

*dpe*

- NOTE C.E.A. n° 213 -



Service de Technologie

ELABORATION D'ALLIAGE Mn-Ni

par

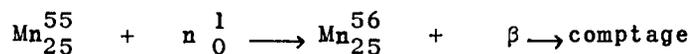
L. MENY

- Juin 1957 -

## ELABORATION D'ALLIAGE Mn-Ni

L'alliage manganèse-nickel à haute teneur en manganèse est utilisé pour la réalisation de détecteurs de très faible épaisseur, servant à la mesure des flux de neutrons dans un réacteur. Le manganèse a été choisi pour sa période de 2 h 58, qui permet des mesures relativement courtes. Le manganèse naturel est activé sous l'effet des neutrons ; il donne alors l'isotope  $Mn_{25}^{56}$  avec une émission de rayons  $\beta$ . La quantité de  $\beta$  est pour une concentration donnée, proportionnelle au flux de neutrons étudié.

$$\sigma = 13 \text{ barns}$$



naturel thermique T = 2 h 58

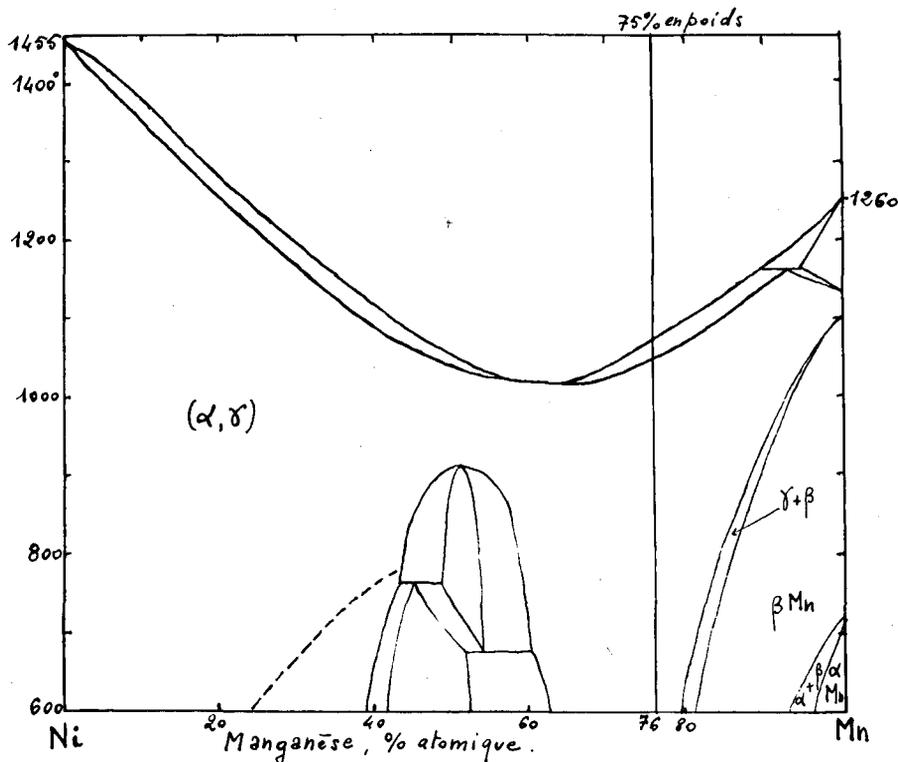
Le manganèse est très fragile. Il est impossible de fabriquer des feuilles de manganèse pur de quelques centièmes de millimètre d'épaisseur. On ajoute du nickel qui augmente la malléabilité sans perturber les mesures d'activité induite. En effet, la plus grande partie du nickel a une période de plusieurs centaines d'années, donc n'intervient pas. Les quelques pourcents de nickel restant s'activent avec une période très peu différente de celle du manganèse.

La composition 75 pour cent Mn, 25 pour cent Ni, a été choisie parce que l'alliage correspondant est une solution solide de nickel dans le manganèse. Le but des essais est donc la réalisation de feuilles de 15/100 mm d'épaisseur d'alliage Mn-Ni 75-25.

