HAL
open science

Évolution des propriétés mécaniques du niobium de différentes puretés entre 20 °C et 850 °C

J.F. Fries, C. Cizeron, P. Lacombe

▶ **To cite this version:**

J.F. Fries, C. Cizeron, P. Lacombe. Évolution des propriétés mécaniques du niobium de différentes puretés entre 20 °C et 850 °C. Revue de Physique Appliquée, 1970, 5 (3), pp.371-381. 10.1051/rphysap:0197000503037100 . jpa-00243404

HAL Id: jpa-00243404

https://hal.science/jpa-00243404

Submitted on 4 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ÉVOLUTION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DU NIOBIUM DE DIFFÉRENTES PURETÉS ENTRE 20 °C ET 850 °C

J. F. FRIES, C. CIZERON et P. LACOMBE

Résumé. — La déformation plastique du niobium dans le domaine des températures intermédiaires, a été étudiée sur trois types de matériau, se différenciant nettement par leurs teneurs en impuretés interstitielles et substitutionnelles. Les courbes d'évolution des propriétés mécaniques en traction, ont été déterminées. L'existence d'un phénomène de vieillissement dû à la déformation, ou strain-aging, et d'un effet Portevin-Le Châtelier, a été mise en évidence pour les trois nuances de métal. Ces deux phénomènes ont fait l'objet d'une étude plus approfondie qui a permis de suggérer une interprétation des courbes d'évolution des contraintes et des allongements en fonction de la température.

Abstract. — The plastic deformation and the mechanical properties of three distinct lots of niobium containing varying interstitial and substitutional impurity concentrations were investigated in the intermediate temperature range.

Evidence of the strain-aging phenomenon and the Portevin-Le Chatelier effect was found in the three lots. An extensive study of the two above mentioned phenomena led to the interpretation of the temperature dependence of the flow stress and the elongation curves.

I. **Introduction.** — La déformation plastique du niobium dans le domaine des températures intermédiaires (0,1 *Tf* à 0,3 *Tf*, *Tf* étant la température de fusion en degrés Kelvin), a déjà fait l'objet d'un nombre assez important de publications, principalement au cours des dix dernières années. La majorité de ces travaux a été effectuée aux Etats-Unis pour le compte de l'Armée de l'Air américaine entre 1957 et 1960. Toutefois, le degré de purification du matériau employé alors, était très disparate, et surtout assez insuffisant. L'amélioration constante des techniques de raffinage permet maintenant de disposer de niobium de haute pureté.

Il nous a donc paru opportun d'entreprendre une étude comparative de la plasticité du niobium en fonction de la pureté de ce métal ; ce travail a porté simultanément sur trois nuances de matériau différant à la fois par leurs teneurs en atomes interstitiels et substitutionnels. En effet, il est maintenant bien connu que les propriétés mécaniques des métaux de transition sont largement influencées par la présence de quantités relativement faibles d'impuretés interstitielles telles que l'oxygène, l'hydrogène, l'azote et le carbone...

Nous avons donc déterminé les courbes d'évolution des propriétés mécaniques en traction, pour les trois nuances de niobium mises à notre disposition par la Direction des Recherches et Moyens d'Essais. Certaines anomalies relevées sur ces courbes, ainsi que l'existence d'un phénomène Portevin-Le Châtelier observé pour les trois puretés considérées, nous ont permis de suggérer une interprétation de l'influence des teneurs en atomes interstitiels et substitutionnels sur l'évolution des caractéristiques mécaniques en fonction de la température.

II. **Méthodes expérimentales.** — Nous avons utilisé pour ces essais une machine de traction INSTRON, type TTMCL, équipée d'un montage [1] de traction à chaud, et sous vide poussé (T maxi $\approx$ 1 000 °C sous 10^{-6} torr). Les éprouvettes ont été obtenues par matriçage de précision, dans des tôles d'épaisseur 1 mm (Fig. 1). Ces éprouvettes ont ensuite subi un traitement thermique de 30 minutes sous vide poussé (10^{-6} torr), aux températures respectives de :

— 1 050 °C pour le métal de pureté commerciale.
— 950 °C pour le niobium de pureté améliorée.
— 930 °C pour le niobium de haute pureté.

TABLEAU I

Analyse des trois nuances de métal expérimentées

Elément ppm / Pureté	O	C	N	H	W	Ta	Zr	Mo	Fe	Ti	Al
Commerciale	330	70	120	1	400	400	50	100	20	50	50
Intermédiaire	130	50	30	2	320	400	50	30	20	70	50
Haute pureté	55	45	20	1	20	35	50	20	10	20	30

Article published online by EDP Sciences and available at http://dx.doi.org/10.1051/rphysap:0197000503037100

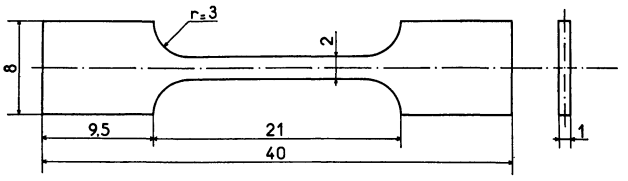

FIG. 1. — Eprouvette de traction utilisée lors des essais.

Ces conditions permettent d'obtenir une microstructure stable à grains fins (30 microns) quelle que soit la pureté du matériau. Le tableau I rassemble les analyses des trois types de niobium que nous avons étudiés.

L'installation utilisée permet d'obtenir une température uniforme à $\pm$ 1 °C près sur la longueur utile de l'éprouvette, soit 15 mm. Ce gradient est contrôlé durant chaque essai, grâce à deux thermocouples (*Pt Pt-Rh*) placés au contact de l'échantillon : l'un au milieu de la partie utile, et l'autre sur l'une des têtes. Compte tenu de l'erreur de lecture, inférieure ou égale à 1 °C, on connaît donc la température de l'essai à $\pm$ 2 °C près. Cette précision demeure valable dans tout l'intervalle de température exploré (20 à 850 °C).

La vitesse de traction utilisée était de 0,1 cm/mn, soit compte tenu de la longueur utile de l'échantillon, une vitesse de $1{,}1 \times 10^{-3}\ s^{-1}$. Cette vitesse a été choisie pour trois raisons :

a) Elle correspond à un effet moyen de la vitesse de déformation sur le vieillissement lié à la déformation imposée au niobium [2].

b) Par ailleurs, cette vitesse a déjà été choisie par de très nombreux auteurs ayant travaillé sur la déformation plastique du niobium [3] [4] [5] [6] [7] [8] ; de ce fait la comparaison des résultats obtenus avec les nôtres s'en trouvera facilitée.

c) Enfin, cette vitesse se situe au milieu de la gamme de vitesses offerte par la machine INSTRON, et permet donc d'augmenter ou de diminuer, d'un même facteur, la vitesse de déformation, lors d'essais ultérieurs.

Tous les essais de traction ont été réalisés sous vide poussé, c'est-à-dire, de l'ordre de 10^{-6} torr.

L'incertitude sur les contraintes, déduite de la dispersion observée sur dix essais de traction effectués dans les mêmes conditions, est de l'ordre de 3 à 4 %.

Pour les allongements, l'incertitude évaluée de façon similaire peut atteindre 10 %.

