

V. Comportement mécanique du tantale

V.1. Généralités sur le tantale

V.1.1. Utilisation du tantale

L'électronique constitue son champ d'application principal : son point de fusion élevé, son faible coefficient de dilatation, sa facilité de mise en œuvre (grande ductilité et aptitude au soudage), ses bonnes conductivités thermique et électrique sont ses atouts pour la réalisation de grilles, plaques.... Il fut aussi utilisé pour la fabrication de lampes à incandescence avant d'être supplanté par le tungstène, mais il demeure dans la composition de filaments dans les tubes à haute fréquence. Le métal recouvert de sa couche d'oxyde est employé dans la fabrication de condensateurs et redresseurs électrolytiques.

L'industrie chimique exploite surtout sa remarquable résistance aux acides, son très haut point de fusion et sa conductibilité thermique. En particulier son rôle essentiel dans les industries des acides chlorhydrique et sulfurique, du phénol peut être signalé.

Le tantale apparaît dans la composition de prothèses pour sa bonne compatibilité avec les tissus vivants (chair et os) qui s'y adhèrent fortement.

Enfin, sa grande ductilité et sa forte densité le font apprécier dans l'industrie nucléaire et dans l'armement.

En dépit de ses nombreuses propriétés son usage est limité en raison de sa rareté et donc son coût.

V.1.2. Elaboration du tantale [Pascal 1958]

V.1.2.1. Extraction

Dans la nature, le tantale est toujours associé au niobium (aussi appelé colombium par les anglo-saxons). Les minerais apparaissent sous forme de pentoxydes (Ta_2O_5 , Nb_2O_5) mélangés avec d'autres oxydes (silicium, fer principalement) desquels ils sont extraits par épuration et attaques par différents acides. La phase de séparation entre le tantale et le niobium est délicate du fait de leurs propriétés physico-chimiques très voisines. Elle passe par la transformation des oxydes en fluo-acides en solution aqueuse. Cette solution est purifiée dans une colonne de distillation au moyen d'un solvant organique, le méthylisobutylcétone qui entraîne les fluo-sels de

tantale, le niobium demeurant dans la phase aqueuse. Les halogénures de tantale sont dissociés par électrolyse, par chauffage ou réduction par un élément alcalin (sodium principalement). La poudre de tantale issu de ces procédés est enfin lavée par des acides.

V.1.2.2. Agglomération et mise en forme

L'agglomération du tantale par fusion est difficile en raison de son caractère (point de fusion proche de 3000°C). De plus, il présente à chaud une grande affinité pour la plupart des gaz (oxygène, hydrogène, azote) et attaque les creusets. Trois procédés sont développés pour l'obtenir sous forme massive :

- le frittage;
- la fusion sous vide à l'aide d'un arc comportant deux électrodes de tantale aggloméré par compression;
- la fusion par bombardement électronique sous vide.

Des trois méthodes, la dernière conduit à la meilleure pureté mais les grains obtenus sont généralement plus gros que dans le tantale fritté.

Le tantale présentant une grande ductilité, sa mise en forme se fait à froid par des moyens classiques de laminage, tréfilage, emboutissage, estampage... Des recuits intermédiaires ou finals sont parfois nécessaires lorsque le métal est trop durci par écrouissage. Ces recuits sont de deux types :

- de restauration entre 700 et 900°C ;
- de recristallisation entre 1050 et 1500°C .

Ils doivent impérativement être effectués sous un vide secondaire afin d'éviter une pollution par les éléments présents dans l'air.

V.2. Propriétés chimiques

Le tantale se caractérise par sa résistance remarquable à la corrosion, comparable à celle du platine [Pascal 1958]. Il doit cette excellente tenue à un film d'oxyde Ta₂O₅ qui le recouvre et lui assure une autoprotection très efficace.

V.2.1. Action de l'hydrogène

L'hydrogène est fortement absorbé par le tantale à partir de 200°C. Il diffuse dans la maille cristalline et on ne note pas de film d'hydrures à la surface. L'hydrogène absorbé a un effet fragilisant sur le tantale [Falanga 1982], l'allongement à striction passe de 29% à 3% à -40°C lorsque la teneur en hydrogène croît de 24 à 46 ppm. Cependant, l'hydrogène peut être en grande partie éliminé par chauffage sous vide entre 800 et 1200°C.

V.2.2. Action de l'azote

Il faut monter à des températures de 1100°C pour que le tantale fixe l'azote de manière notable. Le tantale dissout environ 5 atomes % d'azote [Pascal 1958]. Le reste de l'azote absorbé forme du nitrure de tantale TaN dont l'action durcissante réduit la ductilité (figure V-1).

V.2.3. Action de l'oxygène

La résistance à l'oxydation est bonne jusqu'à 300°C. La diffusion lente de l'oxygène à température ambiante est à l'origine des phénomènes de vieillissement : les atomes d'oxygène se déplacent au cours du temps vers les dislocations. Cela entraîne un phénomène d'ancrage et augmente la contrainte d'écoulement. Cette diffusion devient très rapide aux températures nécessaires pour effectuer l'opération de frittage (1700-2200°C). Il est donc très difficile d'obtenir par cette méthode un tantale exempt d'oxygène. Aux températures voisines de 400°C, l'oxygène est à l'origine de l'effet Portevin-Lechatellier [Falanga 1979].

Puhr, Westerheide et Elssner [1970] donnent la formule suivante reliant, aux vitesses quasistatiques, la limite d'élasticité et les concentrations en azote et oxygène :

$$\sigma_{Ly} = 124 + 677C_N + 392C_O$$

MPa % at % at

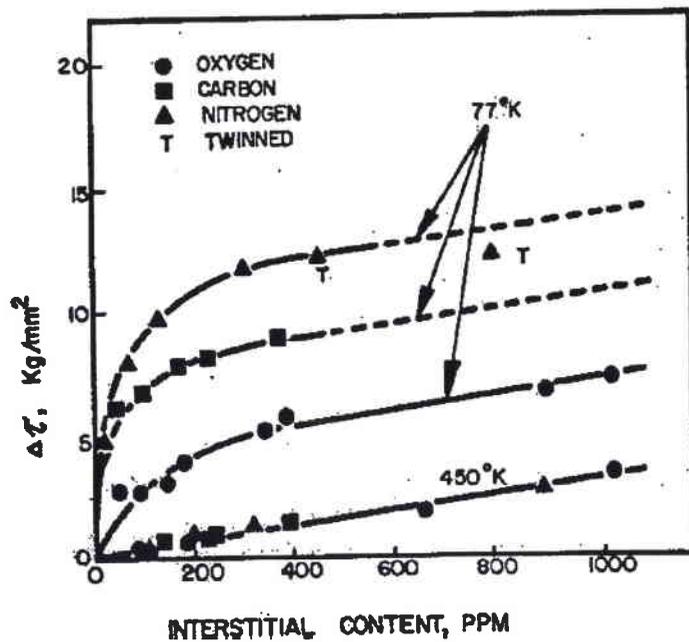


figure V-1 : influence de l'oxygène du carbone et de l'azote sur le comportement mécanique du tantale [Mitchell et Smialek 1970].

V.2.4. Action du carbone

La carburation devient importante à partir de 1200°C . Le carbone forme avec le tantale deux carbures TaC et Ta_2C qui le durcissent. [Pascal 1958]

V.3. Propriétés physiques

V.3.1. Aspect cristallographiques

[Goldsmith 1961], [Filyand 1969]

Le tantale, $73^{\text{ème}}$ élément du tableau périodique, partage la colonne Va avec le vanadium ($Z = 23$) et le niobium ($Z = 41$). Sa masse molaire vaut $180,948 \text{ g}$. Sa structure cristalline cubique centrée et son paramètre de maille a valant $0,3303 \text{ nm}$ à température ambiante ($0,3296 \text{ nm}$ à 0 K), sont identiques à ceux du niobium avec lequel le tantale présente une grande affinité. Ce faible paramètre de maille pour une telle masse atomique font du tantale un matériau « lourd » de masse volumique 16660 kg.m^{-3} à 25°C et 1 atm .

Comme tous les matériaux à structure cubique centrée, le tantale possède 12 systèmes primaires de glissement dans les directions $\langle 111 \rangle$ et les plans $\{110\}$ [Besnard 1984]. De plus,

les dislocations peuvent se déplacer dans les systèmes secondaires $\langle 111 \rangle \{112\}$. Les lignes de glissement ne sont en général pas rectilignes : à une même direction correspondent trois plans dans le système principal. (figure V-2)

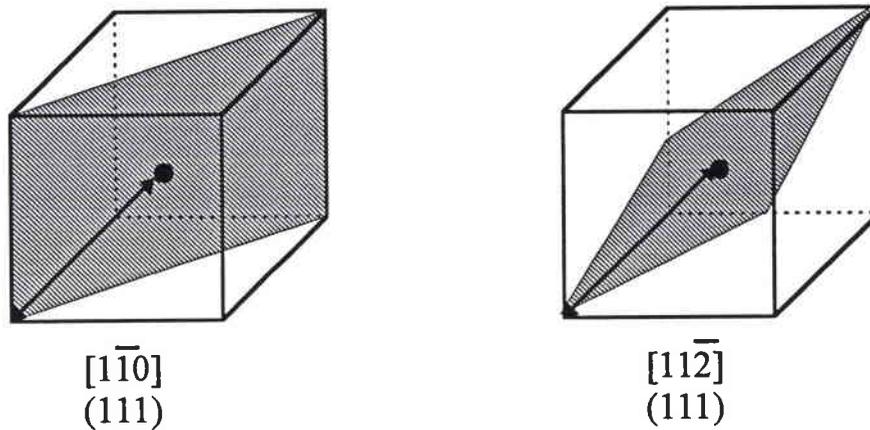


figure V-2 : systèmes de glissement du tantale

Barrett et Bakish [Barrett 1958] rapportent que les impacts sur du tantale produisent des macles de déformation dans les plans $\{112\}$ à 77 K mais pas à la température de l'azote liquide. Ils ont de plus observé des zones de rupture par clivage dans les plans $\{110\}$ et occasionnellement dans les plans $\{100\}$. Ils contredisent en cela Bechtold [Bechtold 1955] qui n'a rien observé de tel à 77 K. Ceci peut être expliqué par des différences de teneur en éléments interstitiels. Gray et Rollett [Gray 1992] montrent que la tension d'écaillage diminue lorsque la concentration en interstitiels augmente. En effet, comme nous l'avons déjà vu, une forte concentration en atomes d'oxygène entraîne un ancrage des dislocations. Le glissement est donc entravé et le matériau a plus facilement tendance à subir une déformation par clivage. La température de transition ductile-fragile est donc sensible aux éléments d'alliage et se situe en deçà de -196°C . Bechtold propose deux explications de la grande ductilité du tantale, inhabituelle chez les matériaux à structure C.C. :

la solubilité élevée de l'oxygène dans le tantale diminue la concentration d'oxydes dans les joints de grains favorisant ainsi une fissuration trans-granulaire.

la très haute énergie nécessaire pour produire le maillage mécanique (que l'on observe dans le tungstène, le molybdène et le fer α aux températures basses) atypique des matériaux à structure C.C. Ce second argument est retenu par Gray et Rollett [1992].