Le diagramme d'équilibre Mn-Ni au-dessus de 600 °C a été déterminé par B.R. COLES et HUME-ROTHERY en 1951 [1]. Le manganèse fond à 1260 °C, le nickel à 1452 °C. A la composition considérée, l'alliage est une solution solide de Ni cubique à faces centrées dans le manganèse cubique à faces centrées. Le solidus est à 1040 °C, le liquidus à 1070 °C. Cette composition ne présente pas de transformation à l'état solide. Ces auteurs indiquent de grandes difficultés pour l'obtention par fusion de lingots d'alliages, soit sous hydrogène, soit sous argon, et indiquent une perte de manganèse par volatilisation de l'ordre de 1 à 2 g pour un lingot de 50 g.

Dans un autre laboratoire de notre service, des feuilles de cet alliage ont été obtenues par la métallurgie classique : fusion d'un lingot, forgeage et laminage. Les plus importantes difficultés à la fusion ont été dues à l'oxydabilité du manganèse, à

l'attaque des creusets, au très fort retrait qui entraîne une grande retassure; l'alliage se travaille très mal à chaud, il se travaille bien à froid ; le laminage permet d'atteindre des écrouissages allant jusqu'à 80 pour cent<sup>1)</sup>, à condition de faire de très faibles passes, un recuit intermédiaire est alors nécessaire pour continuer le laminage.



- Fig. 1 -

Diagramme d'équilibre Mn-Ni.

En parallèle avec la méthode d'obtention de cet alliage par fusion, nous avons effectué sa réalisation

par métallurgie des poudres. Les essais qui ont été faits dans ce sens ne constituent pas une étude poussée et approfondie. Il est très possible que des conditions différentes simplifient la méthode ou améliorent le résultat final, en particulier la densité du produit. La tôle obtenue présente, en effet, une porosité de 15 pour cent, mais cette porosité ne gêne pas l'utilisateur, à condition qu'elle soit répartie d'une façon homogène.

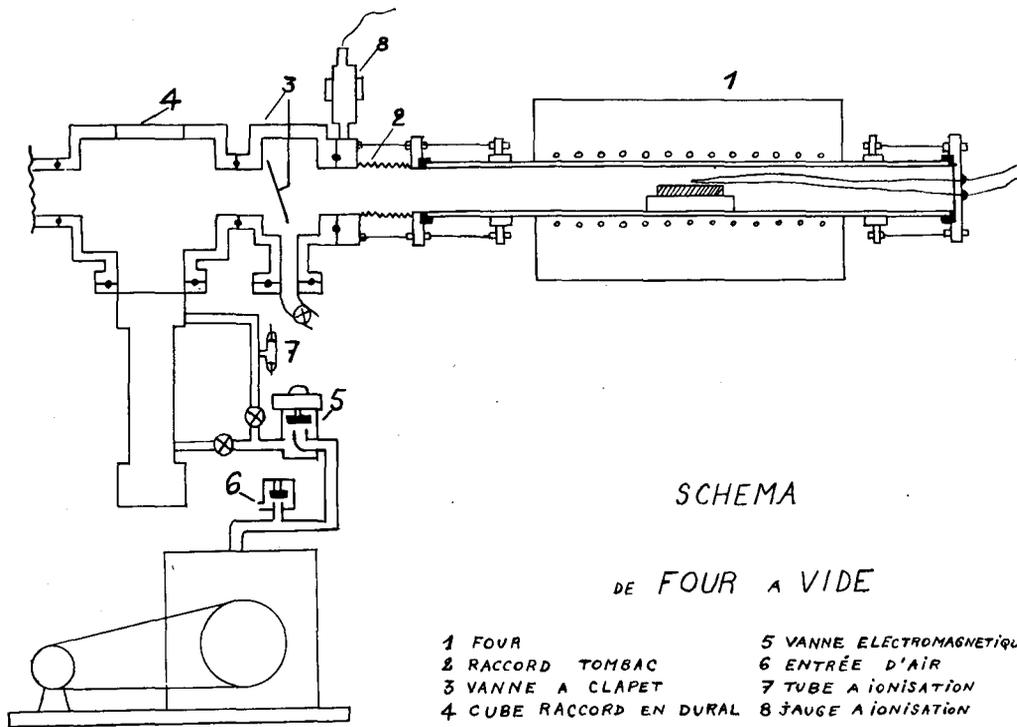
Nous nous sommes attachés à la pureté et à l'homogénéité du matériau final, plus qu'à l'obtention de bonnes propriétés mécaniques.