III. **Résultats.** — III.1 COURBES DE TRACTION. — 1.1 *Pureté commerciale* (Fig. 2). — Les résultats obtenus permettent de faire les remarques suivantes :

— Entre 25 °C et 145 °C, on observe un décrochement nettement marqué, à la limite élastique, qui est suivi d'un palier. La striction est d'environ 100 %.

— A partir de 145 °C, la longueur du palier diminue ; d'autre part, des hachures apparaissent dès le début de la phase plastique, mais elles restent assez

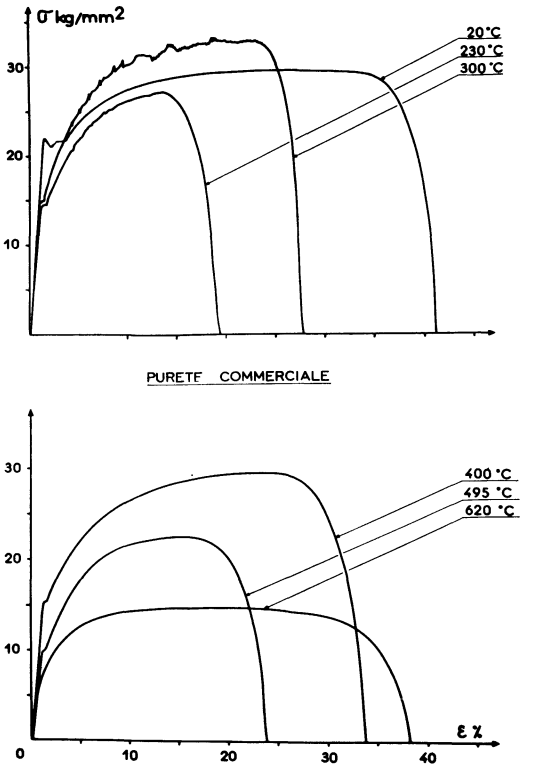

FIG. 2. — Courbes expérimentales obtenues pour le niobium de pureté commerciale.

peu nombreuses, et de faible amplitude, jusqu'à 220 °C. Le « yield point » demeure visible jusqu'à 220° environ.

— De 220 °C à 310 °C, l'amplitude et le nombre des hachures augmentent. Ces discontinuités apparaissent toujours dès la fin du palier. L'importance de ce palier diminue régulièrement lorsque la température croît. L'existence de ces hachures s'accompagne d'une augmentation importante de la consolidation, qui se traduit par une croissance de la contrainte de rupture.

— A partir de 310 °C, les hachures n'apparaissent alors qu'après un certain taux de déformation. Elles augmentent en nombre et en régularité, tandis que leur amplitude diminue. En outre, la surconsolidation observée auparavant décroît régulièrement.

— A partir de 350 °C, le phénomène Portevin-Le Châtelier disparaît ; par contre le palier persiste encore jusque vers 520 °C.

— Entre 490 °C et 535 °C, des hachures très peu marquées réapparaissent, sur les courbes de traction.

— De 535 °C à 850 °C, l'allongement dû à la striction augmente continûment, alors que l'allongement uniformément réparti ne croît plus que faiblement.

En comparant les différentes courbes enregistrées, on remarque que les variations respectives des contraintes et des allongements — en fonction de la température — ne conduisent pas à des évolutions prévisibles : En effet, lorsque la température augmente,

un métal devient généralement plus ductile, ce qui se traduit par une croissance monotone des allongements et une décroissance simultanée des contraintes. Or, l'évolution de l'allure des courbes de traction enregistrées, ne vérifie pas ces critères et annonce déjà clairement la présence d'anomalies sur les courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$.

1.2 *Pureté améliorée* (Fig. 3). — L'allure générale des courbes de traction obtenues à différentes températures, est identique à celle déjà observée pour le niobium commercial :

— De 25 °C à 180 °C, on constate que la limite élastique est immédiatement suivie d'un léger décrochement, puis d'un court palier. La striction est ensuite d'environ 100 %.

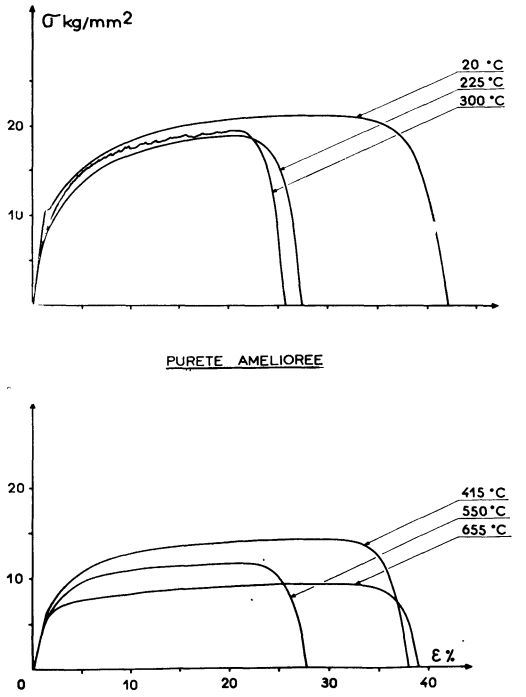

FIG. 3. — Courbes expérimentales obtenues pour le niobium de pureté améliorée.

— A partir de 260 °C, on voit apparaître des hachures sur les courbes de traction. Celles-ci débutent dès la limite élastique, mais sont assez irrégulières.

— Entre 260 °C et 310 °C, l'amplitude et le nombre des hachures augmentent. Celles-ci commencent toujours à apparaître dès la limite élastique. On observe simultanément un effet de surconsolidation, qui se traduit par une augmentation progressive de la contrainte de rupture.

— De 310 °C à 350 °C, les hachures ne se déclenchent qu'après un certain taux de déformation ; sa valeur augmente en même temps que la température d'essai.

— Vers 400 °C, l'allongement total est supérieur à tous ceux obtenus entre 50 °C et cette température.

— Par contre, vers 520 °C, l'allongement total devient très inférieur à celui obtenu précédemment à 400 °C.

— Il se remet à augmenter de façon progressive, de 520 °C à 850 °C.

1.3 *Haute pureté* (Fig. 4). — L'allure générale des courbes de traction enregistrées reste identique à celle observée pour les deux autres nuances de métal.

— De 25 °C à 100 °C, on trouve un léger palier après la limite élastique ; il n'y a apparemment plus de « yield point ». La striction est sensiblement de 100 %.

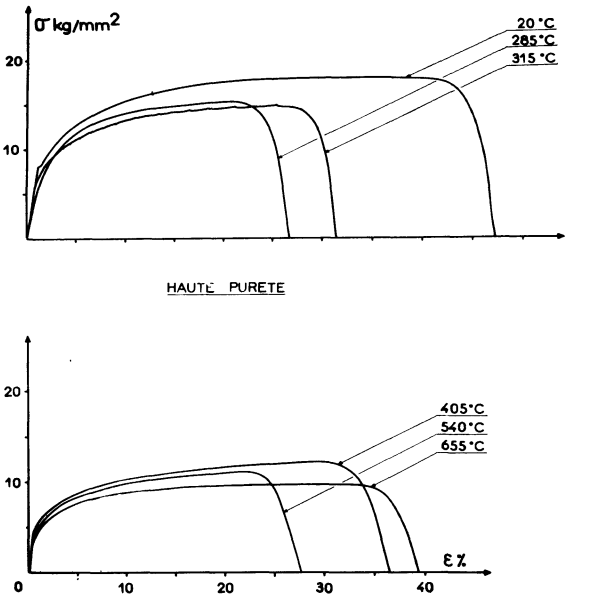

FIG. 4. — Courbes expérimentales obtenues pour le niobium de haute pureté.