V.3.2. Propriétés thermiques

Le tableau V-1 résume l'évolution des principales constantes du tantale avec la température.

Température de fusion : $T_m = 3269 \text{ K}$

Température de vaporisation : $T_v \approx 5573 \text{ K} \pm 100 \text{ K}$

Chaleur latente de fusion : $L_f = 159 \text{ kJ.kg}^{-1}$.

Capacité calorifique : $C_p = 139,04 + 1,757 \cdot 10^{-2} (T-273) + 1,375 \cdot 10^{-6} (T-273)^2$
 C_p en $\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ $T \in [273, 1200 \text{ K}]$

Conductivité thermique : $\lambda = 56,4 + 0,022 (T-273) + 4,4 \cdot 10^{-6} (T-273)^2$
 λ en $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ $T \in [200, 2800 \text{ K}]$

Résistivité électrique $\rho = 125 + 3,8 (T-273)$
 ρ en $\text{n}\Omega.\text{m}$ $T \in [273, 373 \text{ K}]$

Coefficient de dilatation linéaire $\alpha = 6,5 + 3,4 \cdot 10^{-4} (T-273) + 1,2 \cdot 10^{-7} (T-273)^2$
 α en $\mu\text{m.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ $T \in [273, 373 \text{ K}]$

Tableau V-1 : constantes physiques du tantale

[Pascal 1958], [Goldsmith 1961], [Filyand 1969], [Falanga 1979], [Kittel 1989]

Nous pouvons retenir de ce tableau la température de fusion très élevée et la capacité calorifique que nous utiliserons pour calculer l'élévation de température au sein du cristal lors d'essais mécaniques sans diffusion de chaleur.

V.3.3. Constantes d'élasticité

En élasticité, la matrice de rigidité C_{ij} d'une structure cubique se ramène par raison de symétrie à 3 coefficients : C_{11} , C_{12} et C_{44} . En général, on détermine les modules de cisaillement $C = C_{44}$ dans le plan (100) et la direction $[010]$, $C' = (C_{11} - C_{12})/2$ dans le plan (110) et la direction $[1\bar{1}0]$, ainsi que le module de compressibilité $B = (C_{11} + 2C_{12})/3$ qui traduit la variation de volume du métal soumis à un chargement hydrostatique. Le facteur de Zener $A = C/C'$ mesure le degré d'anisotropie d'un cristal (A caractérise un matériau totalement isotrope tel le tungstène).

Par mesures ultrasonores, Fisher [1977], en concordance avec d'autres auteurs [Featherston 1963], aboutit à :

$$C_{11} = 265,91 \text{ GPa}$$

$$C_{12} = 161,12 \text{ GPa}$$

$$C_{44} = 82,35 \text{ GPa}$$

à température ambiante.

Rajendran et Garrett [1992] publient des valeurs proches :

$$C_{11} = 261 \text{ GPa}$$

$$C_{12} = 157 \text{ GPa}$$

$$C_{44} = 81,8 \text{ GPa}$$

à température ambiante.

On constate que le tantale est anisotrope ($A \cong 1,6$). Le module de cisaillement G du tantale monocristallin varie entre $C' = 52 \text{ GPa}$ et $C = 82 \text{ GPa}$ suivant la direction et le plan de sollicitation. De même, le module de Young est compris entre 144 GPa pour un chargement dans la direction $\langle 100 \rangle$ et 217 GPa dans la direction $\langle 111 \rangle$. Le comportement du tantale est donc sensible à la texture. La valeur du module de Young lors d'une traction dans la direction de cosinus directeurs l, m et n par rapport aux axes du cristal est donnée par la formule [Le Poac 1981] :

$$E_{100} = \frac{(C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12})}{(C_{11} + C_{12})}$$

$$\frac{1}{E} = \frac{1}{E_{100}} + \left(\frac{1}{C_{44}} - \frac{2}{C_{11} - C_{12}} \right) (l^2 m^2 + m^2 n^2 + n^2 l^2)$$

De récentes mesures ultrasonores effectuées au CEA/DAM sur un tantale Cabot polycristallin de grande pureté [Nadal 1995] donnent un module de Young E décroissant de 187 à 171 GPa lorsque la température passe de 20 à 1000°C . Dans cette gamme de températures, le module de cisaillement G varie entre 70 et 63 GPa et le coefficient de Poisson oscille autour de $0,346$. Ces résultats sont en conformité avec ceux de la littérature. ($E = 186 \text{ GPa}$, $G = 69 \text{ GPa}$, $\nu = 0,35$). Frost et Ashby [1982] proposent un coefficient de décroissance linéaire du module de cisaillement correspondant à $\frac{\partial G}{\partial T} = 8,9 \text{ MPa} \cdot \text{K}^{-1}$.

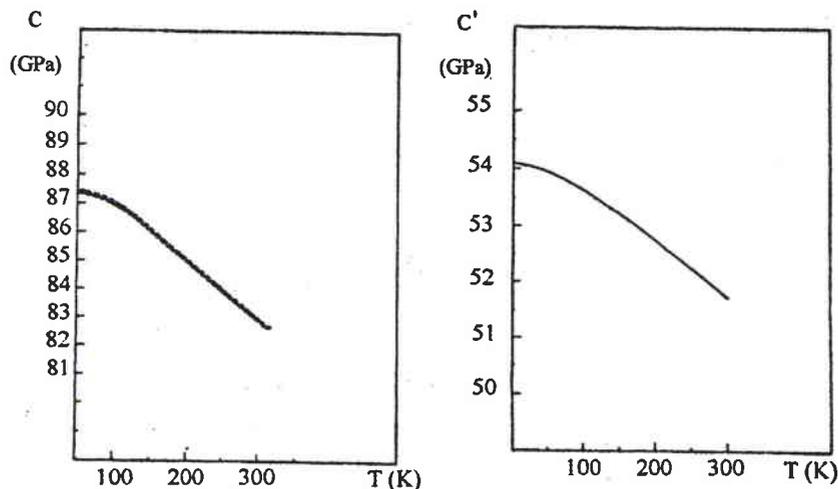


figure V-3: influence de la température sur les modules de cisaillement C et C' du tantale.

[Featherston 1963]

V.4. Comportement du tantale en plasticité

Le comportement mécanique est très sensible à la teneur en éléments interstitiels (hydrogène, azote, oxygène et carbone essentiellement). Ces concentrations ne doivent pas au total excéder 100 ppm pour pouvoir parler de tantale pur [Falanga 1979]. Le traitement thermique et le mode d'élaboration ont aussi une influence non négligeable. Comme le souligne Guillaume, il faut toujours noter les points suivants avant d'analyser des résultats concernant le tantale :

- le mode d'élaboration qui permet de distinguer deux classes de tantale; la première correspondant à un métal fondu dans un four à bombardement électronique (plusieurs fois le cas échéant) contient peu d'impuretés interstitielles contrairement à la seconde qui correspond à un métal fritté élaboré par métallurgie des poudres;
- la mise en œuvre et les traitements thermomécaniques intermédiaires ou finals qui déterminent l'état microstructural spécifique (densité de dislocations, orientations cristallographiques préférentielles...).

Ainsi les valeurs données dans la suite de ce paragraphe sont à utiliser avec beaucoup de prudence, d'autant que les compositions chimiques les procédés d'élaboration et de mise en œuvre ne sont pas toujours explicités par les différents auteurs.

V.4.1. Comportement du tantale monocristallin

V.4.1.1. Systèmes de glissement

La limite d'élasticité est définie macroscopiquement par la contrainte au delà de laquelle subsiste une déformation résiduelle lorsque le matériau est relâché. Dans les métaux, elle se manifeste par la perte de linéarité entre la contrainte et la déformation et l'apparition d'une partie d'allure parabolique. Ce phénomène est dû principalement à la création, au mouvement et au stockage des dislocations. Si leur teneur initiale est faible (inférieure à 10^4 - 10^6 cm^{-2}), la limite d'élasticité correspond à la création à partir de sources. Dans le cas contraire, elle coïncide avec la contrainte nécessaire pour les libérer. Ce mouvement se fait de manière préférentielle dans les plans cristallographiques denses. Cela justifie l'existence d'une *cission résolue critique* pour le glissement facile, contrainte de cisaillement critique à exercer sur un plan cristallographique dense. Elle se traduit par le rapport entre la limite élastique macroscopique et un facteur, appelé *facteur de Schmid et Boas*, caractérisant l'orientation de l'axe de traction par rapport au système de glissement du cristal. Alors que les matériaux à structure C.F.C. vérifient bien la loi de Schmid et Boas, cette loi est mal suivie par les matériaux à structure C.C. [François et al 1991]. Les résultats sur la nature des plans de glissement observés par les différents auteurs (Ferris Rose et Wulff [1962], Mitchell et Spitzig [1965], Byron et Hull [1967 et Byron 1968], Mordike et

Rudolph [1967]) diffèrent et sont souvent contradictoires. La forte influence des éléments interstitiels sur la valeur de la limite d'élasticité peut justifier une telle hétérogénéité de résultats. Cependant, on peut souligner les points suivants :

le glissement se produit dans les directions $\langle 111 \rangle$;

le choix du plan de glissement dépend fortement de la direction de sollicitation dans le repère cristallographique de l'échantillon ; la température et la vitesse de déformation ont une influence sur le plan choisi pour une même orientation ; certains auteurs observent que le glissement s'effectue dans les plans de cisssion résolue maximale, d'autres constatent un glissement suivant les plans cristallographiques $\{110\}$ et $\{112\}$; cette dépendance est décrite par les courbes $\psi(\chi)$ [Kroupa 1967] (cf. § V.4.1.2).