Nous allons décrire successivement l'appareillage utilisé, la fabrication de l'alliage et quelques propriétés des feuilles d'alliages obtenues.

1) écrouissage :  $\frac{e_0 - e}{e_0} \times 100$

### Appareillage utilisé.

Les traitements thermiques devaient être faits sous atmosphère inerte, pour éviter la formation d'oxyde ou de nitrure de manganèse. Nous avons donc employé un four sous vide qui a été construit au laboratoire ; ce four a été construit à partir d'éléments standards du commerce. L'élément chauffant est un four MECI S 86 S qui permet d'atteindre 1200 °C. L'enceinte dans laquelle est réalisé le vide est constitué par un tube de quartz de diamètre intérieur 60 mm ; on pourrait aussi employer des tubes de mullite puisqu'il n'y a pas de choc thermique. La température est contrôlée par un couple thermoélectrique, relié à un régulateur de la pyrométrie industrielle.



- Fig. 2 -

### Schéma de l'appareillage.

Le groupe de pompage comprend une pompe primaire B 14 de la C.G.R. (débit 14 m<sup>3</sup>/h) raccordée à une pompe-secondaire Edwards type 403 de débit 200 l/s par l'intermédiaire d'une vanne électromagnétique Edwards. Le circuit est en tube de cuivre et raccords en inox.

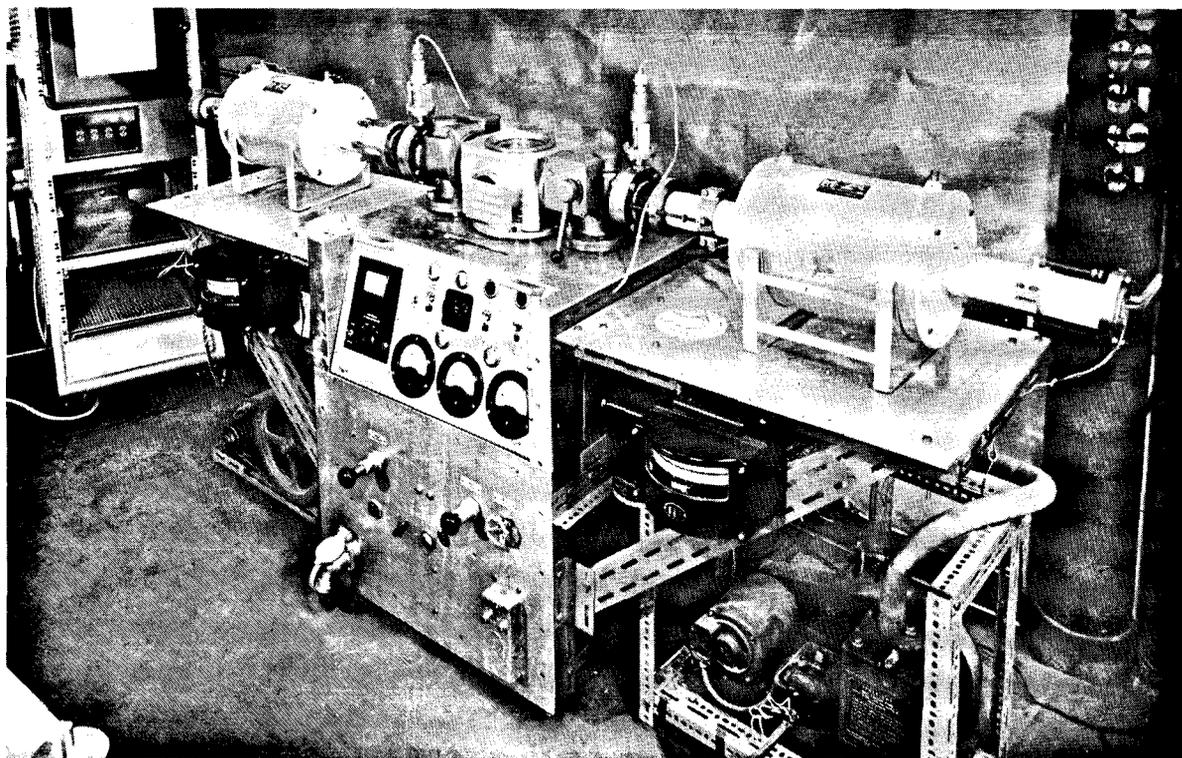
En fait, le montage comprend deux fours symétriques, celui de gauche n'a pas été représenté sur le schéma. En (1) le four de frittage ; les fours peuvent être reliés soit au groupe de pompage déjà décrit par l'intermédiaire d'un raccord tombac 2, et du cube en duralumin (4), soit être reliés séparément