— A partir de 270 °C, on voit apparaître des hachures dès la limite élastique. Celles-ci sont assez irrégulières et de très faible amplitude.

— De 270 °C à 310 °C, le phénomène Portevin-Le Châtelier s'amplifie. Les hachures augmentent légèrement d'amplitude.

On observe encore une surconsolidation croissante, de 270 °C à 310 °C.

— De 310 °C à 350 °C, les hachures deviennent moins nombreuses et leur amplitude tend à s'annuler. La surconsolidation observée auparavant diminue régulièrement.

— Vers 410 °C, l'allongement augmente notablement.

— Par contre, il régresse de façon sensible vers 530 °C.

— Enfin, de 530 °C à 850 °C, l'allongement augmente à nouveau de façon monotone avec la température.

En résumé. — On constate la présence d'un « yield point » pour les deux nuances les moins purifiées, alors que pour les trois puretés on note l'existence d'un

palier, du moins aux températures d'essai les plus basses. La longueur de ce palier reste faible dans le cas des matériaux les plus purs, alors que pour le niobium de qualité commerciale, elle est nettement plus importante. Enfin, le phénomène Portevin-Le Châtelier, apparaît pour les trois nuances mais les températures seuil d'apparition sont légèrement décalées.

III.2 COURBES D'ÉVOLUTION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE. — Ces courbes ont pour objet de représenter l'évolution de cinq caractéristiques mécaniques conventionnelles, en fonction de la température, et ce pour chacune des trois puretés de niobium considérées : Ce sont respectivement :

Pour les contraintes :

— la contrainte de rupture : σ_R en kg/mm^2 ;
— la contrainte à 0,2 % de déformation : $\sigma_{0,2}$ kg/mm^2 ;
— la limite d'élasticité : σ_E kg/mm^2.

Pour les allongements :

— l'allongement à rupture : ε_R % ;
— l'allongement maximal uniformément réparti : ε_M %.

Dans les courbes ainsi tracées, on rencontrera de haut en bas :

— pour les contraintes : σ_R, $\sigma_{0,2}$ et σ_E ;
— pour les allongements : ε_R et ε_M.

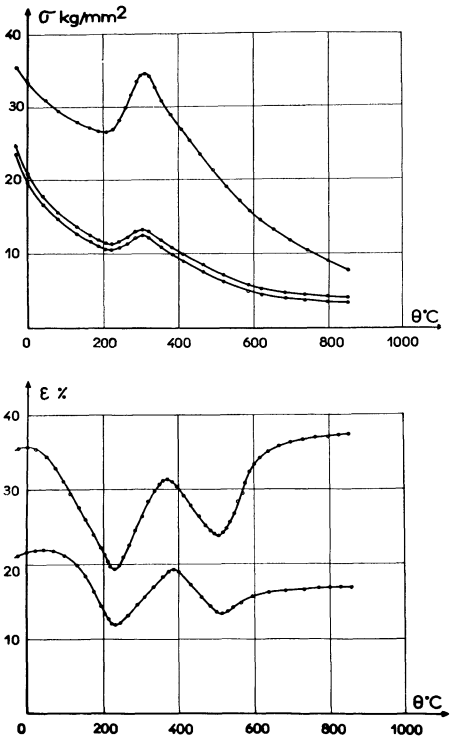

FIG. 5. — Courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$ pour le niobium de pureté commerciale.

Toutes les valeurs indiquées sont des valeurs « vraies », c'est-à-dire tenant compte de la variation de longueur utile de l'éprouvette de sa section au cours de l'essai de traction.

2.1 *Pour le niobium de pureté commerciale* (Fig. 5). — Les faits suivants peuvent être soulignés :

— Les courbes d'évolution des 3 contraintes caractéristiques évoluent de façon absolument similaire : elles commencent d'abord par décroître, lorsque la température d'essai s'élève ; après être passées par un minimum situé vers 220-230 °C, elles croissent simultanément jusqu'à un maximum situé vers 310 °C ; enfin, elles décroissent à nouveau de façon monotone. Cette évolution des contraintes en fonction de la température croissante est inhabituelle : en effet, on pouvait s'attendre à trouver simplement une décroissance monotone entre 20 °C et 850 °C.

— De même, l'allongement à la rupture et l'allongement réparti suivent une évolution similaire en fonction de la température d'essai. Ainsi, après avoir d'abord diminué, jusqu'à passer par un minimum (vers 220-230 °C), ces allongements croissent simultanément jusqu'à un maximum (situé vers 370-380 °C) ; ils diminuent à nouveau jusqu'à un second minimum (situé vers 500-510 °C) et enfin, ils augmentent à nouveau de façon monotone jusqu'à 850 °C. Là encore, les courbes obtenues sont très différentes de celles auxquelles on pouvait s'attendre, c'est-à-dire, des courbes d'allure régulièrement croissante.

Si l'on compare les températures caractéristiques des extrema respectifs des courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$, on constate qu'il est possible de distinguer 5 domaines de température dont les limites sont respectivement :

25-230 °C
230-310 °C
310-380 °C
380-510 °C
510-850 °C .

2.2 *Pour le niobium de pureté améliorée* (Fig. 6). — Les différentes courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$ ont des allures voisines. Toutefois, si les températures auxquelles correspondent les valeurs minimales et maximales des contraintes restent sensiblement identiques à celles trouvées pour le métal de pureté commerciale, on constate un léger décalage des températures caractéristiques de $\varepsilon = f(\theta)$ vers les hautes températures. C'est ainsi que les deux minima apparaissent successivement vers 250-260 °C, et vers 520-530 °C, le maximum intermédiaire se situant vers 400-410 °C. Par ailleurs, l'anomalie évoquée précédemment sur les courbes $\sigma = f(\theta)$ est ici nettement moindre que dans le cas du niobium de pureté commerciale.

2.3 *Pour le niobium de haute pureté* (Fig. 7). — On retrouve encore la même allure d'ensemble, d'une part pour les courbes $\sigma = f(\theta)$, d'autre part pour les

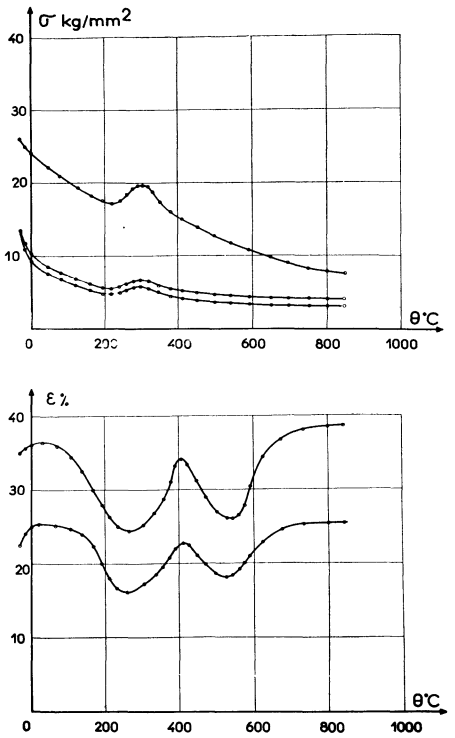

FIG. 6. — Courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$ pour le niobium de pureté améliorée.