A 273 K, la dépendance de la limite d'élasticité d'un monocristal de tantale déformé en traction uniaxiale en fonction de la direction de sollicitation est cohérente avec un déplacement des dislocations cantonné dans les systèmes de glissement $\{110\} \langle 111 \rangle$ [Byron 1968]. Ferris, Rose et Wulff prétendent ne pas observer ce phénomène.

A 77 K et en traction, les conclusions de Byron sont beaucoup plus ambiguës.

En compression, le tantale ne suit plus une loi de Schmid et Boas. Byron justifie cette dépendance très complexe de la limite d'élasticité en fonction de la direction de sollicitation par des glissements sur des systèmes partageant une même direction.

V.4.1.2. Courbes $\psi(\chi)$

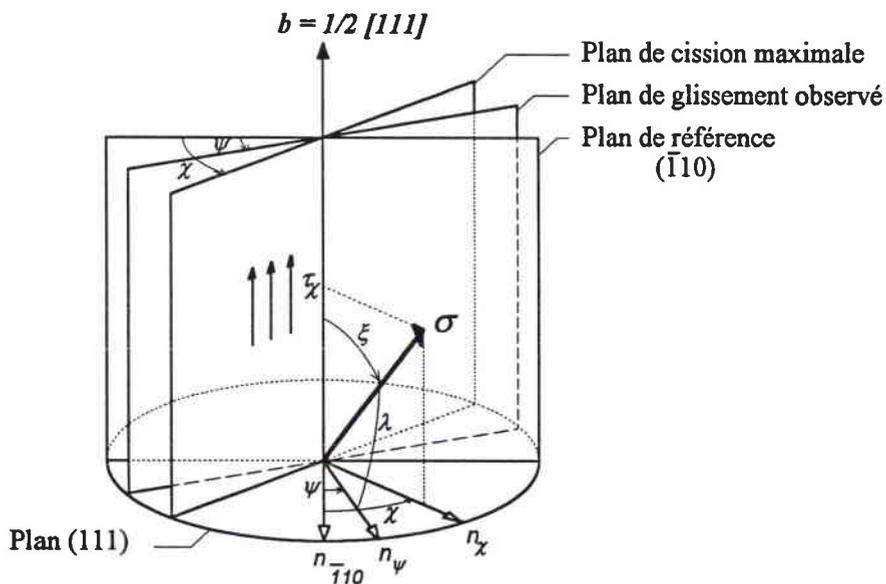


figure V-4 : orientation de la sollicitation dans le référentiel du cristal

Pour mettre en évidence l'inadaptation de la loi de Schmid et Boas aux matériaux à structure cubique centrée, on établit généralement la courbe reliant l'orientation de l'axe de traction avec le plan de glissement observé. L'orientation de la sollicitation est repérée par deux angles (figure V-4). Le premier ξ détermine l'écart entre l'axe de traction σ et la direction de glissement $\mathbf{b} = 1/2 [111]$. Le second, χ , caractérise la position du plan de cisssion maximale (contenant \mathbf{b} et orthogonal au plan défini par σ et \mathbf{b}) par rapport à un plan de référence - généralement un plan $\{110\}$ - contenant la direction de glissement. Un plan quelconque de la zone $[111]$ (c'est à dire contenant \mathbf{b}) peut être repéré soit par l'angle ψ qu'il forme avec le plan de référence, soit par l'angle λ entre sa normale et la direction de traction (figures V-4 et V-5).

La cisssion résolue sur ce plan quelconque vaut :

$$\tau_{\psi} = \cos \xi \cos \lambda \sigma = \cos \xi \sin \xi \cos(\chi - \psi) \sigma = \cos(\chi - \psi) \tau_{\chi}$$

Cette valeur est maximale lorsque $\chi = \psi$.

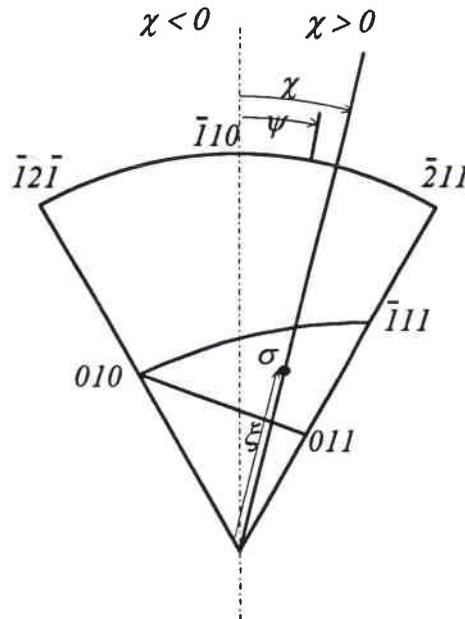


figure V-5 : orientation de la sollicitation dans la figure de pôle 110

Grâce aux symétries du cristal à structure cubique centrée, il est possible de limiter χ et ψ dans l'intervalle $[-30^\circ; 30^\circ]$. Notons que le passage de la traction à la compression (pour une même direction de sollicitation) transforme χ en $-\chi$. On établit alors une courbe donnant le plan de glissement observé (repérée par ψ) en fonction de la direction de sollicitation (repérée par χ). Les deux possibilités les plus simples sont les suivantes :

le glissement se fait uniquement sur les plans $\{110\}$ auquel cas $\psi = 0$ pour tout χ ;

le glissement se fait uniquement sur le plan de cisssion maximale auquel cas $\psi = \chi$ pour tout χ .

Les courbes $\psi(\chi)$ présentent la particularité de ne pas toujours être symétriques par rapport à l'origine, ou, autrement dit, le tantale n'adopte pas les mêmes systèmes de glissement en compression et en traction pour une direction de sollicitation donnée [Rogaush 1970], [Byron 1967]. (figure V-6)

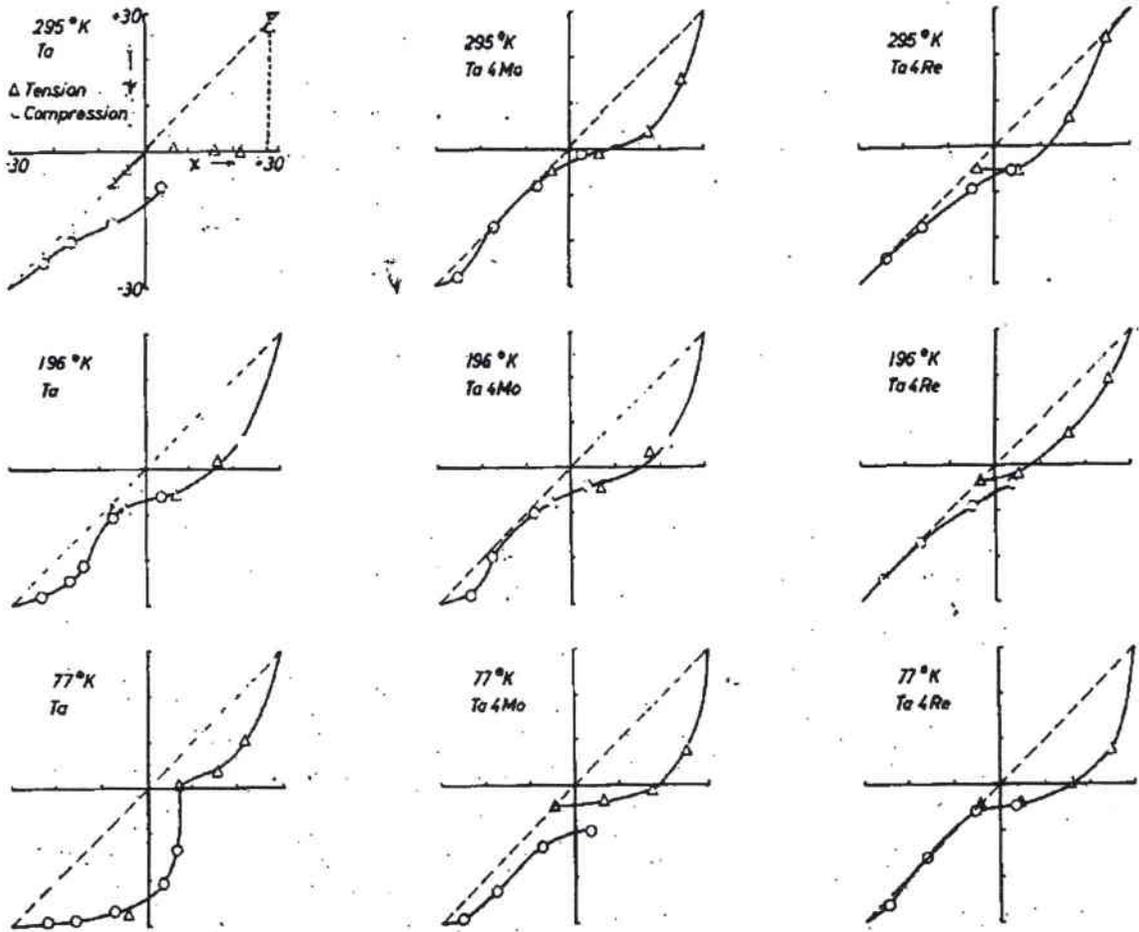


figure V-6 : courbes $\psi(\chi)$ du tantale et des alliages Ta Mo 3,8 et Ta Re 3,8

Sleeswyk [Vitek 1970] explique ce phénomène par le fait que les dislocations vis se dissocient de manière asymétrique en dislocations partielles *sessiles* sur deux plans $\{112\}$ non parallèles, ceci afin de réduire les énergies élastique au coeur de la dislocation.

$$1/2 [111] = 1/6 [111] + 1/3 [111]$$

Pour déplacer de telles dislocations, il faut d'abord les rendre *glissiles* c'est à dire dissociées sur le même plan. La compression et la traction, en ne les rabattant pas sur le même plan $\{110\}$ n'ont pas un effet symétrique. Cela permet de justifier les asymétries de la courbe $\psi(\chi)$.

