

## THÈSE

Pour l'obtention du grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE POITIERS  
UFR des sciences fondamentales et appliquées  
Pôle poitevin de recherche pour l'ingénieur en mécanique, matériaux et énergétique - PPRIMME  
(Poitiers)  
(Diplôme National - Arrêté du 25 mai 2016)

École doctorale : Sciences et ingénierie en matériaux, mécanique, énergétique et aéronautique -  
SIMMEA (Poitiers)  
Secteur de recherche : Milieux denses, matériaux et composants

Présentée par :  
Jean Rony Medy

### **Évaluation des effets de taille et d'architecture sur les propriétés mécaniques et électriques de fils composites métalliques cuivre/niobium fabriqués par déformation plastique sévère**

Directeur(s) de Thèse :  
Ludovic Thilly, Pierre Olivier Renault

Soutenue le 08 décembre 2016 devant le jury

#### Jury :

Président	<b>Olivier Castelnau</b>	Directeur de recherche CNRS, ENSAM, Paris
Rapporteur	<b>Muriel Véron</b>	Professeure, PHELMA, INP de Grenoble
Rapporteur	<b>Sebastien Allain</b>	Professeur, École des mines, Nancy
Membre	<b>Ludovic Thilly</b>	Professeur, PPRIME, Université de Poitiers
Membre	<b>Pierre Olivier Renault</b>	Professeur, PPRIME, Université de Poitiers
Membre	<b>Patrick Villechaise</b>	Directeur de recherche CNRS, PPRIME, ENSMA, Poitiers
Membre	<b>Florence Lecouturier</b>	Ingénieure de recherche CNRS, LNCMI, Toulouse

#### **Pour citer cette thèse :**

Jean Rony Medy. *Évaluation des effets de taille et d'architecture sur les propriétés mécaniques et électriques de fils composites métalliques cuivre/niobium fabriqués par déformation plastique sévère* [En ligne]. Thèse Milieux denses, matériaux et composants. Poitiers : Université de Poitiers, 2016. Disponible sur Internet

<<http://theses.univ-poitiers.fr>>



# THESE

Pour l'obtention du Grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE POITIERS  
(Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées)  
(Diplôme National - Arrêté du 7 août 2006)

Ecole Doctorale : Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Energétique et Aéronautique  
Secteur de Recherche : Milieux Denses, Matériaux et Composants

Présentée et soutenue le 8 Décembre 2016 par :

Jean Rony MEDY

\*\*\*\*\*

**Evaluation des effets de taille et d'architecture sur les propriétés mécaniques et électriques de fils composites métalliques cuivre/niobium fabriqués par déformation plastique sévère**

\*\*\*\*\*

Directeurs de Thèse :

Ludovic THILLY et Pierre-Olivier RENAULT

\*\*\*\*\*

## Membre du JURY

<b>Muriel VERON</b>	Professeure, PHELMA/INP Grenoble	Rapporteur
<b>Sébastien ALLAIN</b>	Professeur Ecole des Mines de Nancy	Rapporteur
<b>Florence LECOUTURIER</b>	Ingénieure de recherche CNRS-LNCMI Toulouse	Examineur
<b>Olivier CASTELNAU</b>	Directeur de recherche Arts et Métiers ParisTech	Examineur
<b>Patrick VILLECHAISE</b>	Directeur de Recherche, CNRS-Institut Pprime, Poitiers	Examineur
<b>Pierre-Olivier RENAULT</b>	Professeur, Université de Poitiers	Examineur
<b>Ludovic THILLY</b>	Professeur, Université de Poitiers	Examineur

## Remerciements

*Les travaux présentés dans ce mémoire ont été réalisés au département D1(Physique et Mécanique des Matériaux) de l'Institut Pprime dans le cadre d'un projet ANR-METAFORES (ANR-12-BS09-0002). Ils sont le fruit de la contribution de nombreuses personnes à qui je souhaite témoigner toute ma gratitude.*

*Je tiens tout d'abord à remercier Monsieur Yves GERVAIS, Directeur de l'Institut Pprime pour m'avoir ouvert les portes du laboratoire. J'adresse aussi mes remerciements à professeur Jean-François BARBOT, Directeur du département D1 pour m'avoir accueilli chaleureusement au sein du D1.*

*J'exprime ma profonde gratitude aux Professeurs Pierre-Olivier RENAULT et Ludovic THILLY pour leurs conseils pertinents tout au long de ces travaux ainsi que pour leurs incessants encouragements. Merci de m'avoir fait confiance et suivi tout au long de ces trois années ! Je ne saurais oublier notre collaboration et nos discussions qui ont largement contribué à ma formation scientifique. Merci de m'avoir confié ce sujet on ne peut plus passionnant et aussi de m'avoir donné les moyens de le mener à bien. Du fond du cœur, je vous remercie PATRONS de me faire bénéficier de vos expériences et compétences durant ces trois fructueuses années !*