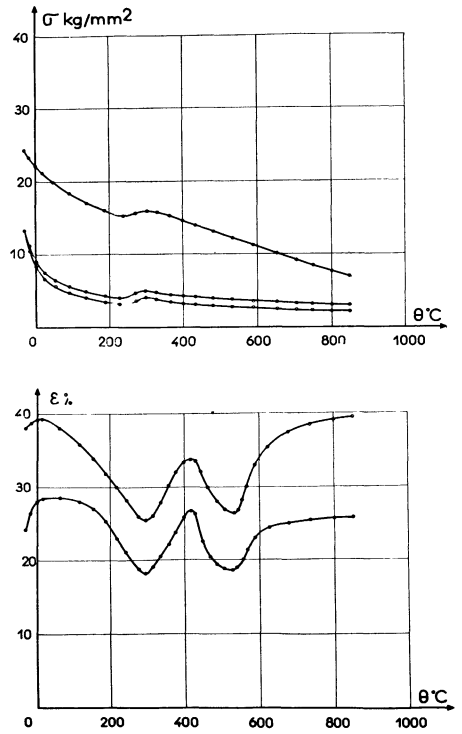

FIG. 7. — Courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$ pour le niobium de haute pureté.

courbes $\varepsilon = f(\theta)$; en ce qui concerne les contraintes, les deux températures caractéristiques restent sensiblement les mêmes ; on observe d'autre part une légère augmentation des températures caractérisant les extrema de la courbe des allongements :

Des minima apparaissent successivement vers 280-290 °C, et vers 520-530 °C, et le maximum intermédiaire se produit vers 410-420 °C.

Par ailleurs, la hauteur du pic intermédiaire de la courbe $\sigma = f(\theta)$ est moins grande que dans les deux cas précédents.

Ainsi donc, en comparant toutes ces températures caractéristiques, pour les trois puretés de métal, on voit qu'il est toujours possible de définir grossièrement cinq domaines de températures, qui traduisent une évolution particulière de la déformation plastique du niobium non allié, en fonction de la température croissante.

On constate, en outre, que les températures auxquelles apparaissent les extrema des courbes $\varepsilon = f(\theta)$, sont d'autant plus élevées que le métal est plus pur ; pour autant la pureté du matériau semble ne pas influer sur les températures caractéristiques des courbes $\sigma = f(\theta)$. La figure 8 permet d'ailleurs d'apprécier ce déplacement, particulièrement marqué pour les deux première extrema des courbes $\varepsilon = f(\theta)$.

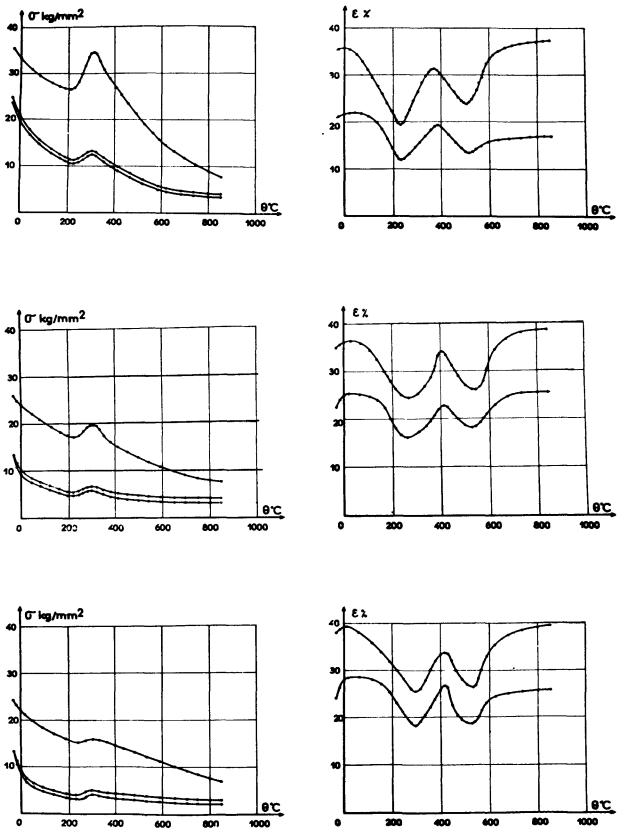

FIG. 8. — Courbes récapitulatives pour les trois puretés de matériau.

La comparaison de ces 6 courbes, groupées 3 à 3, permet en outre de constater que pour les contraintes, l'amplitude du « pic » observé est d'autant plus importante que le matériau est moins purifié. Par contre, les courbes d'évolution des allongements

présentent des dénivellations d'amplitude peu différente. En fait, dans le cas du niobium de pureté commerciale, on trouve pour le premier minimum, une amplitude supérieure à celles observées pour les deux autres types de matériau : (Tableau II).

TABLEAU II

Amplitude des « creux » de $\varepsilon_R = f(\theta)$ pour les trois nuances de métal

Amplitude	$\Delta\varepsilon_1$ %	$\Delta\varepsilon_2$ %	$\Delta\varepsilon_3$ %
Pureté commerciale	16,5	12	8
Pureté améliorée	13	10	8
Haute pureté	12	8,5	8

En résumé, pour l'ensemble des trois lots, on peut distinguer 5 domaines caractéristiques de température, qui sont approximativement :

— de 20 à 250 °C environ : σ et ε décroissent conjointement,

— de 250 à 300 °C environ : σ et ε croissent simultanément,

— de 300 à 400 °C environ : σ décroît alors que ε croît,

— de 400 à 500 °C environ : σ et ε décroissent simultanément,

— de 500 à 850 °C environ : σ décroît tandis que ε croît.

TABLEAU III

Valeurs des extrema des courbes $\sigma = f(\sigma)$ pour les trois nuances de niobium

Extremum	Pureté	θ °C	σ_R kg/mm²	$\sigma_{0,2}$ kg/mm²	σ_E kg/mm²
	Commerciale	220-230	26,5	11,4	10,5
Minimum	Améliorée	220-230	17,3	5,6	4,9
	Haute pureté	230-240	15	4,3	3
	Commerciale	310	34,5	13,4	12,5
Maximum	Améliorée	310	19,5	6,5	5,8
	Haute pureté	310	16	5,3	4

Ainsi donc, on voit que pour les contraintes, le degré de pureté influe principalement sur la hauteur du pic observé vers 310 °C, par contre, pour les allongements, on observe surtout, en fonction de la pureté croissante du matériau, un déplacement des températures des extrema, sans que pour autant, l'amplitude des « creux » n'évolue de façon notable, si ce n'est dans le cas du premier minimum.

Les valeurs des caractéristiques mécaniques correspondant aux divers extrema des courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$, pour les trois puretés considérées sont réunies dans deux tableaux III et IV. Il convient de souligner que les extrema de σ et ε, ne sont pas concordants et que l'écart entre la température du maximum des contraintes et celle du maximum des allongements augmente lorsque la pureté croît.

