étude présente, l'alliage a été élaboré, aux MINES par fusion par induction en nacelle froide, forgé à chaud et ensuite laminé à froid jusqu'à l'obtention d'une tôle d'épaisseur de 3mm. Dans cet état, l'alliage présente une dureté de 256 ± 3 HV. Afin de recristalliser la microstructure, un recuit de 10 min à 1050°C suivi d'une trempe à l'eau a été réalisé. Le matériau recristallisé présente une dureté de 134 ± 2 HV et une taille de grain d'environ 30 μm . L'analyse de phases par diffraction des rayons X montre que le matériau est composé d'une seule phase cubique face centrée aussi bien dans l'état laminé que recristallisé.

Des essais de traction ont été menés sur une machine de traction compression INSTRON adaptée pour effectuer des essais en présence de Pb ou PbBi liquide. Les essais ont été réalisés en métal liquide saturé en oxygène et avec une vitesse de déformation de $5 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ (durée maximale d'un essai : 5 heures). Les éprouvettes ont été usinées par électroérosion par fil (Figure 1) et avant d'être testées, elles ont été polies sur draps diamantés jusqu'à 1 micron. Afin d'observer les faciès de rupture après essai en métal liquide, les éprouvettes sont nettoyées aux ultrasons avec une solution composée de 1/3 CH_3COOH , 1/3 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$, 1/3 H_2O_2 pour enlever les résidus de métal liquide. Les faciès de rupture ont été observés par Microscopie Electronique à Balayage (MEB) avec un microscope HITACHI S3400N-Type2-filament tungstène, équipé d'un détecteur EDX (Energie Dispersive de rayons X). Les analyses des chemins de fissuration et faces latérales des éprouvettes de traction ont été effectuées après polissage avec un microscope

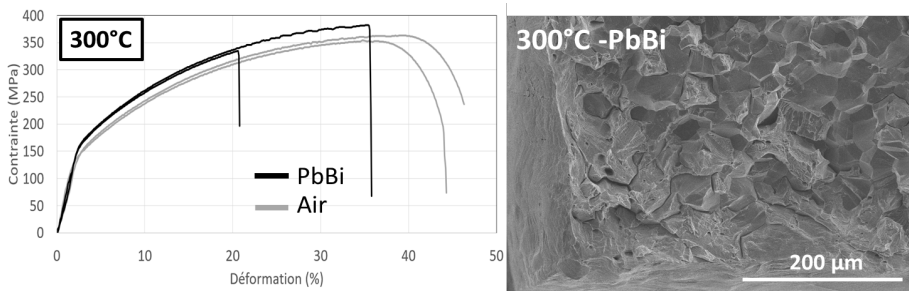


Figure 3 : Courbes de traction des essais réalisés à 300°C et faciès de rupture d'essai à 300°C en présence de PbBi.

Pour les essais menés à 400°C et 500°C en présence de PbBi liquide (Figures 4 et 5), les courbes de traction montrent aussi une rupture prématurée. L'observation des faciès de rupture montre une fracture de type fragile et intergranulaire. On observe également la présence de « particules sphériques » au niveau du faciès de rupture. Celles-ci sont similaires aux deux températures (taille d'environ 1-5μm) mais elles sont en quantité supérieure à 500°C.

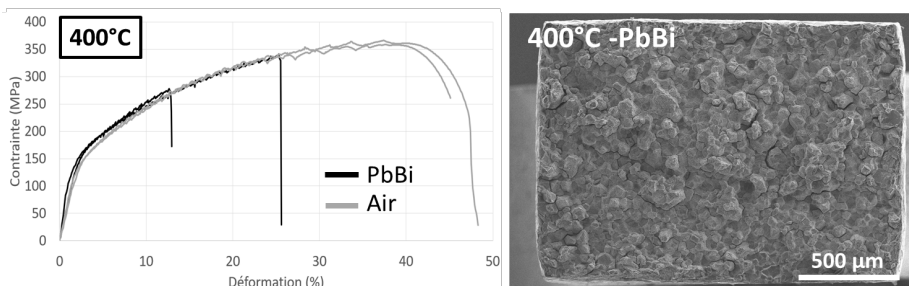


Figure 4 : Courbes de traction des essais réalisés à 400°C et faciès de rupture d'essai à 400°C en présence de PbBi.