*Je dis un grand merci à Madame Anne TOUZE, Alain MENELLE et Vincent Klosek pour leurs accueil et accompagnement lors de mes passages au Laboratoire Léon Brillouin du CEA de Saclay.*

*J'adresse mes plus vifs remerciements à Nelson Ferreira et à Florence LECOUTURIER pour leur accueil et leur disponibilité lors de mes passages au Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses de Toulouse. Un grand merci à Florence d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse.*

*Je remercie Fabien VOLPI de SIMAP/Grenoble pour son enthousiasme, sa générosité et son accompagnement dans les mesures de conductivité électrique transversale.*

*Je tiens à remercier Olivier CASTELNAU, Directeur de Recherche/Arts et Métiers ParisTech, d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse. Je suis très touché par l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le jury.*

*J'adresse toute ma gratitude aux professeurs Murielle VERON de PHELMA/INP – Grenoble et Sébastien ALLAIN de l'Ecole des Mines de Nancy pour l'intérêt qu'ils ont accordé à mes travaux en acceptant d'être les rapporteurs.*

*Je remercie vivement Patrick VILLECHAISE, Directeur de Recherche à l'Institut Pprime de Poitiers pour son aide combien précieuse dans les mesures et les analyses EBSD et aussi d'avoir accepté d'examiner mes travaux de thèse.*

*Je voudrais témoigner ma reconnaissance envers Henry PROUDHON et Christian MOCUTA pour les essais de déformation in-situ sur la ligne DIFFABS au synchrotron SOLEIL. Merci Henry pour tes conseils et tes encouragements !*

*Je remercie tous les membres du D1 pour leur disponibilité, leur générosité et leur bonne humeur. Je m'en voudrais de ne pas remercier particulièrement Anne-Marie ARCHAMBAULT, Bruno LAMONGIE, Patrick TANGUY pour leur soutien sans faille dans la préparation des échantillons.*

*Merci à tous les collègues doctorants pour leur sympathie et le respect qu'ils ont témoigné à leur Honorable Doyen. Je ne saurais oublier les agréables et sympathiques pauses (parfois prolongées) passées ensemble ; merci pour les parties de coinche, les quelques visites chez moe's à la recherche d'un peu de liquide. Un grand merci à Jack pour sa fidélité inconditionnelle !!*

*Je m'en voudrais de ne pas témoigner toute ma reconnaissance envers tous les membres de ma famille qui ont su, indépendamment de la distance qui nous a séparée, m'accompagner durant mon « long » séjour en France. J'ai une pensée spéciale à Lesly, mon ami de toujours, pour sa fidélité, son soutien, ses encouragements, ... ; merci Bro ! Merci à Béatrice et Patricia d'avoir pris soins de mon fils durant mon absence !*

*Je voudrais terminer cette partie en témoignant vivement ma gratitude à toutes celles et tous ceux qui, de près ou de loin, ont contribué à faire de ces années de thèse une réussite ! Je pense spécialement aux membres de l'ANR-METAFORES qui, lors des réunions, m'ont toujours soutenu, encouragé et conseillé. Un grand merci à Tang pour nos passionnantes discussions !*

*A Hanne et Dwenny, mes deux amours*

## **Résumé**

### **Evaluation des effets de taille et d'architecture sur les propriétés mécaniques et électriques de fils composites métalliques cuivre/niobium fabriqués par déformation plastique sévère.**

**Mots-clés :** Conductivité électrique, Texture, Diffraction d'électrons rétrodiffusés, Diffraction de neutrons, Déformation in-situ.

Les fils composites Cu/Nb étudiés ici sont d'excellents candidats pour les bobines non destructives générant des champs magnétiques pulsés intenses ( $B \geq 100T$ ). Ils sont fabriqués par Accumulative Drawing and Bundling (ADB) et sont constitués de renforts continus de Nb dans une matrice multi-échelles de Cu. Ces travaux rentrent dans le cadre du projet METAFORES (ANR-12-BS09-0002), visant l'évaluation des effets de taille et d'architecture sur les propriétés des conducteurs Cu/Nb. L'objectif principal consiste donc à caractériser leur microstructure et leurs propriétés à chaque étape de la fabrication par différentes techniques de caractérisation. Des essais mécaniques et électriques montrent une augmentation de la limite d'élasticité avec l'affinement de la microstructure tout en conservant une conductivité électrique adéquate. Les études de la texture globale par DRX ont mis en évidence trois composantes de texture de fibre dont deux pour la matrice de Cu ( $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$ ) et une composante unique  $\langle 110 \rangle$  pour le Nb. On retrouve ces trois composantes de texture dans les analyses locales (EBSD), cependant les proportions relatives des composantes du Cu varient en fonction du nombre de cycles ADB. Les essais de déformation in-situ sous neutrons ont mis en évidence des comportements élasto-plastique et purement élastique des familles de grains  $\{111\}$  du Cu et  $\{110\}$  du Nb respectivement, quels que soient les échantillons. Pour la famille  $\{200\}$  du Cu, le comportement mécanique varie en fonction du nombre de cycles ADB. Tous ces résultats viendront nourrir les simulations effectuées dans le cadre du projet METAFORES (Thèse de Tang Gu, ENSAM-Paris/Mines ParisTech).