V.4.1.3. Consolidation

Trois stades d'érouissage peuvent être observés pour des orientations de sollicitation au centre du triangle stéréographique dans une gamme de température comprise entre 200 et 573 K [Mordike 1967], [Mitchell 1965].

Le stade I correspond à un glissement facile des dislocations sur un unique système de glissement sans consolidation du matériau.

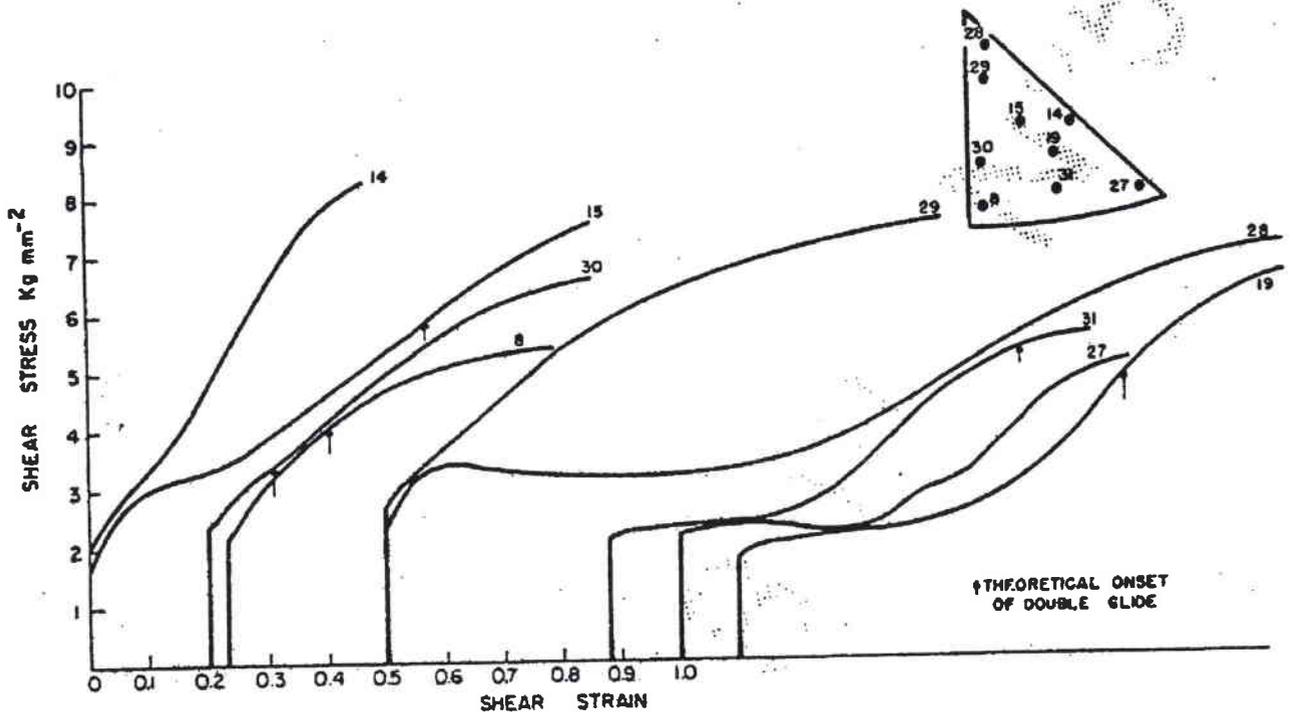
Le stade II est le siège d'un érouissage quasiment linéaire dû à l'apparition d'un second système de glissement.

Le stade III au cours duquel les dislocations changent de système de glissement pour se recombinaer (*glissement dévié*) concorde avec la perte de la linéarité et l'apparition d'un érouissage parabolique avant la rupture du matériau.

Au cours du stade I, un seul système de glissement macroscopique est actif. Les lignes de glissement sont longues et l'érouissage est donc faible. Sous l'effet du glissement, le cristal subit une rotation vers les directions $\langle 111 \rangle$. Pour des axes de traction situés dans le triangle stéréographique $[001]-[101]-[111]$, Mitchell et Spitzig [Mitchell 1965] observent deux directions de glissement. La première, $[\bar{1}\bar{1}1]$, est majoritaire dans le triangle; la seconde $[111]$, est adoptée pour des axes de tractions situés dans une zone très proche de $[001]$.

Mitchell et Spitzig découpent le cercle stéréographique en domaines de directions de glissement activé dans le cristal suivant la direction de sollicitation. Le cristal tend alors à s'aligner avec la direction de glissement et peut donc rendre un second système de glissement actif. Ce phénomène se traduit par un érouissage du matériau (stade II), les dislocations ayant alors plus de difficulté à se déplacer sur des plans qui se coupent. En fonction de l'angle dont doit tourner le cristal, l'apparition du stade II est plus ou moins rapide (cf. figure V-7).

Les courbes qu'ils publient (en les rationalisant avec un facteur de Schmid correspondant au glissement dans les systèmes $\{110\}\langle 111 \rangle$) sont les suivantes. (figure V-7)



*figure V-7 : courbes de consolidation du tantale
en fonction de la direction de traction.
[Mitchell 1965]*

V.4.2. Influence du chargement thermomécanique sur le comportement du tantale polycristallin

Le comportement du tantale pur polycristallin dans le domaine plastique présente une grande complexité : comme chez les matériaux C.C. la vitesse de déformation et la température ont une forte influence sur la limite et le pic d'élasticité, sur l'écrouissage, sur la contrainte et la déformation à rupture. De plus, les réactions du tantale diffèrent suivant le type de sollicitation imposée (traction, compression, torsion...). Enfin, les concentrations en éléments interstitiels ont un effet très notable sur ses caractéristiques.

Le tantale est sensible à l'effet Bauschinger et présente un écrouissage critique. Il n'est pas sujet au cisaillement adiabatique en raison de son point de fusion très élevé.

Dans la suite de ce paragraphe, nous nous penchons surtout sur l'influence de chaque paramètre (vitesse de déformation, allongement, température...) sur la contrainte d'écoulement du tantale en se focalisant sur la limite d'élasticité.

V.4.2.1. Limite d'élasticité

Il est difficile de parler de limite d'élasticité « du tantale » tant la fourchette de valeurs publiées est étendue : suivant la composition chimique, la texture et le mode d'élaboration, elle peut varier du simple au double pour un même couple vitesse de déformation, température. A des vitesses quasistatiques (10^{-4} , 10^{-3} s^{-1}) et à température ambiante, la limite d'élasticité oscille suivant le type de tantale entre 150 et 250 MPa.

La courbe de consolidation du tantale présente un pic d'élasticité : la contrainte d'écoulement passe d'une limite d'élasticité supérieure à une limite d'élasticité inférieure qui correspond à un palier de la contrainte d'écoulement. La déformation d'une éprouvette n'est pas homogène sur ce palier : Johnston et Gilman expliquent ce phénomène par une « avalanche » de dislocations mobiles qui traversent les grains les mieux orientés et qui entraînent l'apparition de bandes de Lüders. Le passage de ces bandes amène la limite d'élasticité du tantale d'un niveau haut à un niveau bas. La propagation des bandes est lente, ce qui entraîne une hétérogénéité dans l'éprouvette sollicitée. Cette propagation s'arrête si la déformation est stoppée. La rigidité du système de chargement joue un rôle important pour l'observation des bandes de Lüders [Guillaume]. Ce pic disparaît lorsque le désancrage des dislocations mobiles est plus aisé (par augmentation soit de la température soit de la densité de dislocations mobiles). Ce processus est caractéristique des métaux à structure cubique centrée.

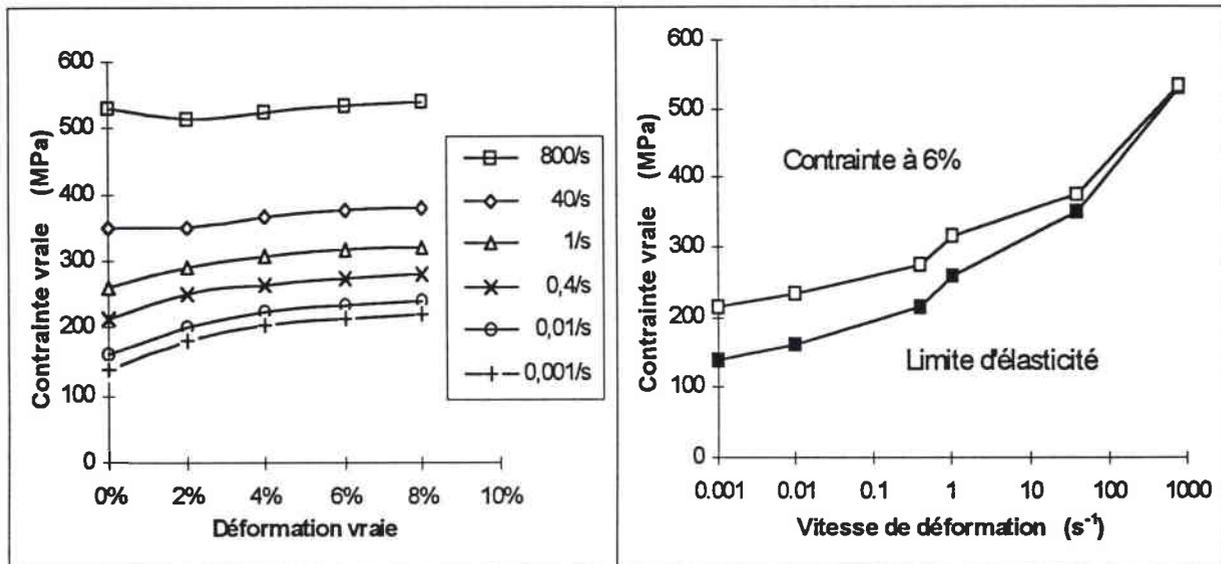
L'étendue des valeurs publiées s'explique par la difficulté de déterminer la limite d'élasticité à partir de courbes effort/déplacement. Bien que la définition de la limite d'élasticité *contrainte au delà de laquelle se manifestent des processus irréversibles* soit aisément appréhendable, la multitude des mécanismes qui régissent la déformation plastique du tantale et l'état microstructural initial du matériau ont une influence capitale sur cette valeur macroscopique.