TABLEAU IV

Valeurs des extrema des courbes $\varepsilon = f(\theta)$ pour les trois puretés de métal

Extremum	Pureté	θ °C	ε_R %	ε_M %
	Commerciale	220-230	19,5	12
Minimum	Améliorée	250-260	24,5	16,5
	Haute pureté	280-290	25,5	18
	Commerciale	370-380	31,5	19,5
Maximum	Améliorée	400-410	34	24
	Haute pureté	410-420	34	27
	Commerciale	500-510	24	13,5
Minimum	Améliorée	520-530	26	18
	Haute pureté	520-530	26,5	18,5

IV. **Discussion.** — De nombreux auteurs [5] [9] [10] [11] [12] [13] [14], ont obtenu des résultats semblables aux nôtres, pour les courbes $\sigma = f(\theta)$. Presque tous ont trouvé un maximum intermédiaire vers 300 °C. Toutefois, le minimum qui le précède n'a pas toujours été trouvé : dans ce cas, la courbe $\sigma = f(\theta)$ présente généralement un palier entre 200 et 350 °C. En ce qui concerne les allongements, les pointés effectués par la plupart des expérimentateurs ont souvent été trop espacés pour permettre un tracé précis, directement comparable aux nôtres.

Par contre, des études similaires, effectuées sur le tantale, par d'autres auteurs [15] [16] [17] [18] [19] [20], ont abouti à des courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$ identiques à celles rassemblées dans les figures 5, 6, 7 et 8.

Comme pour tous les métaux de structure cubique centrée, les impuretés interstitielles jouent un rôle prépondérant dans ce domaine de température : (0,1 *Tf* à 0,3 *Tf*).

Ainsi, de nombreuses études ont déjà montré l'existence, dans le niobium, d'un phénomène de vieillissement après déformation ou « strain-aging ». La méthode classique du retour du yield point nous a permis d'en confirmer l'existence, pour les trois nuances considérées. De même un certain nombre d'auteurs ont également mentionné l'apparition d'un phénomène Portevin-Le Châtelier, dans un domaine de température situé vers 250-300 °C. Nos propres essais de tractions systématiques, qui avaient pour but de définir l'évolution de σ et de ε en fonction de la température, nous ont permis de délimiter les inter-

valles de température dans lesquels le phénomène Portevin-Le Châtelier se développe et ce, pour les trois nuances de niobium.

Vitesse traction	Pureté commerciale	Pureté améliorée	Haute pureté
—	—	—	—
$1{,}1 \times 10^{-3}\ s^{-1}$	145-350 °C	260-350 °C	270-350 °C

Selon Lubahn [21], le phénomène Portevin-Le Châtelier ne serait qu'une manifestation du phénomène de « strain-aging ». En fait, un certain nombre d'auteurs ayant étudié cette question de manière approfondie n'ont pas été aussi affirmatifs.

En effet, si les deux phénomènes relèvent bien d'un mécanisme identique : freinage ou ancrage des dislocations par des nuages d'impuretés, il existe néanmoins des cas où le phénomène Portevin-Le Châtelier existe, en l'absence de strain-aging : (ex : Al-Mg). Donc *a priori*, rien ne prouve de façon certaine que les deux phénomènes soient interdépendants.

Pour tenter de préciser quelque peu cette question, nous avons alors étudié plus particulièrement :

— d'une part, le phénomène Portevin-Le Châtelier pour chacun des types de niobium étudiés afin d'essayer d'interpréter ses effets sur la forme des courbes $\sigma = f(\theta)$ et $\varepsilon = f(\theta)$ dans l'intervalle de température intéressé ;

— d'autre part, le phénomène de « strain-aging », également pour chaque nuance de niobium.

IV.1 ETUDE DU PHÉNOMÈNE PORTEVIN-LE CHATELIER. — Selon les théories actuellement admises [22] [23] [24] [25], ce phénomène serait dû à l'existence d'une instabilité dynamique se produisant lorsque le coefficient de consolidation instantané $d\sigma/d\varepsilon$ décroît quand la vitesse de déformation $d\varepsilon/dt$ augmente. L'ancrage des dislocations par des impuretés peut relever de deux mécanismes activés thermiquement et qui sont :

— soit la diffusion des atomes interstitiels qui se rassemblent sous forme de nuages [26] ; la courbe de traction obtenue est alors du type 1 (Fig. 9) ;

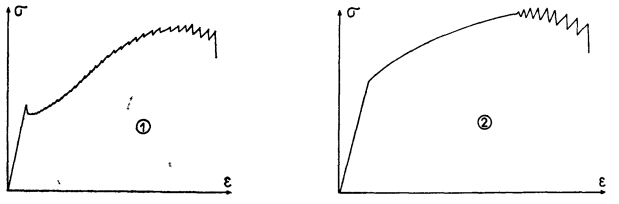

FIG. 9. — Aspect des deux types de courbes de traction obtenues, selon le mécanisme contrôlant le phénomène Portevin-Le Châtelier.

— soit la diffusion des lacunes, qui migrent vers les crans, ce qui permet aux dislocations de monter en position d'équilibre stable, où elles sont bloquées (notamment par des impuretés métalliques). Dans ce cas une déformation plastique de taux variable est nécessaire avant le premier crochet [27] ; cette déformation minimale nécessaire décroît quand la température augmente. La courbe de traction obtenue alors est du type 2 (Fig. 9).

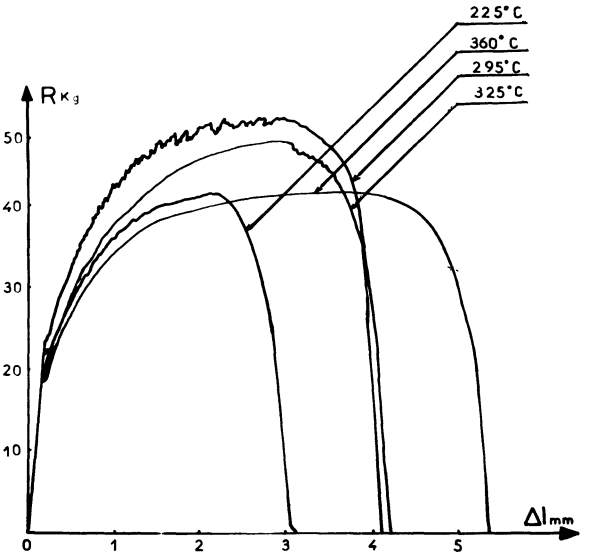

FIG. 10. — Courbes expérimentales mettant en évidence le phénomène Portevin-Le Châtelier pour le niobium de pureté commerciale.

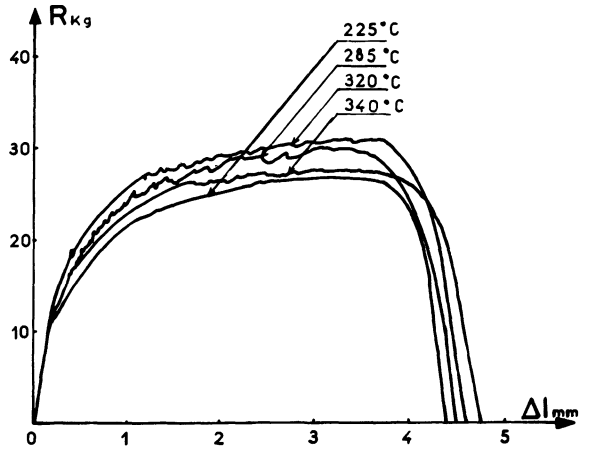

FIG. 11. — Courbes de traction obtenues pour le niobium de pureté améliorée.