## **Abstract**

### **Size and Architecture effects on mechanical and electrical properties of copper/ niobium composites wire fabricated by severe plastic deformation.**

**Key words:** Electrical conductivity, Texture, Electron Backscattered Diffraction, Neutron diffraction, In-situ Deformation.

High strength and high conductivity Cu/Nb composites studied here are very good candidates for the design of magnets generating high pulsed magnetic fields ( $B \geq 100T$ ). They are fabricated by Accumulative Drawing and Bundling (ADB) and are constituted with a multi-scale Cu matrix embedding continuous Nb filaments that are distributed in a controlled manner. This study is performed within the framework of the METAFORES project (ANR-12-BS09-0002) aiming at assessing size and architecture effects on properties of these Cu/Nb conductors. The main purpose is therefore to characterize the microstructure and properties of these conductors at different stages of the fabrication process. Mechanical and electrical results show an increase in yield strength while maintaining adequate electrical conductivity. Global texture studies confirm three fiber texture components: two for the Cu matrix ( $\langle 111 \rangle$  and  $\langle 100 \rangle$ ) and a single component  $\langle 110 \rangle$  for Nb. These three texture components are also observed at the local scale analysis (EBSD); however, the volume fractions of the Cu components locally depend on the number of ADB cycles. In-situ deformation tests under neutrons reveal elastic-plastic and purely elastic behaviors of the  $\{111\}$  Cu and  $\{110\}$  Nb grains family respectively, whatever the samples. However, for the  $\{200\}$  Cu grains family, mechanical behavior strongly depends on the number of ADB cycles. These results will feed the simulations conducted in the METAFORES project (Thesis of Tang Gu, ENSAM-Paris / Mines ParisTech).

# Table des matières

<b>Introduction Générale</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre I : Synthèse Bibliographique</b>	<b>8</b>
<b>I.1 – Définitions</b>	<b>8</b>
<b>I.2- Défauts dans les matériaux cristallins</b>	<b>9</b>
<b>I.3– Les grandes classes de matériaux</b>	<b>10</b>
<b>I.3.1- Matériaux composites</b>	<b>11</b>
<b>I.3.2- Matériaux multifonctionnels</b>	<b>12</b>
<b>I.3.3- Matériaux hybrides</b>	<b>13</b>
<b>I.3.4- Matériaux nanostructurés</b>	<b>15</b>
I.3.4.1- Affinement microstructural et plasticité cristalline	16
I.3.4.2- Obtention des Matériaux nanostructurés	17
I.3.4.3- Techniques de déformation plastique sévère	18
I.3.4.4- Extrusion et ré-empilements successifs (ou ADB : Accumulative Drawing and Bundling)	18
I.3.4.5- Limites de l’affinement des microstructures par les techniques de SPD.	19
<b>I.3.5- Matériaux architecturés</b>	<b>20</b>
<b>I.4- Etat de l’art sur Les composites métalliques à matrice de cuivre</b>	<b>21</b>
<b>I.4.1- Composites à matrice métallique</b>	<b>22</b>
<b>I.4.2- Composites cuivre/niobium</b>	<b>23</b>
I.4.2.1- Conducteurs Cu/Nb fabriqués par ARB	24
I.4.2.2- Microstructure des composites Cu/Nb fabriqués par ARB	24
I.4.2.3- Texture cristallographique dans les composites Cu/Nb fabriqués par ARB	25
I.4.2.3- Présentation des cuivre/niobium fabriqués par ADB	28
I.4.2.4- Microstructure des composites cuivre/niobium fabriqués par SPD	30
I.4.2.5.- Texture cristallographique dans les composites Cu/Nb	30
I.4.2.6- Taille et morphologie des grains	31
<b>I.5- Bilan</b>	<b>35</b>
<b>Références</b>	<b>36</b>
<b>Chapitre II : caractérisation des propriétés physiques des conducteurs Composites cuivre/niobium filamenteux (Cu/Nb-F)</b>	<b>40</b>
<b>II.0- Caractéristiques dimensionnelles des échantillons</b>	<b>40</b>
<b>II.1- Introduction</b>	<b>41</b>
<b>II.2- Caractérisation mécanique</b>	<b>42</b>
<b>II.2.1- Essai de traction uni-axiale, généralités</b>	<b>42</b>
II.2.1.1- Notions de contrainte et de déformation	43
II.2.1.2- Diagramme conventionnel de traction	44
<b>II.3 - Déformation plastique des matériaux métalliques</b>	<b>46</b>