V.4.2.2. Influence de l'érouissage

Le comportement du tantale polycristallin est assez voisin de celui du cuivre dans le domaine des faibles vitesses de déformation : il s'érouit faiblement au cours de la déformation et la striction apparaît très tard. Sous sollicitation dynamique, le tantale évolue suivant une loi de matériau quasiment plastique parfait et sa limite à rupture diminue.

L'érouissage subit une décroissance lorsque la vitesse de déformation augmente. Le coefficient d'érouissage n passe de 0,27 (pour 10^{-4} s^{-1}) à 0,13 (pour 10^{-2} s^{-1}) [Regazzoni 1983].

Ces résultats sont conformes à ceux d'Isbell, Christman et Babcock [1972]. Ces derniers obtiennent les courbes de consolidation suivantes en compression : (figure V-8)



figures V-8 a et b : influence de la vitesse de déformation et de la déformation sur la contrainte d'écoulement du tantale d'après Isbell et al.

Rajendran, Garrett, Clark et Jungling [1991 et 1992] se sont intéressés aux allongements à la striction et à la rupture sur des éprouvettes de tantale NRC sollicitées en tension (figure V-9). Dans le domaine quasistatique ils trouvent que l'allongement à la striction décroît progressivement de 38% ($10^{-3} s^{-1}$) à 20% ($1 s^{-1}$) (figure V-10). Cette valeur de 38% est celle observée au CEA/DAM [Nominé 1995b] sur du tantale NRC recristallisé à $4,4 \cdot 10^{-4} s^{-1}$. Aux vitesses intermédiaires (entre $1 s^{-1}$ et $10 s^{-1}$) la striction apparaît au tout début de la déformation plastique. Ces résultats sont à considérer avec beaucoup de prudence en raison des instabilités que l'on peut rencontrer à ces vitesses de déformation. Ils indiquent une décroissance du coefficient d'écrouissage avec la vitesse de déformation, le coefficient maximal valant 0,28 obtenu à $10^{-4} s^{-1}$. Dans le domaine des vitesses élevées, ils observent une augmentation de la contrainte d'écoulement et de la déformation à striction (20% à $1600 s^{-1}$).

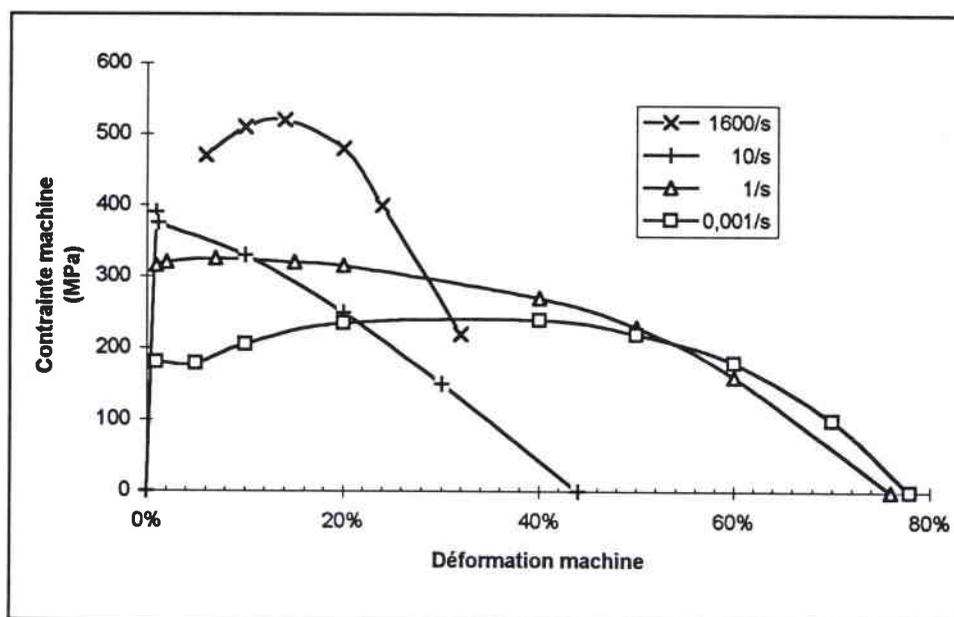


figure V-9 : courbes de consolidation d'après Rajendran et Garrett.

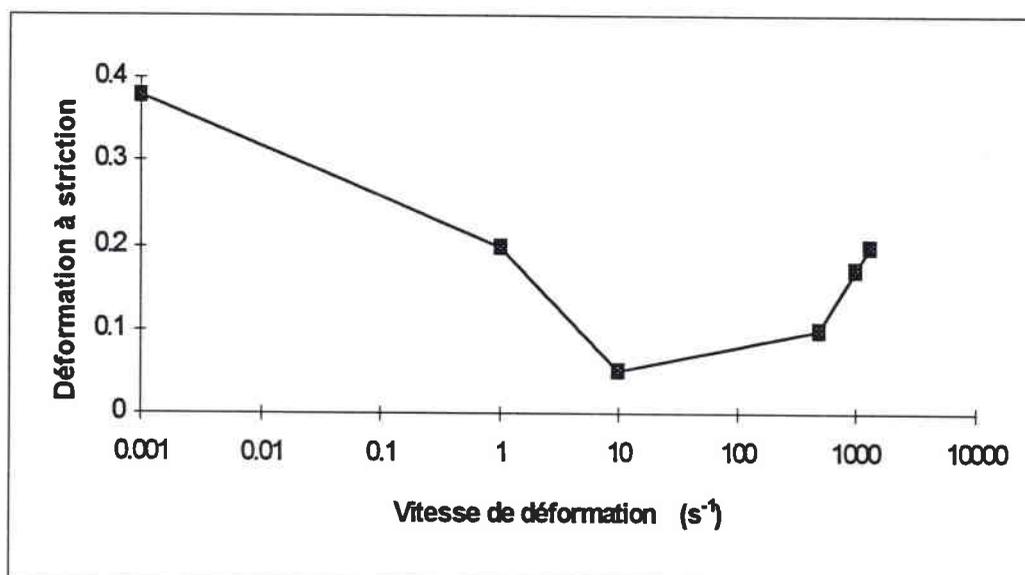


figure V-10 : déformation à striction en fonction de la vitesse de déformation d'après Rajendran et Garrett.

Gray et Rollett [Gray 1992] trouvent un accroissement linéaire de la contrainte $\frac{\partial \sigma}{\partial \dot{\epsilon}}|_{\dot{\epsilon}, T}$ de 2080 MPa par unité de déformation à $10^{-3} s^{-1}$ et 846 MPa par unité de déformation à $10^3 s^{-1}$. Ces résultats sont sensiblement différents de ceux de Michaluk, Gray et Chatterjee [1993]. Ces derniers indiquent un accroissement linéaire de 700 MPa par unité de déformation à $10^{-3} s^{-1}$ et de 600 MPa par unité de déformation à $2000 s^{-1}$ pour une déformation de 10%. Cela correspond à des coefficients d'écrouissage de $n = 0,25$ à $10^{-3} s^{-1}$ et $n = 0,087$ à $2000 s^{-1}$.

Les différentes études mécaniques menées par le CEA/DAM ([Dormeval et al 1979], [Bédère et al 1979], [Daumas 1985], [Nominé et al 1994 et 1995]...) sont en concordance avec ces publications.

V.4.2.3. Influence de la vitesse de déformation

Le tantale est très sensible à la vitesse de déformation, mais cette sensibilité a tendance à décroître au cours de la déformation. En prenant une loi du type pseudoplastique du type : $\sigma = K \dot{\epsilon}^m$, Regazzoni [1983] donne à partir d'essais de traction effectués à 10^{-2} et $10^{-4} s^{-1}$ les valeurs suivantes du coefficient $m = \partial \ln(\sigma) / \partial \ln(\dot{\epsilon})|_{\epsilon, T}$:

ϵ	σ_{pic}	σ_{inf}	1%	5%	10%	20%
m	0,12	0,1	0,1	0,07	0,05	0,03

Dans un article ultérieur [Regazzoni 1984], il réévalue $m = 0,084$ à 1% de déformation.

Une récente étude menée au service CEA/DAM [Nominé 1994 et 1995a&b] sur du tantale Mapren-Cabot donne des valeurs de m proche de 0,1 pour σ_{pic} et de 0,8 pour σ_{inf} .

Gray et Rollett [1992], estiment quant à eux : $m = 0,062$ à 2% de déformation en compression, valeur identique à celle publiée par Michaluk, Gray et Chatterjee à 10% de déformation sur du tantale pur [Michaluk et al 1993].

Ces valeurs sont très importantes (à titre de comparaison, la sensibilité du cuivre à la vitesse de déformation aux faibles vitesses de déformation vaut $m = 0,013$) [Regazzoni 1983].