à une pompe primaire indépendante qui est branchée sur la pièce intermédiaire (3), ce qui permet un dégazage rapide des échantillons sans perturber le circuit qui sert au pompage à haute température. La pièce intermédiaire (3) est une vanne à clapet de chez Leybold, qui laisse le diamètre du four complètement libre quand elle est ouverte ; elles permettent une complète indépendance des deux fours en cours de fonctionnement.

Plusieurs sécurités ont été montées :

- sur l'eau de refroidissement, un relais de sécurité d'eau type 10, de la C.G.R., qui coupe le chauffage de la pompe à diffusion en cas de coupure d'eau,
- sur le circuit électrique, une vanne électromagnétique (5) isole, en cas de coupure de courant, la pompe à diffusion de la pompe à palettes, et permet de faire une entrée d'air sur la pompe à palettes par l'entrée d'air (6).

Le vide primaire est mesuré par un tube à ionisation placé entre la pompe secondaire (7) ; le vide secondaire est mesuré en (8) par une jauge à ionisation C.G.R. type ionivac. Un vide de  $8.10^{-6}$  peut être atteint à haute température. Un vide de  $1.10^{-5}$  est la pression normale d'utilisation.



- Fig. 3 -

Cet appareillage a été monté pour faire du frittage de métaux très oxydables (uranium, zirconium, molybdène). Le dégazage des poudres et l'évaporation

Méthode employée.

La poudre de nickel nous a été fournie par les Etablissements AUMAS. C'est une poudre de nickel carbonyle de pureté 99,99 de grains de 4 à 5  $\mu$ . La poudre de manganèse titre 99,99 pour cent, elle nous a été fournie par les Etablissements PECHINEY.

Quelques essais de frittage classique par compression à froid et chauffage ont été faits sur des mélanges de poudres, en atmosphère d'argon ou sous vide, dans des conditions différentes de granulométries, de pressions et de températures. On n'a pu de cette manière éviter complètement le feuilletage des échantillons ; des ajouts de liants auraient pu introduire des impuretés.

Un traitement de préfrittage des poudres à 900 °C avant compression a donné de meilleurs résultats en modifiant sans doute la granulométrie apparente de la poudre ; il permet d'augmenter la pression, donc de diminuer la porosité sans occasionner de feuilletage, mais les échantillons frittés ne sont pas laminables.

Nous avons alors pensé réaliser directement des bandes de poudre épan- due, préfrittées, comprimées ensuite par laminage. Une méthode analogue est employée d'une façon industrielle entre autres par les Américains et les Allemands pour l'obtention de tôles de métaux durs et d'aciers inoxydables. Ce procédé est aussi employé pour le laminage de la poudre d'aluminium et pour des cuivreux. Les Anglais l'emploient pour l'obtention de feuilles de nickel carbonyle très pur, qui sont frittées sous vide. C'est d'après eux le seul moyen de fabriquer des feuilles très minces de nickel très pur - [2] - [3] - [4].

C'est une méthode rapide qui nécessite peu de matériel.

La poudre est épan- due sur un support plat, préfrittée sous vide ; l'é- ponge obtenue a la forme d'une plaque rigide et fragile. Le laminage ne sert qu'à la comprimer et on obtient ainsi une tôle dont la porosité a beaucoup dimi- nué. Un recuit ultérieur et un dernier laminage permet d'obtenir la feuille dé- finitive de 15/100 d'épaisseur.

Nous avons fait des essais préliminaires pour déterminer l'influence des différents facteurs : la granulométrie de la poudre, la nature du support de cette poudre, le mode d'épandage, la vitesse de mise en température pour attein- dre le palier de préfrittage, la température de ce palier, le taux de laminage, la température de recuit. Nous avons été conduits à adopter les conditions de fabrication détaillées dans le paragraphe suivant.