II.3.1- Evolution microstructurale au cours de la déformation plastique	48
II.3.2- Durcissement mécanique des conducteurs Cu/Nb-F	49
<b>II.4- Machine de Traction uni-axiale</b>	<b>51</b>
<b>II.5- Dispositif expérimental</b>	<b>52</b>
<b>II.6- Résultats pour l'étage <math>n = 85^2</math></b>	<b>54</b>
<b>II.7- Résultats pour l'étage <math>n = 85^3</math></b>	<b>55</b>
<b>II.8- Résultats des calculs de durcissement mécanique</b>	<b>57</b>
<b>II.9- Caractérisation électrique des conducteurs Cu/Nb-F</b>	<b>59</b>
II.9.1- Conductivité électrique : généralités	59
II.9.1.1- influence des défauts cristallins sur la conductivité électrique	61
II.9.2- Dispositif expérimental	62
II.9.3- Mesure de conductivité longitudinale	64
II.9.4 - Mesure de conductivité transverse	64
II.9.4.1- Principe de la mesure	65
<b>II.10- Résultats des mesures longitudinales</b>	<b>66</b>
<b>II.11- Résultats des mesures transverses</b>	<b>70</b>
<b>II.12- Bilan</b>	<b>74</b>
<b>Références</b>	<b>75</b>
 <b>Chapitre III : caractérisation microstructurale des composites cuivre/niobium filamentaires (Cu/Nb-F)</b>	
<b>III.1- Introduction</b>	<b>79</b>
<b>III.2- Caractérisations microstructurales</b>	<b>79</b>
<b>III.3- Caractérisation de la texture globale par diffraction des rayons X.</b>	<b>80</b>
III.3.1- Orientation cristalline	80
III.3.2- Analyse quantitative de texture cristallographique	81
III.4- Etude de la texture globale des Cu/Nb-F par diffraction des rayons X	82
III.4.1- Obtention des figures de pôles	82
III.4.2- Détermination de la FDOC	84
III.4.3- Résultats de l'échantillon $N = 85^2$	85
III.4.4- Résultats de l'échantillon $N = 85^3$	88
<b>III.5- Etude de la texture locale par Microscopie électronique à balayage</b>	<b>90</b>
III.5.1- Les électrons rétrodiffusés	91
III.5.2- Principe de la technique EBSD	92

<b>III.5.3- Préparation des échantillons pour analyse EBSD</b>	<b>93</b>
III.5.3.1- Protocole de préparation des conducteurs Cu/Nb-F	94
III.5.3.2- Contrôle de la planéité et de l'écroissage des surfaces	96
<b>III.5.4- Acquisition des diagrammes de diffraction EBSD</b>	<b>98</b>
<b>III.5.5 – Présentation des résultats</b>	<b>101</b>
III.5.5.1- Résultats pour l'échantillon N = 85 <sup>1</sup>	101
III.5.5.2- Résultats pour l'échantillon N = 85 <sup>2</sup>	102
III.5.5.3- Résultats pour l'échantillon N = 85 <sup>3</sup>	106
III.5.5.4- Résumé des résultats EBSD	110
<b>III.6- Comparaison DRX/EBSD</b>	<b>111</b>
<b>III.7 – Bilan</b>	<b>112</b>
<b>Références</b>	<b>113</b>
<b>Chapitre IV : déformation in-situ des composites cuivre/niobium filamenteux (Cu/Nb-F) couplée à la diffraction des neutrons et des rayons X.</b>	<b>116</b>
<b>IV.1- Introduction</b>	<b>116</b>
<b>IV.2- Le neutron : caractéristiques et propriétés</b>	<b>116</b>
IV.2.1- Interaction neutron-matière	116
<b>IV.3- Production et classification des neutrons</b>	<b>117</b>
<b>IV.4- Quelques applications des neutrons</b>	<b>118</b>
<b>IV.5 : Essais de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons</b>	<b>119</b>
<b>IV.5.1 : Dispositif expérimental</b>	<b>120</b>
IV.5.1.1- Le diffractomètre	121
IV.5.1.2- La machine de traction	123
IV.5.1.3- Les détecteurs bidimensionnel et ponctuel	124
IV.5.1.4- Déroulement des essais	125
<b>IV.5.2- Comportement mécanique des familles de grains</b>	<b>126</b>
<b>IV.5.3- Exploitation des données de diffraction</b>	<b>127</b>
<b>IV.5.4- Calcul de la déformation locale</b>	<b>129</b>
<b>IV.6- Résultats</b>	<b>130</b>
<b>IV.6.1- Résultats de l'échantillon N = 85<sup>2</sup> / Essai réalisé avec le détecteur 2D</b>	<b>132</b>
<b>IV.6.2- Résultats des échantillons N = 85<sup>2</sup> et N = 85<sup>3</sup> / Essais réalisés avec le détecteur ponctuel.</b>	<b>133</b>
<b>IV.7- Essai de déformation in-situ couplés à la diffraction des rayons X</b>	<b>136</b>
<b>IV.7.1- Le rayonnement synchrotron</b>	<b>136</b>
<b>IV.7.2- Dispositif expérimental</b>	<b>137</b>
<b>IV.7.3- Traitement des données</b>	<b>138</b>
<b>IV.7.4- Résultats</b>	<b>139</b>