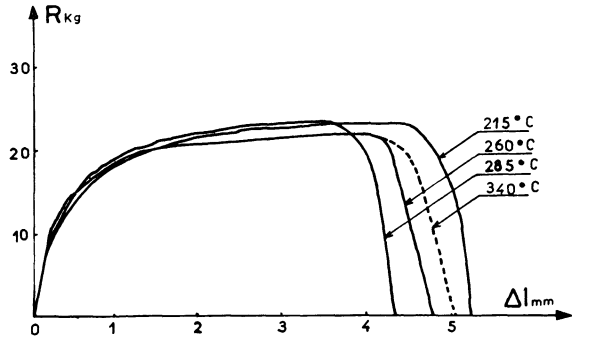

FIG. 12. — Courbes expérimentales obtenues pour le niobium de haute pureté.

Dans le cas du niobium, de même que pour tous les métaux de structure cubique centrée non alliés, la plupart des auteurs [10] [14] [23] [24] [25] [26] [28] [29] [30] s'accordent à penser que la seule diffusion des impuretés interstitielles contrôle l'évolution du phénomène. D'après les courbes des figures 10, 11 et 12, les hachures commencent en effet aussitôt après le palier (s'il existe), ou sinon dès la limite élastique. Ce fait tend à étayer cette interprétation. Seul, le niobium de pureté commerciale donne des courbes expérimentales d'aspect très différent entre 310 et 350 °C, comme le montre la figure 10. En fait, bien que ces courbes semblent identiques à celles du second type (Fig. 9), le mécanisme mis en jeu n'est pas un mécanisme de diffusion de lacunes. En effet, lorsque la température d'essai augmente, la déformation minimale avant l'apparition du premier crochet, croît au lieu de diminuer. Ce retard au déclenchement des hachures pourrait être dû à un mécanisme d'ancrage faisant intervenir les impuretés métalloïdiques telles que l'oxygène, l'azote et le carbone en sites substitutionnels [29] [30] [31].

Dans le but de déterminer l'élément probablement responsable du phénomène, nous avons effectué une série d'essais de traction, sur les trois nuances de métal, avec une vitesse de traction dix foix plus petite que celle adoptée lors des essais systématiques.

En effet, la vitesse de déformation $\dot{\varepsilon}$, est un des facteurs qui exercent une influence prépondérante sur le phénomène. Comme celui-ci est thermiquement activé, on peut calculer sa chaleur d'activation grâce à une relation de la forme :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{d\varepsilon}{dt} = C \exp\left(-\frac{Qa}{RT}\right).$$

Ayant déterminé les températures d'apparition des hachures, pour les deux vitesses de traction adoptées, on peut en déduire la valeur de Qa correspondante.

Les domaines d'existence du phénomène et les chaleurs d'activation calculées à partir des températures d'apparition des hachures, sont rassemblés dans le tableau V.

TABLEAU V

Domaines d'existence du phénomène Portevin-Le Châtelier et énergies d'activation correspondantes, pour les trois puretés de niobium.

$\dot{\varepsilon}$	Pureté commerciale	Pureté améliorée	Haute pureté
—	—	—	—
$1{,}1 \times 10^{-3}\ s^{-1}$	145-350 °C	260-350 °C	270-350 °C
$1{,}1 \times 10^{-4}\ s^{-1}$	105-310 °C	215-310 °C	220-310 °C
Q_a cal/mole	24 500	26 600	24 600

De ce tableau on peut conclure que :

a) Les domaines de température où apparaissent les hachures, respectivement pour chaque lot, se trouvent décalés d'environ 40 à 50 °C, vers les basses températures ;

b) les valeurs de l'énergie d'activation trouvées sont très voisines de celle obtenue pour la diffusion de l'oxygène dans le niobium, et qui est d'environ 27 000 cal/mole.

On peut donc penser que c'est l'oxygène qui est responsable du phénomène dans ce domaine de température.

En outre, en comparant les courbes obtenues avec ces deux vitesses de déformation, on constate que le nombre et l'amplitude des décrochements apparaissant sur les courbes, augmentent sensiblement lorsque la vitesse diminue, mais sans que leur périodicité soit pour autant plus régulière.

Nous avons ensuite comparé les courbes $\sigma_R = f(\theta)$ obtenues avec les deux vitesses de traction (Fig. 13). On constate que le « pic » caractéristique de ce type de courbe,

— augmente en amplitude,

— se trouve décalé vers les températures inférieures lorsque la vitesse de traction diminue.

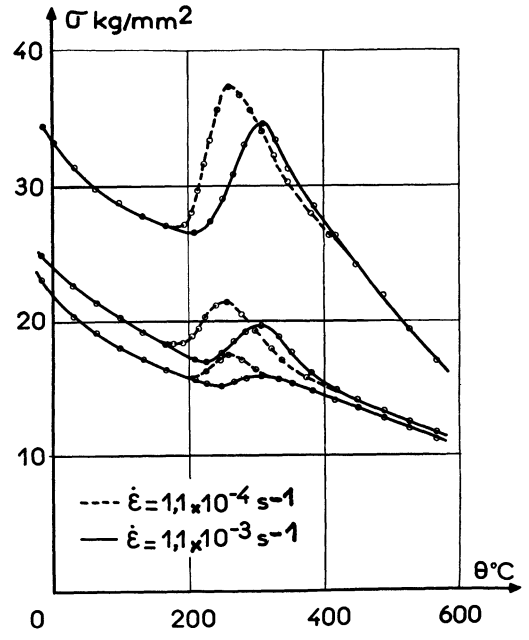

FIG. 13. — Courbes $\sigma_R = f(\theta)$ obtenues pour les trois nuances de métal, avec deux vitesses de traction.

Toutefois, les trois pics obtenus pour chaque nuance de niobium restent parfaitement alignés, et se situent à 260 °C environ, lorsque $\dot{\varepsilon} = 1{,}1 \times 10^{-4}\ s^{-1}$.

Enfin, nous avons tenté d'appliquer au cas du niobium, la formule liant la vitesse de déformation et le coefficient de diffusion de l'élément responsable du phénomène, soit :

$$\dot{\varepsilon} = 10^9\ D\ .$$

Cette relation trouvée empiriquement par Cottrell [27] lors d'une étude sur la diffusion de l'azote

dans le fer, a ensuite été prouvée théoriquement par Friedel [32]. Elle permet de prévoir la température d'apparition des hachures pour une vitesse de traction donnée : un certain nombre d'auteurs l'ont exploitée dans le cas de métaux de structure cubique centrée, autres que le fer, avec plus ou moins de succès.

En l'appliquant au cas des deux vitesses de traction utilisées, et pour les quatre éléments interstitiels présents dans le niobium, les températures trouvées sont indiquées dans le tableau VI.