Hoge et Mukherjee [1977] publient une courbe donnant la limite d'élasticité inférieure en fonction de la vitesse de déformation. (figure V-11)

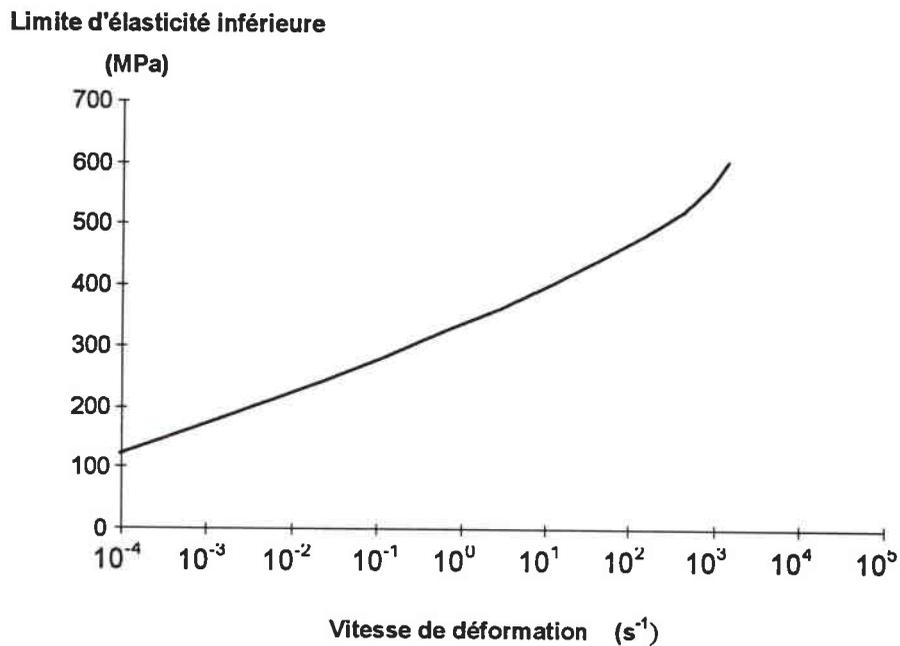


figure V-11 : influence de la vitesse de déformation sur la limite d'élasticité du tantale [Hoge et Mukherjee 1977]

Ces valeurs sont cohérentes avec celles de Gourdin [1989] qui observe un comportement parfaitement plastique pour deux nuances de tantale déformés par expansion d'anneau jusqu'à 7000 s^{-1} . Le premier tantale élaboré par métallurgie des poudres a une limite d'élasticité de 600 MPa , le second fondu par faisceau d'électrons plastifie à 550 MPa .

Il faut garder en mémoire qu'un essai dynamique est adiabatique, l'énergie consommée par la déformation plastique dissipée en chaleur n'a pas le temps de diffuser. Le tantale s'échauffe notablement pendant un essai de compression dynamique. Par conséquent, les courbes de consolidation obtenues résultent toujours de la compétition entre l'écroutissage et l'adoucissement thermique. Or, l'échauffement théorique est proportionnel à $\frac{1}{\rho c_p} \int \sigma d\varepsilon$ (où ρ désigne la masse volumique et c_p , la chaleur spécifique). Donc plus un matériau est résistant, plus il s'échauffe. Ceci explique qualitativement l'absence de consolidation apparente aux grandes vitesses de déformation. Il serait nécessaire d'effectuer des mesures de température en temps réel, pour pouvoir analyser les résultats de courbes σ - ε plus en détail, et comprendre l'importance de cet échauffement dans le cas particulier du tantale.

V.4.2.4. Influence de la température

La forte sensibilité à la température est corrélée à la sensibilité à la vitesse de déformation [Arsenault 1966]. Ces résultats sont caractéristiques d'un comportement thermiquement activé.

Dans le domaine des faibles températures ($0-600\text{ K}$), le mécanisme principal qui contrôle la déformation est le franchissement des vallées de Peierls par les dislocations. Ce franchissement est d'autant plus aisé que le réseau cristallin est « lâche » c'est-à-dire que la température est élevée et que la vitesse de déformation est faible.

Les travaux les plus fréquemment cités sont ceux de Hoge et Mukherjee [1977]. Leur étude expérimentale vient compléter celles de Bechtold [1955], de Pugh [1956], de Holden et Schwartzberg et Jaffee [1960] et d'Arsenault [1966]. Les courbes suivantes sont obtenues sur du tantale polycristallin. Le tantale de Pugh comme celui de Bechtold, élaboré à partir de métallurgie des poudres est plus riche en interstitiels ce qui expliquerait les position des courbes qu'ils obtiennent par rapport à celle de Hoge et Mukherjee. Les courbes d'Arsenault et Holden et *al* sont quant à elles relativement voisines de celle de Hoge et Mukherjee (*figure V-12*).

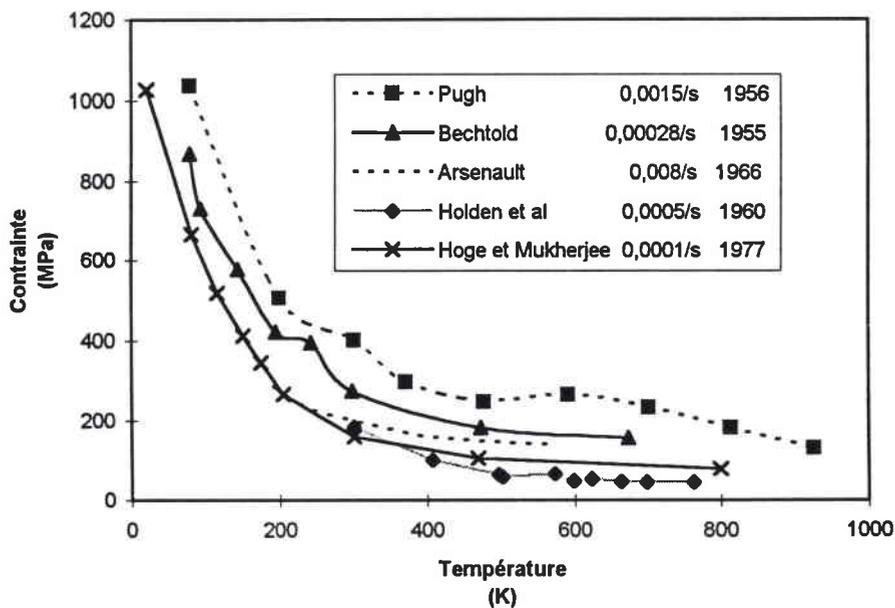


figure IV-12 : limite d'élasticité inférieure en fonction de la température

Arsenault publie des courbes donnant la limite d'élasticité en fonction de la température pour du tantale monocristallin. Celles ci sont nettement inférieures à celles observées pour du tantale polycristallin ($\sigma_y = 600\text{ MPa}$ à 27 K).

Les travaux récents de Chen et Gray [1994] corroborent ceux de Hoge et Mukherjee.

La température joue aussi un rôle important sur l'allure du pic d'élasticité : ce pic, très prononcé aux faibles températures diminue lorsque l'activation thermique prend de l'importance.

V.4.3. Influence de la microstructure

V.4.3.1. Mécanismes de déformation

L'écoulement plastique des métaux est régi par la création, le mouvement et le stockage des dislocations. Frost et Ashby [1982] qualifient l'écoulement plastique de processus cinétique. En effet, il est contrôlé par des processus qui ont lieu à l'échelle atomique parmi lesquels la création, la montée et le glissement de dislocations, la diffusion d'atomes interstitiels, le déplacement des joints de grains, le maillage...

D'après l'allure des courbes donnant la limite d'élasticité du tantale en fonction de la température, il est possible de distinguer trois zones. (figure IV-13)

- La première allant de 0 à 400K (pour des vitesses de déformation quasistatiques) correspond à une forte décroissance de la limite d'élasticité.
- La deuxième (entre 400K et 1600K) coïncide avec un plateau de la limite d'élasticité.
- La troisième (au delà de 1600K) concorde avec une forte diminution de la limite d'élasticité due à l'apparition des phénomènes de diffusion et de fluage.

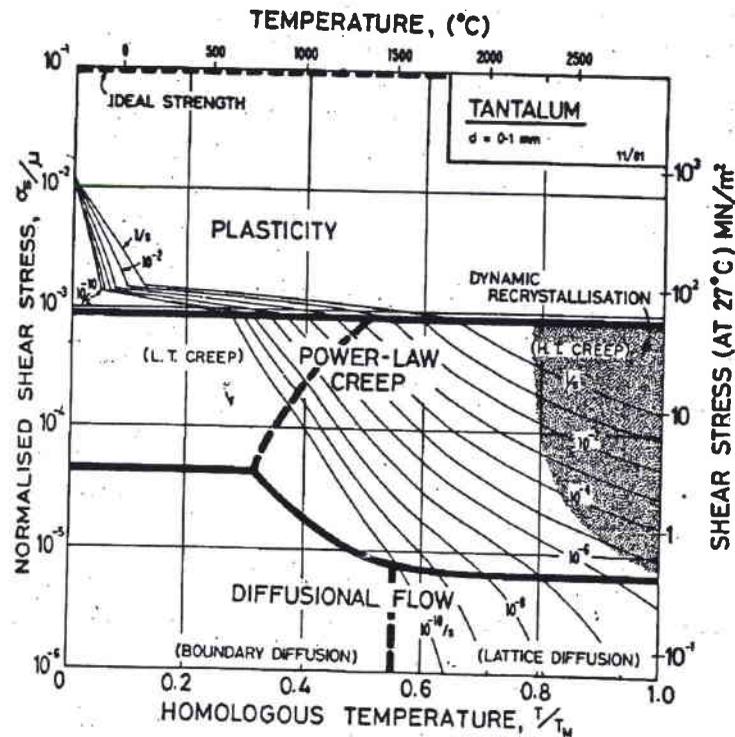


figure V-13 : limite d'élasticité inférieure en fonction de la température

Pour expliquer cette évolution on admet communément que la contrainte d'écoulement est la somme de deux composantes :

$$\sigma = \sigma_a + \sigma^* \quad \text{où}$$

- σ_a contrainte interne représente des forces à grand rayon d'action (joints...)
- σ^* contrainte thermiquement activée (dépendant de la température et de la vitesse de déformation) correspond aux obstacles franchissable à l'aide des fluctuations thermique.

Deux mécanismes permettent de décrire l'augmentation rapide de la limite élastique (c'est-à-dire de σ^*) à basse température :

- le franchissement des vallées de Peierls (beaucoup plus profondes dans les réseaux CC que dans le CFC) par les dislocations devient de plus en plus difficile lorsque les vibrations du réseau cristallin s'atténuent (baisse de la température);
- l'interaction des dislocations avec les impuretés interstitielles (en particulier C,O,N,H) serait amoindrie par une élévation de la température.

V.4.3.2. Influence des interstitiels

Les impuretés ont un rôle primordial sur la tenue mécanique du tantale. L'addition d'oxygène, d'azote, de carbone augmente la dureté et la contrainte d'écoulement du tantale au détriment de sa ductilité [Falanga 1979 et 1982].