<b>IV.8- Bilan</b>	<b>144</b>
<b>Références</b>	<b>145</b>
<b>Chapitre V : Effets de taille et d'Architecture : discussion et confrontation expériences/simulation</b>	<b>147</b>
<hr/>	
<b>V.1- Introduction</b>	<b>147</b>
<b>V.2.1- Microstructure/architecture et propriétés électriques macroscopiques</b>	<b>147</b>
V.2.1.1- Conductivité électrique longitudinale	148
V.2.1.2- Conductivité électrique transverse	149
<b>V.2.2- Microstructure/architecture et propriétés mécaniques macroscopiques</b>	<b>151</b>
V.2.2.1- Préambule	151
V.2.2.2- Résultats	152
<b>V.2.3- Microstructure/Architecture et propriétés mécaniques « locales »</b>	<b>156</b>
<b>V.3- Confrontation expériences/simulation</b>	<b>161</b>
<b>V.3.1- Simulations en champ moyen et en champ complet</b>	<b>161</b>
<b>V.3.2 - Simulation des propriétés électriques des conducteurs Cu/Nb-F</b>	<b>162</b>
V.3.2.1 – Conductivité électrique longitudinale	163
V.3.2.2 – Conductivité électrique transverse	164
<b>V.3.3- Simulation des propriétés mécaniques</b>	<b>165</b>
<b>V.4- Bilan</b>	<b>170</b>
<b>Références</b>	<b>172</b>
<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>174</b>
<b>Références</b>	<b>ix</b>

# INTRODUCTION GENERALE

# Introduction générale

---

## Introduction Générale

Les matériaux font partie de notre vie quotidienne et ont été sans doute utilisés dès l'apparition de l'homme sur terre pour la fabrication de son habitat, de ses vêtements, des armes de chasse et/ou de guerre. Ils ont toujours été au cœur des grandes étapes de l'évolution de l'humanité ; ils sont même utilisés pour distinguer les différentes étapes de notre évolution : Age de pierre, Age de bronze, Age du fer [1]. Aujourd'hui, certains parlent de l'Age des « nouveaux matériaux ».

L'une des questions que tout spécialiste en science et ingénierie des matériaux se pose constamment est la suivante : *comment rendre les systèmes les plus performants possibles tout en ayant un poids minimum*. Et, en ce sens, nous pouvons dire qu'ils s'en sortent assez bien dans plusieurs domaines d'applications des matériaux. A titre d'exemple, le premier ordinateur commercialisé à usage civile par IBM vers les années 1940, UNIVAC 1 (UNIVersal Automatic Computer), faisait environ 13 tonnes et occupait une surface au sol de plus de 20m<sup>2</sup>. Grâce aux progrès réalisés en science et ingénierie des matériaux, la microélectronique est née et aujourd'hui nous transportons les ordinateurs dans nos poches.

Avec les développements technologiques, dans pratiquement tous les domaines d'utilisation des matériaux, on s'est très vite rendu compte des limites intrinsèques des matériaux monophasés. En effet, un matériau monophasé présente rarement une combinaison des propriétés pouvant garantir le bon fonctionnement des systèmes dans lesquels il est utilisé. Très souvent, les cahiers des charges exigent une synergie de propriétés antagoniques comme résistance mécanique et ductilité élevées - haute limite d'élasticité et conductivité électrique élevée<sup>1</sup> - grande ténacité et bonne tenue en température - ... Par ailleurs, avec la découverte et les améliorations de plus en plus spectaculaires de la microscopie, la matière est sondée aujourd'hui à des échelles allant du micromètre à l'angström (10<sup>-10</sup>m). Les microstructures des matériaux sont étudiées dans les moindres détails et leurs modifications permettent l'obtention de matériaux avec des propriétés spécifiques exceptionnelles. Par exemple, on compte aujourd'hui des centaines de nuances d'aciers obtenus par modifications microstructurales et/ou par ajout d'éléments d'addition. Ainsi, les aciers austénitiques monophasés TWIP (TWinning Induced Plasticity) à haute teneur en manganèse offrent une combinaison résistance mécanique/ductilité bien supérieure aux aciers à matrice ferritique utilisés dans le domaine de la construction automobile [2]. Et, pour la combinaison haute limite d'élasticité/conductivité électrique élevée, nous pouvons citer les composites métalliques à matrice de cuivre : Cu/W et Cu/Mo [3] Cu/Nb, Cu/Ta Cu/Ag [4 - 9], Cu/Ag [10], Cu/C [11] Cu/Cr, Cu/Ni [12, 13].