Ainsi les essais de traction et l'observation des faciès de rupture montrent la sensibilité à la FML de ce matériau. De plus, la sensibilité à la FML augmente avec la température (rupture prématurée pour des déformations plus faibles et rupture 100% fragile).

Afin de mieux comprendre les mécanismes menant à la FML de ce matériau, les sections transverses des éprouvettes ont été analysées au MEB. Il est observé des fissures secondaires qui ont été analysées par EBSD (Figure 6). Le chemin de fissuration est intergranulaire sans orientation cristallographique préférentielle. La propagation transgranulaire des fissures n'est observée que localement et sur une distance très faible par rapport à la taille du grain, ce qui s'explique par la ductilité importante de l'alliage et ce qui est cohérent avec les observations concernant la sensibilité des aciers austénitiques 316L et 15-15Ti en présence de Pb ou PbBi liquide [5,8,9].

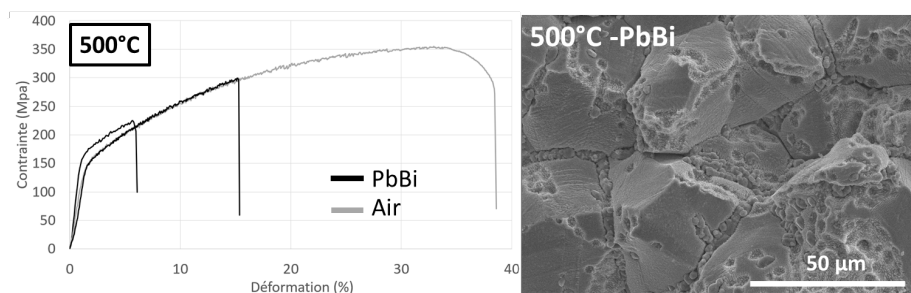


Figure 5 : Courbes de traction des essais réalisés à 500°C et faciès de rupture d'essai à 500°C en présence de PbBi.

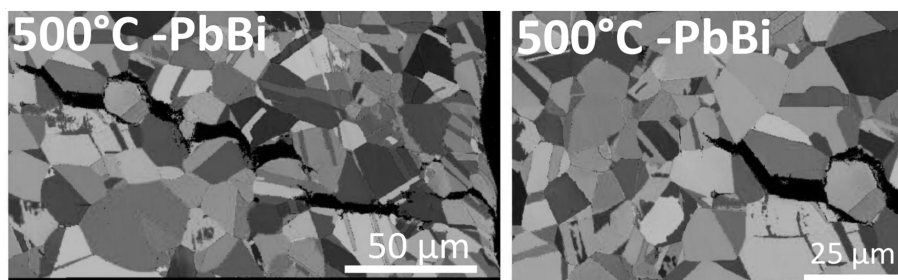


Figure 6 : Images MEB-EBSD. Chemin de fissuration – éprouvette testée à 500°C et en présence de PbBi liquide, images en angle d'Euler.

Des particules sphériques similaires à celles observées sur des faciès de rupture sont présentes au niveau des fissures secondaires. Leur composition est analysée par MEB-EDX (Figure 7).

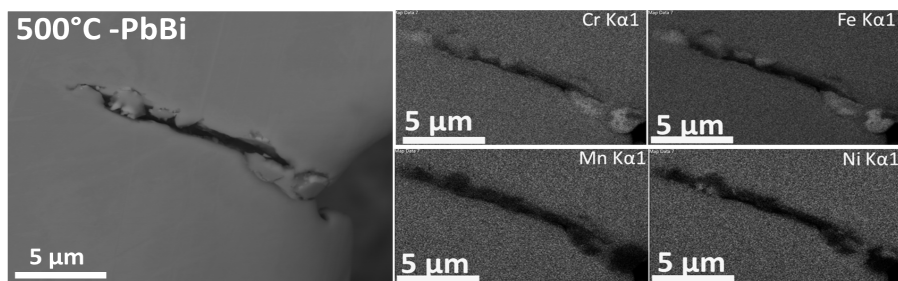


Figure 7 : Images MEB-EDX : fissure avec présence des particules sphériques.