On constate que les températures trouvées pour l'oxygène ne correspondent pas à celles pour lesquelles nous avons observé l'apparition de hachures ; en fait elles coïncident très exactement avec les températures auxquelles le phénomène Portevin-Le Châtelier

TABLEAU VI

Températures théoriques d'apparition des hachures, selon l'équation de Cottrell, pour les deux vitesses de déformation utilisées

Elément	Q_a cal/mole	$\dot{\varepsilon} = 1{,}1 \times 10^{-3}\ s^{-1}$	$\dot{\varepsilon} = 1{,}1 \times 10^{-4}\ s^{-1}$
—	—	—	—
H	9 400	— 60 °C	— 100 °C
O	27 000	310 °C	260 °C
C	33 000	485 °C	410 °C
N	35 000	500 °C	430 °C

est maximal. Néanmoins, cette formule permet de déterminer approximativement les domaines de température où l'on peut s'attendre à trouver un effet Portevin-Le Châtelier, à condition que la vitesse de traction permette son observation.

L'hydrogène est contenu en trop petite quantité dans les trois nuances de niobium étudiées pour provoquer un effet visible [33].

Par contre, les quantités d'azote et de carbone présentes dans les matériaux considérés devraient pouvoir produire un effet observable. Or, vers 490-535 °C nous avons noté l'existence de très légers décrochements, d'ailleurs peu nombreux, sur les courbes de traction obtenues à $1{,}1 \times 10^{-3}\ s^{-1}$ dans le cas du niobium de pureté commerciale. Nous avons donc entrepris une étude plus approfondie de cette zone de température (400 à 550 °C environ), avec la vitesse de traction la plus basse déjà utilisée pour l'exploration des températures inférieures (200-400 °C). Bien que les essais correspondants ne soient pas achevés, ils mettent en évidence sans ambiguïté l'existence d'un second phénomène Portevin-Le Châtelier aux environs de 400 °C.

Au terme de cette étude, nous pouvons donc conclure que le phénomène Portevin-Le Châtelier, associé principalement à la diffusion de l'oxygène, est responsable du pic observé sur les courbes d'évolution des contraintes en fonction de la température (Fig. 8). D'autre part, il est vraisemblable qu'un second pic de moindre amplitude doit être observé, pour $\dot{\varepsilon} = 1{,}1 \times 10^{-4}\ s^{-1}$, aux environs de 400 °C, correspondant à un Portevin-Le Châtelier associé à la diffusion de l'azote et du carbone.

IV.2 ETUDE DU STRAIN-AGING. — De nombreux auteurs ont étudié le strain-aging dans le cas du niobium ; en particulier les études récentes de Szkopiak et ses collaborateurs [7] [8] permettent d'envisager une interprétation possible des courbes $\varepsilon = f(\theta)$ et $\sigma = f(\theta)$. En effet, ces auteurs ont principalement mis en évidence et étudié un phénomène de strain-aging statique ; les conditions expérimentales permettant de le développer étaient les suivantes :

— déformation préalable de 3 à 10 %,

— recuits postérieurs de durée variable, effectués à des températures comprises entre 100 et 220 °C environ.

Par ailleurs, ces auteurs ont étudié le comportement du métal par frottement intérieur ; ils ont montré que le pic caractéristique de l'oxygène augmente continûment depuis 100 °C jusqu'à 220 °C. En outre, les valeurs trouvées pour les coefficients de diffusion des trois éléments interstitiels principaux, respectivement à 100, 200 et 300 °C, sont réunies dans le tableau VII.

TABLEAU VII

Valeurs des coefficients de diffusion de O, C *et* N *dans le niobium, à* 100 °C, 200 °C *et* 300 °C *(d'après Szkopiak et al.)*

Elément	$D_{100\,°C}$ cm²/s	$D_{200\,°C}$ cm²/s	$D_{300\,°C}$ cm²/s
—	—	—	—
O	$6{,}47 \times 10^{-18}$	$1{,}32 \times 10^{-14}$	$1{,}74 \times 10^{-12}$
C	$2{,}59 \times 10^{-22}$	$2{,}78 \times 10^{-18}$	$1{,}24 \times 10^{-15}$
N	$4{,}07 \times 10^{-23}$	$9{,}11 \times 10^{-19}$	$5{,}61 \times 10^{-16}$

Ces résultats prouvent que l'oxygène peut diffuser à partir de températures assez basses. Lorsque la température augmente, la diffusion du carbone ou de l'azote peut alors progressivement devenir possible ; ces éléments se substituent alors à l'oxygène pour créer l'ancrage des dislocations.

De fait, au cours de nos essais sur les trois nuances de niobium étudiées, nous avons mis en évidence qu'une décharge suivie immédiatement d'une remise sous charge provoquait déjà un retour du yield-point ou du palier.

Ceci est valable, quelle que soit la nuance considérée, aussi bien pour des températures comprises entre 25 °C et la température d'apparition des hachures, que pour les températures comprises entre celle correspondant à la disparition des hachures et 500 °C environ. On peut donc supposer que pendant l'essai de traction il se produit un phénomène de strain-aging dynamique s'amplifiant d'ailleurs avec la température, et précédant le phénomène Portevin-Le Châtelier.

Cette hypothèse permettrait d'expliquer de façon satisfaisante l'allure des courbes $\varepsilon = f(\theta)$ et $\sigma = f(\theta)$. En effet, les températures caractérisant les minima observés sur les courbes $\varepsilon = f(\theta)$ correspondent au déclenchement du phénomène Portevin-Le Châtelier. On notera que pour le niobium de pureté commerciale, si les hachures dues à l'oxygène apparaissent plus tôt (145 °C) leur importance en amplitude et en nombre reste très faible jusqu'à 220 °C environ, température à laquelle se produit le minimum d'allongement. Quant au phénomène Portevin-Le Châtelier dû à l'azote et au carbone, s'il n'a pas encore été possible de le mettre parfaitement en évidence lors des essais systématiques à $1{,}1 \times 10^{-3}\ s^{-1}$, de récents essais effectués avec une vitesse inférieure ($1{,}1 \times 10^{-4}\ s^{-1}$), ont permis de le faire apparaître sans ambiguïté. On peut donc penser que la déformation plastique du niobium pourrait être valablement interprétée, d'une part en faisant intervenir un phénomène de strain-aging dynamique suivi d'autre part d'un phénomène Portevin-Le Châtelier ; ces deux phénomènes seraient principalement liés à la diffusion de l'oxygène. A température plus élevée, un nouvel effet de strain-aging dynamique opérerait suivi également d'un phénomène Portevin-Le Châtelier : cette fois les deux mécanismes seraient dus à la diffusion du carbone et de l'azote. Chaque groupe de mécanisme serait donc caractérisé :

— pour le strain-aging dynamique, par une *décroissance* simultanée de $\varepsilon = f(\theta)$ et de $\sigma = f(\theta)$,

— pour ce qui est du phénomène Portevin-Le Châtelier, par une *croissance* simultanée de $\varepsilon = f(\theta)$ et de $\sigma = f(\theta)$.

L'interprétation de l'accroissement de l'allongement observé dans le domaine d'existence des hachures s'expliquerait par les relaxations brutales survenant à la faveur des différents crochets. En effet, il est prouvé [24] [29] que pendant les chutes temporaires de contrainte, la vitesse de déformation instantanée de la zone de relaxation est très nettement supérieure à la vitesse de traction de la machine.