Les champs d'applications nécessitant une synergie entre deux ou plusieurs propriétés des matériaux sont nombreux. Pour illustrer ces exigences, prenons comme exemple la fabrication des bobines pour la production de champ magnétique intense. En effet, la demande en champ magnétique, toujours croissante, concerne différents domaines d'applications : de la recherche en physique de la matière condensée à la fusion nucléaire par confinement

---

<sup>1</sup> La limite d'élasticité peut être augmentée écrouissage, effet d'alliage et réduction de la taille des grains ; autant de paramètres qui abaisse la conductivité électrique par accroissement de la diffusion des électrons.

## Introduction générale

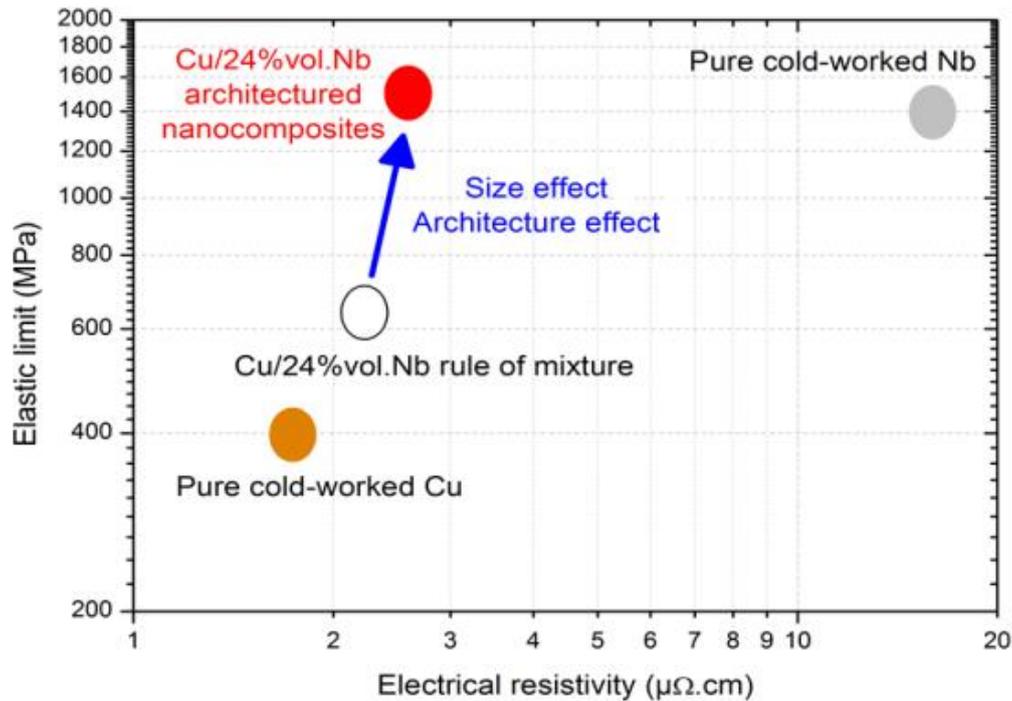
---

magnétique<sup>2</sup> en passant par des disciplines telles que la médecine, la chimie, la biologie, la géologie, la mise en forme des matériaux (par magnéto-formage) pour ne citer que celles-là. Pour la production de champ magnétique supérieur à celui du plus fort aimant naturel, on utilise des électroaimants constitués de bobines de fil électrique dans lequel on fait passer un courant ; l'intensité du champ produit au centre de la bobine augmente avec la valeur du courant électrique. Cependant, un courant trop fort peut faire fondre la bobine via les échauffements par effet joule et un champ magnétique trop intense risque de la faire exploser en raison de la forte pression magnétique générée par les forces de Lorentz. Le fil utilisé pour le bobinage des bobines destinées à générer des champs magnétiques intenses doit donc combiner une limite d'élasticité élevée et une conductivité électrique adéquate.

Plusieurs solutions technologiques sont proposées : les champs magnétiques non destructifs continus ( $B \approx 45\text{T}$ ) ; les champs magnétiques pulsés non destructifs ( $B \leq 100\text{T}$ ) ; les champs magnétiques semi destructifs ( $B \leq 300\text{T}$ ) [14] ; les champs magnétiques destructifs générant des champs jusqu'à  $2000\text{T}$  [15]. Cependant, la solution la moins onéreuse pour la production de champ magnétique intense consiste à utiliser des bobines pulsées. Le matériau utilisé pour le bobinage doit alors combiner une limite d'élasticité élevée (environ  $2\text{GPa}$  pour  $100\text{T}$ ) et une conductivité électrique élevée pour limiter l'échauffement par effet Joule. Aujourd'hui, les champs magnétiques pulsés les plus intenses sont obtenus à l'aide de conducteurs renforcés refroidis à l'azote liquide (pour limiter la surchauffe lors des tirs de champ magnétique). A ce titre, les conducteurs micro-et (nano)-composites cuivre/niobium se positionnent comme d'excellents candidats pour le bobinage des bobines générant des champs magnétiques pulsés intenses et de longues durées ( $\approx$  quelques ms). Le diagramme limite d'élasticité versus résistivité électrique de la figure 1, propose une comparaison de ces deux propriétés pour le cuivre, le niobium, et un composite Cu/Nb équivalent obtenu par la loi des mélanges. Les propriétés obtenues pour les nanocomposites architecturés Cu/Nb apparaissent meilleures que les autres matériaux présents sur le diagramme, preuve de leur excellente combinaison limite d'élasticité/ résistivité électrique.