Falanga et al dans deux synthèses bibliographiques précédentes soulignent que les traitements de purification réduisent les deux composantes interne et thermiquement activée de la contrainte d'écoulement. Il est important de s'assurer que les concentrations en impureté restent faibles car ces éléments d'addition fragilisent le tantale à basse température (en particulier l'hydrogène) où à grande vitesse de déformation (oxygène) :

à -40°C , l'allongement à rupture passe de 29% à 1,5% lorsque la teneur en hydrogène croît de 24 à 46 ppm en poids.

à 1000 s^{-1} , l'allongement à rupture chute de 23% à 15% lorsque la teneur en oxygène augmente de 20 à 200 ppm en poids.

Puhr, Westerheide et Elssner [1970] trouvent un développement de la limite élastique inférieure du type :

$$\sigma_{Ly} = 124 + 677 C_N + 392 C_O$$

σ_{Ly} en MPa,

C_N et C_O en % atomique.

Michaluk, Gray et Chatterjee [1993] comparent trois types de tantale, le premier pur, les deux autres contenant respectivement 250 et 400 ppm d'oxygène. Il résumant leurs résultats obtenus à $\epsilon = 10\%$ et 25°C dans le tableau suivant :

Concentration d'Oxygène	σ (MPa)		$\theta_{II} = \partial\sigma/\partial\epsilon$ (MPa)	
	$\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$	$\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^3 s^{-1}$	$\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$	$\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^3 s^{-1}$
<50 ppm	280	690	700	600
250 ppm	630	990	2000	1700
400 ppm	720	1135	2000	1800

L'addition d'oxygène augmente la contrainte d'écoulement et l'érouissage mais diminue la sensibilité à la vitesse de déformation.

L'oxygène est aussi à l'origine des phénomènes de vieillissement du tantale [Pugh 1958]. Le vieillissement est un phénomène mécanique différé. Lorsque le tantale est déformé, les atomes d'oxygène du réseau cristallin migrent vers les dislocations d'autant plus vite que la température est élevée (4 jours à 120°C \Leftrightarrow 90 jours à 80°C \Leftrightarrow 60 ans à 35°C \Leftrightarrow 230 ans à 20°C). Ces atomes exercent un ancrage sur les dislocations augmentant ainsi la contrainte d'écoulement du tantale. Lorsque l'on recharge une éprouvette vieillie, il apparaît un pic d'élasticité plus élevé que la contrainte d'écoulement avant vieillissement. La ductilité est conservée à faible vitesse de déformation mais diminue légèrement aux vitesses dynamique (de 18 à 14% à $1000 s^{-1}$ pour du tantale dopé à 200 ppm d'oxygène) [Ansart et al 1986]. Les phénomènes de vieillissement ne concernent pas l'hydrogène qui diffuse de manière quasi instantanée vers les dislocations et peu l'azote et le carbone dont les cinétiques de diffusion sont plus lentes que celle de l'oxygène. C'est une des conclusions de Formby et Owen [1965] qui affirment de plus que les caractéristiques de l'érouissage ne sont pas modifiées par le vieillissement.

Le tungstène a aussi un effet de consolidation. Rollett et Gray [1992] publient :

Concentration	σ (MPa)		$\partial\sigma/\partial\epsilon$ (MPa)	
	$\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$	$\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^3 s^{-1}$	$\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$	$\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^3 s^{-1}$
<150 ppm W <100 ppm O 9-11% W	250	640	2080	846
<100 ppm O 9,8%W+2,5%Hf	475	775	2065	1730
<100 ppm O	560	825	1570	1530

Ils trouvent de plus que le mécanisme de rupture change si le tantale est allié : le tantale allié est sujet au clivage, la contrainte d'écaillage décroissant avec l'augmentation des concentrations d'éléments d'addition.

Gourdin, Lassila, Leblanc et Shields [1994] trouvent des valeurs analogues à celles de Rollett et Gray : (figure V-14)

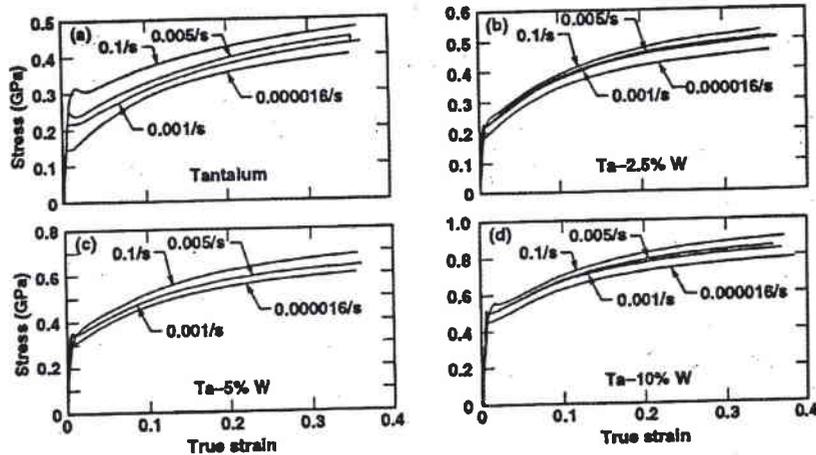


figure V-14 : courbes d'érouissage à différentes vitesses et teneurs en tungstène [Gourdin et al 1994]

V.4.3.3. Influence de la taille de grain

La limite d'élasticité d'un polycristal est d'autant plus élevée que la taille moyenne des grains de l'éprouvette testée est petite. La loi de Hall et Petch exprime cette dépendance :

$$\sigma_{Ly} = \sigma_0 + \frac{k_y}{\sqrt{d}}$$

σ_0 et k_y sont deux paramètres dépendant de la température

d est la taille moyenne des grains.

Koo s'est intéressé à la détermination de ces paramètres pour différentes températures [Koo 1962]. Les valeurs qu'il publie sont en contradiction avec les courbes expérimentales sur lesquelles il se base pour leur détermination. (Un facteur 2 a dû être malencontreusement omis lors de conversion entre les différents systèmes d'unités). En reprenant ses résultats expérimentaux, on obtient le tableau suivant :

Température (K)	σ_0 (MPa)	k_y (MPa \sqrt{m})
77	576	1 04
203	260	0 76
298	130	0 46

Michaluk [1994] a mené à température ambiante une étude similaire sur du tantale élaboré de deux manières différentes ainsi que sur du tantale allié à du tungstène.

Sur le tantale le plus pur, il n'observe pas de variation de la limite d'élasticité en fonction de la taille de grain. En revanche, lorsque la déformation augmente il aboutit aux valeurs suivantes :

Déformation	σ_0 (MPa)	k_y (MPa \sqrt{m})
0%	183	0
5%	189	0 12
7 5%	207	0 12
10%	212	0 26
12 5%	222	0 28

Les valeurs obtenues sont beaucoup plus élevées dans le cas d'un tantale élaboré par métallurgie des poudres et riche en éléments interstitiels (230 ppm d'oxygène, 41 ppm de carbone, 20 ppm d'azote principalement).

Déformation	σ_0 (MPa)	k_y (MPa \sqrt{m})
5%	358	0 29
7 5%	319	0 80
10%	304	0 77
12 5%	231	1 33

Cette dépendance du paramètre k_y est à mettre en parallèle avec les conclusions de Gilbert et al [1962]. Ces derniers se sont aussi intéressés à l'influence de la taille des grains sur la limite d'élasticité de différents tantales en fonction de la température. Ils arrivent à un résultat assez paradoxal en trouvant que le paramètre k_y dépend de la taille de grain. Ils justifient ce résultat par

une différence de densités de dislocations initiales en fonction de la température du recuit choisie pour parvenir à une taille de grain souhaitée. Ils observent aussi que dans du tantale contenant de l'oxygène ou de l'azote comme impureté interstitielle prépondérante, k_y décroît avec la température. Formby et Owen [1965] ont étudié l'influence du vieillissement sur le paramètre k_y . Ils observent que lorsque le temps de recuit augmente, k_y tend vers une valeur proche de $0,4 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$.

V.4.3.4. Influence de la texture

Ai début de ce paragraphe, nous avons vu que l'orientation du chargement joue un rôle primordial sur l'allure des courbes de consolidation des monocristaux de tantale. Le tantale polycristallin présente, de manière similaire, des comportements différents en fonction de la texture. Clark, Garrett, Jungling, Vandermeer Vold et Asfahani [1991a&b 1992], ont analysé l'influence de la mise en forme sur la texture dans le tantale. Ils recherchent un tantale supportant un emboutissage profond c'est-à-dire exhibant des fibres d'orientation $\{111\}\langle uvw \rangle$. Ils ont comparé plusieurs procédés (cycles de forgeage, laminages suivis de recuits) et en concluent que le laminage croisé est néfaste à l'emboutissage profond car il favorise l'apparition d'une texture $\{001\}\langle 110 \rangle$. De plus, des amincissements importants de tôles lors du laminage conduisent à des gradients de texture substantiels et à une forte dispersion de la taille des grains. Wright, Gray et Rollett [1994] en ont examiné l'influence sur le comportement mécanique d'une plaque de grande pureté laminée puis recuite.

V.4.4. Effet Bauschinger

Le Poac et Miannay [1981] ont étudié le comportement d'éprouvettes de tantale soumises à deux chargements successifs selon 4 combinaisons : compression-compression, compression-traction, traction-compression et traction-traction. Les pré-déformations visées sont de 0,5%, 1,5% et 5%. Ils observent que dans le cas où les deux sollicitations sont dans le même sens, le module de Young ne varie pas (à 10% près) alors que lorsqu'on change le sens de chargement, le module lors du second chargement est abaissé de 30% par rapport à celui mesuré lors du premier. Ils se sont ensuite penchés sur le rapport entre les contraintes atteintes à la fin du premier et au début du second chargement. Ces rapports, égaux à 1 dans le cas de deux chargements identiques, sont compris entre 0,82 et 0,87 lorsqu'une compression suit une traction et entre 0,76 et 0,81 dans le cas contraire. Ils ne semblent pas dépendre de la pré-déformation initiale, tout du moins jusqu'à 5% de déformation. L'écrouissage n'est donc pas totalement isotrope.

Isbell et al [1972] ont cependant montré que l'écroutissement du tantale n'est pas uniquement cinématique et qu'il existe une partie d'écroutissement isotrope (*figure V-15*): en effectuant cinq cycles de compression amenant les échantillons à une déformation résiduelle de 1% suivis de tractions pour effacer cette déformation plastique, la limite d'élasticité en traction croît de 165 MPa à 206 MPa.