Conclusion. — En conclusion, bien qu'un certain nombre d'essais complémentaires soient nécessaires pour confirmer les hypothèses émises, il s'est néanmoins avéré possible de proposer une interprétation des mécanismes contrôlant la déformation plastique du niobium entre 25 °C et 850 °C. Cette interprétation fait intervenir successivement la diffusion des atomes d'oxygène en insertion dans le métal, puis celle des atomes de carbone et d'azote. Ces éléments produisent successivement un effet de strain-aging dynamique et un phénomène Portevin-Le Châtelier. On peut alors décrire l'évolution de la déformation plastique du niobium non allié par une succession de domaines de température, caractérisant un effet particulier d'un ou de plusieurs éléments en insertion dans le réseau du métal. Si l'on considère par exemple le niobium de pureté améliorée, on trouve :

— de 25 à 260 °C : σ et ε décroissent simultanément.

— L'oxygène crée un effet de strain-aging dynamique qui fait décroître ε sans que σ soit affecté suffisamment pour inverser le sens général d'évolution de cette dernière caractéristique ;

— de 260 à 350 °C : σ et ε croissent parallèlement.

— L'oxygène crée une surconsolidation très importante qui fait croître σ, tandis que ε augmente par suite des relaxations répétées dues aux discontinuités de contraintes ;

— de 350 à 400 °C : σ décroît alors que ε croît.

— On retrouve l'évolution classique des contraintes et des allongements d'un matériau métallique normal. En effet, l'effet de surconsolidation dû aux nuages d'oxygène s'estompe progressivement ;

— de 400 à 520 °C : σ et ε décroissent conjointement.

— Ce fait est lié au strain-aging dynamique créé par les atomes de carbone et d'azote en insertion. L'effet est identique à celui produit par l'oxygène entre 25 et 260 °C ;

— de 520 à 850 °C : σ décroît tandis que ε croît.

— Dans la première partie de cet intervalle, on peut suspecter la présence d'un effet Portevin-Le Chatelier très peu marqué. Toutefois on n'observe pas de pic caractéristique de cet effet sur la courbe $\sigma = f(\theta)$ du moins pour la vitesse de traction adoptée (0,1 cm/mm soit $1{,}1 \times 10^{-3}\ s^{-1}$). L'évolution de σ et de ε est donc une évolution normale en fonction des températures croissantes.

Remerciements. — Nous remercions vivement la Direction des Recherches et Moyens d'Essais (Délégation Ministérielle pour l'Armement) et en particulier Monsieur le Commandant Fournet qui a toujours porté un grand intérêt à ces travaux et nous a facilité la tâche, à la fois sur le plan financier et scientifique.

Les études ont été effectuées au Laboratoire de Métallurgie de la Faculté des Sciences d'Orsay.

Bibliographie

[1] JEAN-LOUIS (F.), CIZERON (G.) et PERRIER (J.), *Mém. Sc. Rev. Mét.*, 1965, **6**.

[2] WILLHELM (A. C.) and KATTUS (J. R.), *South. Res. Inst., Ist Quart. Rept.*, 1960, 4483, 1169, III, AF 33 (616), 7057.

[3] IMGRAM (A. G.), HOLDEN (F. C.), OGDEN (H. R.) and JAFFEE (R. I.), Battelle Mem. Inst. Rept. 1960, WADC-TR 60-278, AF 33 (616), 6291.

[4] IMGRAM (A. G.), MALLETT (M. W.), KOEHL (B. G.), BARTLETT (E. J.) and OGDEN (H. R.), Batt. Mem. Inst. Sum. Rept., 1961, ASD. TR 61-474, AF 33 (616), 7604.

[5] BEGLEY (R. T.) and PLATTE (W. N.), Westinghouse Res. Lab. Rept. 1960, WADC. TR 57-344 ; IV-AF 33 (616), 57544.
[6] BEGLEY (R. T.) and FRANCE (L. L.), Sp. Tech. Pub. STP 272, ASTM, 1959, 56.
[7] SZKOPIAK (Z. C.) and DERRY (L. W.), *J. Nucl. Mat.*, 1964, **13,** 2, 130.
[8] SZKOPIAK (Z. C.) and MIODOWNIK (A. P.), *J. Nucl. Mat.*, 1965, **17,** 1, 20.
[9] WESSEL (E. T.) and LAWTHERS (D. D.), The Technology of Cb, John Wiley, 1958, 66.
[10] WESSEL (E. T.), FRANCE (L. L.) and BEGLEY (R. T.), Columbium Metallurgy, Interscience Publishers, 1961, 459.
[11] DYSON (B. F.), JONES (R. B.) and MC TEGART (W. I.), *J. Inst. Met.*, 1959, **87,** 340.
[12] MINCHER (A. L.) and SHEELY (W. F.), Met. Cong. AIME, Cleveland, 1958.
[13] VAUGHAN (H. G.) and ROSE (R. G.), U. K. A. E. A. Ind. group. Headquarters Risley, Warrington (Lancashire), Rept. I. G. R. T. Nic 583, 1958.
[14] ENRIETTO (J. G.) and SINCLAIR (G. M.), Univ. of Illinois, TAM Rept. N° 567, USAEC Cont. AT (11-1), 1959, 67.
[15] PUGH (J. W.), *Trans ASM*, 1956, **48,** 677.
[16] PINK (E.), Planseeberichte für pulvermetallurgie, 1966, Bd. 14, n° 3.
[17] PINK (E.) und BENESOVSKY (F.), Planseeberichte für pulvermetallurgie, 1967, Bd. 15.
[18] BECHTOLD (J. H.), *Acta Met.*, 1955, **3,** 249.
[19] KATTUS (J. R.) and DOTSON (C. L.), South. Res. Inst. Rept., 1955, WADC-TR 55-391.
[20] SCHMIDT (F. F.), KLOPP (W. D.), MAYKUTH (D. J.), OGDEN (H. R.) and JAFFEE (R. I.), Batt. Mem. Inst. Sum. Rept., 1961, WADD-TR 61-106, AF 33 (616) 5668.
[21] LUBHAN (J. D.), *Trans ASM*, 1952, **44,** 643.
[22] SLEESWYCH (A. W.), *Acta Met.*, 1958, **6,** 598.
[23] FRIEDEL (J.), Dislocations, Pergamon Press, 1964, 413.
[24] SIMON (J.), CAISSO (J.), GUILLOT (J.) et VIOLAN (P.), *Mém. Sc. Rev. Mét.*, 1964, **12,** 841.
[25] MOUTURAT (P.), ROMEGGIO (M.), SAINFORT (G.) et CABANE (G.), *Mém. Sc. Rev. Mét.*, 1966, **12,** 1059.
[26] COTTRELL (A. H.), Report of Conference on Strength of Solids, Bristol, 1947.
[27] COTTRELL (A. H.), *Phil. Mag.*, 1953, **44,** 829.
[28] MANJOINE (M. J.), *Trans ASME*, 1944, **66,** 241 A.
[29] CAISSO (J.), Thèse Poitiers, 1958, Pub. Sc. Techn. Min. Air, N° 357.
[30] TAMHANKAR (R.), PLATEAU (J.) et CRUSSARD (C.), Journées Mét. Automne, Paris, 1957.
[31] CRUSSARD (C.), *Rev. Mét.*, 1958, **55,** 383.
[32] FRIEDEL (J.), Dislocations, Pergamon Press, 1964, 412.
[33] WILCOX (B. A.) and HUGGINS (R. A.), Columbium Metallurgy, 1961, 257.