---

<sup>2</sup> Le confinement magnétique consiste à piéger et maintenir à très haute température un plasma dans une boîte immatérielle de forme torique (tokamak\*) créée par des champs magnétiques.



**Figure 1 :** Diagramme limite d'élasticité versus résistivité électrique mettant en évidence la synergie des propriétés mécaniques et électriques des conducteurs composites nanostructurés et architecturés Cu/Nb fabriqués par déformation plastique sévère [16].

Depuis les travaux de F. Dupouy-Lecouturier où les formidables propriétés mécaniques et électriques des nanocomposites cuivre/niobium et la faisabilité de leur élaboration ont été démontrées [17], plusieurs travaux de recherche ont été menés en vue de la caractérisation et de l'optimisation du procédé d'élaboration de ces conducteurs. Citons, entre autres, les travaux de L. Thilly [18] sur la détermination des paramètres d'optimisation des propriétés des nanocomposites Cu/Nb, dits de « première génération » ( $52 \times 10^6$  filaments continus de Nb dans une matrice de Cu), qui ont permis l'obtention d'un conducteur présentant une limite d'élasticité en traction de 1,9 GPa pour une résistivité de  $0,58 \mu\Omega\text{cm}$  [18]. Cependant, des ruptures internes lors de la dernière étape d'élaboration ont empêché d'obtenir des longueurs suffisantes pour la fabrication de bobine. Dans ce même ordre d'idée, les travaux de V. Vidal [19], consacrés principalement à l'optimisation de la géométrie des renforts et la précision du lien entre la microstructure et les mécanismes de co-déformation des nanocomposites (dits de « deuxième génération » :  $85 \times 10^6$  tubes ou filaments de Nb dans la matrice de Cu) ont permis de retarder considérablement l'apparition des fissures, mais les longueurs étaient encore insuffisantes pour la fabrication de bobines. La poursuite de l'optimisation du procédé d'élaboration avec la thèse de J.-B. Dubois [20] sur, notamment, l'évolution de la texture avec les traitements thermiques a permis l'obtention de plus grandes longueurs de fil sans défauts et a aussi confirmé les bonnes propriétés de co-déformation du cuivre et des renforts de niobium. Les résultats obtenus ont ainsi permis d'envisager l'élaboration de bobines non destructives à l'aide de fils Cu/Nb générant plus de 80 T au Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses de Toulouse (LNCMI). A l'issue de la thèse de J.-B. Dubois, il a été prévu l'élaboration de longueurs suffisantes pour la

## Introduction générale

---

fabrication de bobines générant environ 100T, moyennant une optimisation du procédé d'élaboration.

Les travaux présentés dans ce manuscrit rentrent dans le cadre du projet ANR-METAFORES (ANR-12-BS09-0002) visant le couplage de résultats expérimentaux et de simulations en vue d'évaluer les effets de taille et d'architecture sur les propriétés mécaniques et électriques des conducteurs composites Cu/Nb. Le projet METAFORES que l'on peut traduire du titre anglais par « Matériaux à architecture élémentaire sur mesure pour réponse fonctionnelle optimisée : de l'expérience à la simulation », s'articule autour de trois axes avec la participation de cinq laboratoires français (Institut Pprime de Poitiers, LNCMI de Toulouse, LLB, CDM et PIMM)<sup>3</sup>. L'axe 1 vise à fournir des données précises et pertinentes sur la taille et la géométrie des grains, la texture cristallographique et les propriétés macroscopiques des fils composites en vue d'assurer, au niveau de l'axe 2, une représentation robuste et réaliste de la microstructure dans les calculs de modélisation micromécanique et électrique. Le troisième axe, à travers des mesures de déformation in-situ, doit permettre d'évaluer les propriétés mécaniques de chaque phase et/ou des différentes familles de grains constituant la microstructure des nanocomposites Cu/Nb. Enfin, le couplage des différents résultats des simulations (obtenus durant la thèse effectuée par Tang GU à ENSAM-Paris et Mines ParisTech dans le cadre du projet METAFORES) et des expériences sera réalisé, en vue d'évaluer les rôles de l'architecture et de la microstructure sur les propriétés de ces conducteurs, pour la définition de critères de conception optimisés.

Les travaux de ce mémoire, de nature expérimentale, s'inscrivent dans les axes 1 et 3 décrits précédemment. Pour cela, il a été fait appel à plusieurs techniques pour la caractérisation de la microstructure et des propriétés (mécaniques et électriques) de conducteurs Cu/Nb-F (« F » pour « filamentaire »). La structure de ce mémoire reflète cette approche expérimentale :

Au chapitre I, nous essayerons d'aborder les principaux termes utilisés dans le manuscrit pour ensuite faire une synthèse bibliographique sur les grandes classes de matériaux métalliques et le concept d'architecture ; nous terminerons le chapitre par la présentation des composites cuivre/niobium fabriqués par Accumulative Roll Bonding (ARB) et Accumulative Drawing and Bundling (ADB).