Fabrication des bandes d'alliages de 15/100 d'épaisseur.

1) Mélange des poudres.

La composition est 75 % Mn + 25 % Ni. La granulométrie est le tamisat 270, c'est-à-dire que le diamètre des particules ou des agglomérats de particules est inférieur à 53  $\mu$ .

La densité apparente du mélange est 3,48 (la densité théorique de l'alliage est 7,56).

2) Support.

Nous avons pris comme support des plaques en acier inoxydable de 85/100 mm ; un revêtement d'alumine empêche l'accrochage de l'éponge métallique sur le support ; un film de 5/100 de mm est obtenu par séchage d'une barbotine d'alumine de polissage (ce revêtement d'alumine est plus efficace qu'un film de graphite).

3) Epannage.

Avec une petite trémie à écoulement continu, la couche obtenue n'est pas régulière. En définitive, on épand la poudre par couches successives à travers un tamis 100 ; on tasse légèrement ; le surplus de poudre est arasé par un mandrin lisse monté sur deux cales d'épaisseur, l'épaisseur de poudre épanchée est de 80/100 mm.

4) Préfrissage.

Un dégazage à  $10^{-3}$  mm Hg, une vitesse de chauffe assez lente de 300 °C/h évitent une fissuration de la plaque ; l'échantillon est maintenu à 900 °C pendant 30 mn ; l'argon même épuré entraîne une réaction superficielle de l'éponge, c'est pourquoi nous avons préféré le vide.

5) Laminage.

Le laminage de l'éponge s'effectue sans support par très faibles passes. L'épaisseur de 22/100 mm est atteinte sans entraîner de fissures.

6) Frittage-laminage.

La température de frittage a été choisie la plus proche possible de la température de la phase liquide, qui est 1040 °C ; nous avons donc fait un palier de 1 h à 1000 °C sous argon. A cette température, la pression de vapeur du man-

ganèse est de  $2.10^{-2}$  mm Hg ; sous vide, on vaporiserait donc du métal (à 900 °C, elle n'est que de  $2.10^{-3}$  mm Hg). Un dernier laminage de calibrage amène l'épais-  
à la cote demandée 15/100 mm. La densité est alors 6,40. Il y a encore 15 pour cent de porosité <sup>2)</sup>.

Les dimensions des feuilles obtenues sont de l'ordre de 150 x 50 mm et de 15/100 mm d'épaisseur. Elles sont flexibles, on peut les enrouler autour d'un mandrin de 22 mm de diamètre. Un examen micrographique montre une solution solide à grains fins.

Les feuilles d'alliage obtenues ayant été jugées de qualité satisfaisante par l'utilisateur, nous n'avons pas poursuivi les essais. Nous n'avons pas tenté de réduire la porosité ni d'améliorer les propriétés mécaniques du matériau.

Nous avons voulu montrer ici l'avantage de cette technique simple pour l'élaboration de feuilles minces de matériaux de haute pureté, peu malléables. Nous pensons qu'elle est applicable à des mélanges plus complexes d'oxydes ou de carbures par exemple avec une phase liante métallique. Parallèlement à cette étude, un appareillage a été décrit qui permet d'effectuer les différentes opérations de chauffe en conservant dans le matériau final la pureté des poudres de départ.

Nous tenons à remercier particulièrement Monsieur ROUBY qui a eu la plus grande part dans ce travail et a réalisé l'appareillage.

---

2) Porosité pour cent =  $\frac{d \text{ théorique} - d \text{ mesurée}}{d \text{ théorique}} \times 100$

BIBLIOGRAPHIE

- [1] COLES B.R., HUME ROTHERY  
- The equilibrium diagram of the system Ni-Mn.  
J. Inst. Metals, 1951, 80, 85
- [2] STORCHHEIM Samuel  
- Rolling metal powders into strip.  
Metal Progress, 1956, septembre, 120.
- [3] EVANS P.E., SMITH G.C.  
- The continuous compacting of metal powders.  
Symposium on powder metallurgy, London, 1954
- [4] Laminage d'aluminium fritté.  
- Rev. Alum., 1956, nov., 237, 1043

Manuscrit reçu le 4 Juin 1957.