Les analyses chimiques montrent que les particules sphériques sont riches en Fe et Cr par rapport à l'alliage de base. Le Ni et le Mn sont peu présents dans ces particules. La composition de ces particules sphériques est : $30 \pm 3\%$ de Cr, $70 \pm 3\%$ de Fe at.%. On note aussi l'absence de Pb et Bi due au nettoyage et polissage des échantillons.

Discussion et Conclusions

L'eutectique PbBi en contact avec l'alliage à haute entropie FeCr15Mn17Ni22 provoque une rupture prématurée du matériau avec une

rupture fragile intergranulaire. Ainsi, cet alliage de structure CFC se montre sensible à la FML. Ce résultat est inattendu, les microstructures CFC étant peu sensibles à la FML en présence de Pb et PbBi du fait de leur ductilité importante [5]. Seulement un cas de FML par du Pb liquide est reporté dans la littérature pour un matériau CFC ne présentant pas de changement de phase [9].

L'observation des fissures secondaires intergranulaires en présence de métal liquide montre que la présence de PbBi liquide favorise la propagation intergranulaire de fissures. De plus, l'observation des particules sphériques riches en Cr et Fe tend à montrer une perte de Ni et Mn. Ainsi, l'interaction entre le matériau sous contrainte et le métal liquide mène à une dissolution sélective de Ni et Mn et provoque une ferritisation locale de l'alliage. Cette analyse est cohérente avec les calculs d'équilibre thermodynamique effectués avec le logiciel Thermo-Calc en utilisant la base de données TCFe11 [11]. Ils montrent qu'avec la diminution de Mn et de Ni, il existe une extension du domaine de stabilité de la phase CC vers des températures plus hautes (jusqu'à 520°C) par rapport au matériau de base (~ 385°C).

Bibliographie

- [1] F. Dehlin, J. Wallenius, and S. Bortot, 2022 : « An analytic approach to the design of passively safe lead-cooled reactors », *Annals of Nuclear Energy*.
- [2] M. H. Razmpoosh et al., 2021 : « Pathway to understand liquid metal embrittlement (LME) in Fe-Zn couple: From fundamentals toward application », *Progress in Materials Science*.
- [3] D. G. Kolman, 2012 : « A review of recent advances in the understanding of liquid metal embrittlement », *Corrosion*, vol. 75, no. 1. *National Assoc. of Corrosion Engineers*.
- [4] T. Auger, J. B. Vogt, and I. P. Serre, 2019 : « Liquid Metal Embrittlement », *Mechanics - Microstructure - Corrosion Coupling: Concepts, Experiments, Modeling and Cases*.
- [5] NEA, 2015 : « Handbook on Lead-bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Materials Compatibility, Thermal-hydraulics and Technologies », *OECD Publishing*.
- [6] A. Hojna, et al., 2012 : « Characteristics and Liquid Metal Embrittlement of the steel T91 in contact with Lead-Bismuth Eutectic », *Journal of Nuclear*.
- [7] B. Long, Z. Tong, F. Gröschel, and Y. Dai, 2008 : « Liquid Pb-Bi embrittlement effects on the T91 steel after different heat treatments », *Journal of Nuclear Materials*.
- [8] Z. Hamouche-Hadjem, T. Auger, I. Guillot, and D. Gorse, 2008 : « Susceptibility to LME of 316L and T91 steels by LBE: Effect of strain rate » *Journal of Nuclear Materials*.
- [9] I. P. Serre and J. B. Vogt, 2022 : « Mechanical behavior in liquid lead of Al₂O₃ coated 15-15Ti steel and an Alumina-Forming Austenitic steel designed to mitigate their corrosion », *Engineering Failure Analysis*.
- [10] J. Olszewska, 2019 : « Conception et développement d'une nuance d'alliage de type HEA (High Entropy Alloys) de la famille CrFeMnNi à résistance mécanique élevée » *thèse de doctorat, MINES de St-Etienne*.
- [11] Thermo-Calc Software TCFe Steels/Fe-alloys database version 11 (accessed January 2023).