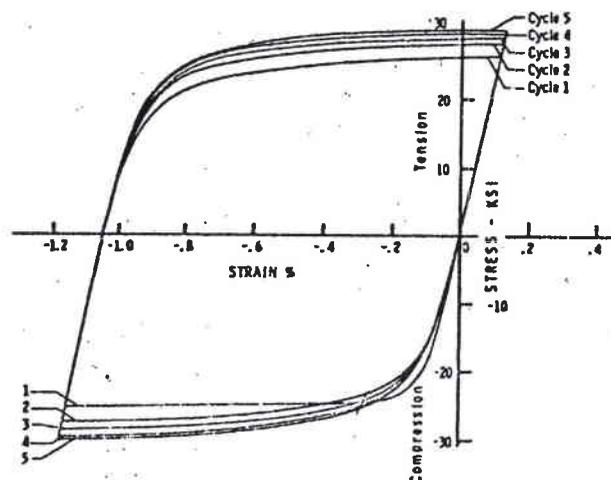


figure V-15 : effet Bauschinger dans le tantale
[Isbell et al 1972]

V.4.5. Restauration, recristallisation et écroutissement critique

Comme nous venons de le voir, lorsque le tantale subit une déformation plastique, ses propriétés mécaniques sont altérées par modification de son état microstructural. Il n'est plus dans un état d'équilibre thermodynamique. Pour rétablir les propriétés initiales du métal, il est nécessaire d'effectuer un recuit. L'agitation thermique permet à certains processus de se produire à vitesse assez grande pour que l'on puisse observer la régénérescence de la structure.

La restauration est la première étape du recouvrement des propriétés. Elle concerne tous les processus qui ne mettent pas en jeu le mouvement des joints de grains. Il n'y a donc pas de création de nouveaux grains ni de modification de la texture mais diminution du nombre de défauts subséquents à la déformation plastique, lacunes et dislocations principalement.

La restauration des propriétés mécaniques peut être suivie par la mesure de la microdureté. Lorsque les dislocations se réarrangent ou s'annihilent entre elles ou dans les joints de grains, les contraintes internes au sein du métal diminuent et font baisser la valeur de la microdureté.

Pour un tantale « vierge » la microdureté varie autour de 75HV sous 10 kg. Elle peut monter à 200HV pour du tantale très écroui (100% de déformation) ou contenant de nombreux interstitiels [Falanga 1988]. Studt [1979] en conformité avec Pugh et Hibbart [1956] publie la courbe suivante : (figure V-16)

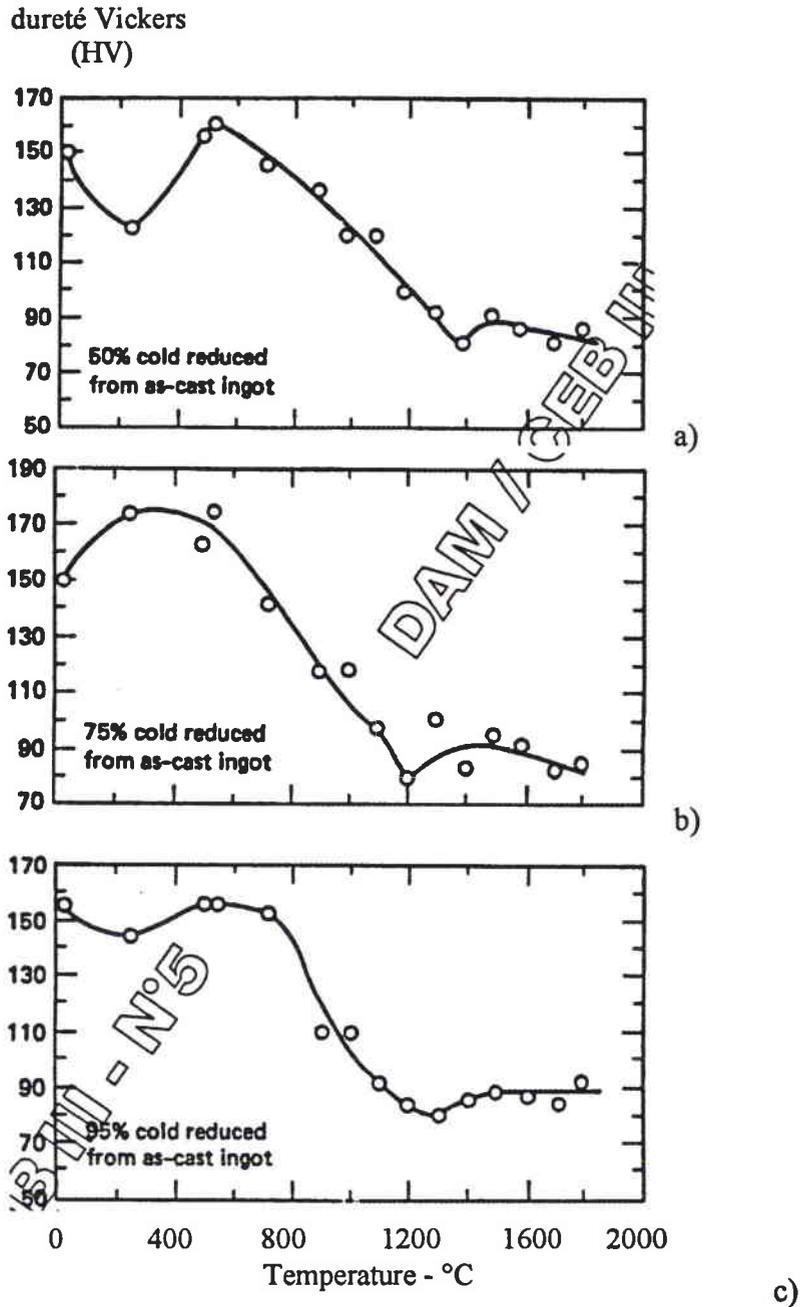


figure V-16 : effet de la température de recuit sur la dureté d'un lingot de tantale brut de coulée laminé à 75% (a), 75%(b) et 90%(c)[Studt 1979].

Dans le tantale, Hull et *al* [1962] ont observé la formation de sous-joints au cours du recuit. Les dislocations s'alignent en formant des parois séparant deux zones de faible désorientation cristallographique.

Lorsqu'on augmente la température de recuit, il se forme des germes d'orientation totalement différente de celle de la matrice où ils naissent. Ces germes croissent jusqu'à reconstituer une structure radicalement distincte de celle d'origine. Ce phénomène s'appelle la recristallisation. Elle nécessite une déformation minimale pour être initiée. Elle se base sur un processus de germination et croissance. Son effet est donc différé dans le temps contrairement à la restauration. Il est important de noter que la taille des nouveaux grains formés décroît lorsque le taux de déformation augmente. Ceci a été très bien observé par M.N. Norlain [1995] qui examine l'influence de la température d'un recuit de 30 minutes sur l'écrouissage critique du tantale déformé par traction et par laminage. Elle obtient les résultats suivants :

un recuit de 1000°C ne fait pas apparaître de recristallisation sur du tantale déformé en traction jusqu'à 20% ;

un recuit de 1100°C correspond à une déformation critique de 14% environ sur une éprouvette déformée en traction ;

la déformation critique passe à 9,5% sur une éprouvette déformée en traction mais apparaît peu après 13% sur une éprouvette laminée lorsque la température de recuit est amenée à 1200°C. La recristallisation dépend apparemment du type de chargement et se produit plus rapidement en traction.

Ces résultats complètent l'étude de Studt [1979]. Les courbes suivantes (*figure V 17*) donnent la température de recristallisation du tantale en fonction du temps de recuit pour une pré-déformation donnée.

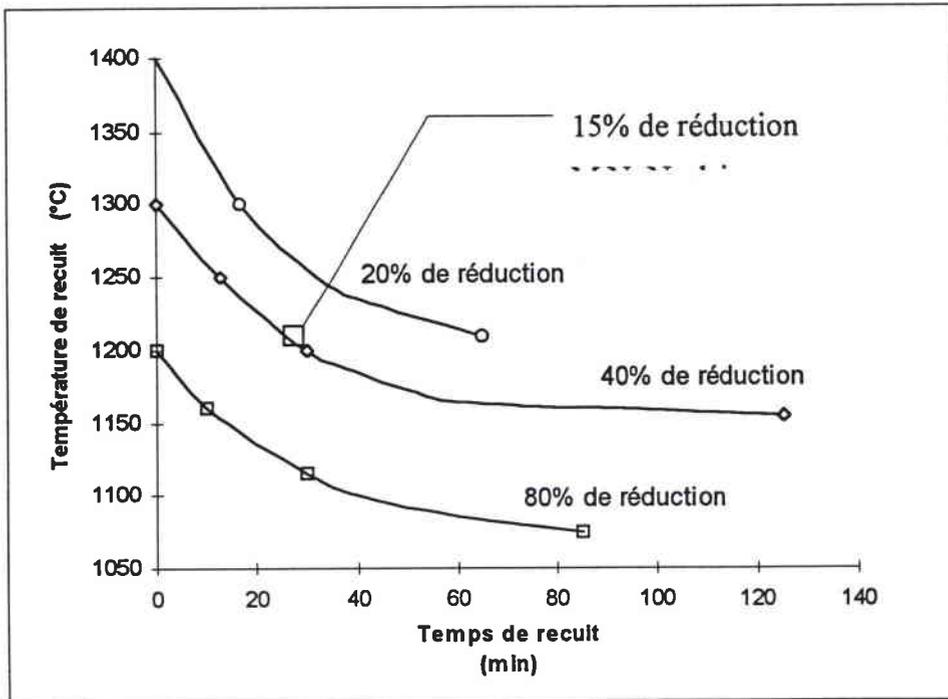


figure V-17 : influence de la déformation et du temps de recuit sur la température de recristallisation du tantale

Le point de M.N. Norlain ne correspondent pas vraiment à la courbe de Studt. Ils sont en revanche beaucoup plus proches de celles de Murphy et al [Norlain 1995] quand ils obtiennent un écrouissage critique de 18% pour un recuit identique.

Chapitre VI :

Résultats des essais de torsion