Les chapitres II à IV seront consacrés à la caractérisation de la microstructure, des propriétés mécaniques et électriques. En particulier, le chapitre II présentera les résultats des essais mécaniques via des tests de traction uniaxiale et des mesures de conductivité électrique longitudinale et transversale. Au chapitre III, nous présenterons les résultats des analyses de la texture cristallographique globale (par diffraction des rayons X) et locale (par diffraction des électrons rétrodiffusés). Le chapitre IV sera consacré à la déformation in-situ couplée à la diffraction des neutrons et des rayons X.

---

<sup>3</sup> **LLB** : Laboratoire Léon Brillouin du CEA- **CDM** : Centre Des Matériaux - **MINES ParisTech**, Laboratoire rattaché à l'Ecole des Mines de Paris - **PIMM** : Laboratoire Procédés et Ingénierie en Mécanique et Matériaux rattaché à l'ENSAM Paris.

## **Introduction générale**

---

Le chapitre V est divisé en deux parties. Dans la première partie, nous discuterons des résultats présentés aux chapitres II à IV tout en essayant de dégager la synergie qui existe entre la microstructure et l'architecture des fils composites Cu/Nb. La deuxième partie sera consacrée à une confrontation des résultats expérimentaux et de simulations pour les propriétés mécaniques et électriques.

Une conclusion générale viendra clore ce manuscrit et donner des perspectives à ce travail.

### Références

- [1] Alain CORNET, Françoise HLAWKA, Propriétés et comportements des matériaux, Paris: Ellipses Edition Marketing S.A., 2003.
- [2] Sébastien ALLAIN, Mémoire HDR, «Comportement mécanique des aciers : des mécanismes fondamentaux à la déformation macroscopique,» Université de Lorraine, Metz, 2012.
- [3] A. Kelly, W. R. Tyson, «Tensile properties of fiber-reinforced metal: Copper/Tungsten and Copper/Molybdenum,» *J. Mech. Phys. Solids.*, vol. 13, pp. 329 - 350., 1965.
- [4] Dierk Raabe, Frank Heringhaus, Ude Hangen and Gunter Gottstein, «Investigation of a Cu-20 mass% Nb in situ Composite, Part II: Electromagnetic Properties and Application,» *Z. Metallkd.*, vol. 86, n° 16, pp. 416-422, 1995.
- [5] K. Han, A. C. Lawson, J. T. Wood, J. D. Embury, R. B. Von Dreele, J. W. Richardson, Jr, «Internal stresses in cold-deformed Cu–Ag and Cu–Nb wires,» *Philosophical Magazine*, vol. 84, n° 124, p. 2579–2593, 2004.
- [6] L. Thilly, M. Véron, O. Ludwig, F. Lecouturier, «Deformation mechanism in high strength Cu/Nb nanocomposites,» *Materials Science and Engineering A*, vol. 309–310, p. 510–513, 2001.
- [7] P. D. KROTZ, W. A. SPITZIG and F. C. LAABS, «High Temperature Properties of Heavily Deformed Cu-20%Nb and Cu-20% Ta Composites,» *Materials Science and Engineering, A*, vol. 110, pp. 37-47, 1989.
- [8] J.S. Carpenter, S.C. Vogel, J.E. LeDonne, D.L. Hammon, I.J. Beyerlein, N.A. Mara, «Bulk texture evolution of Cu–Nb nanolamellar composites during accumulative roll bonding,» *Acta Materialia*, vol. 60, p. 1576–1586, 2012.
- [9] K.A. Darling, E.L. Huskins, B.E. Schuster, Q. Wei, L.J. Kecskes, «Mechanical properties of a high strength Cu–Ta composite at elevated temperature,» *Materials Science & Engineering A*, vol. 638, p. 322–328, 2015.
- [10] Z. Rdzawski, W. Głuchowski, J. Stobrawa, W. Kempieński, B. Andrzejewski, «Microstructure and properties of Cu–Nb and Cu–Ag nanofiber composites,» *Archives of civil and mechanical engineering*, vol. 15, p. 689 – 697, 2015.
- [11] Evarice Yama Nzoma, Alain Guillet, and Philippe Pareige, «Nanostructured Multifilamentary Carbon-Copper Composites: Fabrication, Microstructural Characterization, and Properties,»

## Introduction générale

---

*Journal of Nanomaterials*, vol. 2012, p. 11, 2012.

- [12] A. Misra, M. Verdier, Y.C. Lu, H. Kung, T.E. Mitchell, M. Nastasi and J.D. Embury, «Structure and Mechanical Properties of Cu-X (X=Nb,Cr,Ni) Nanolayered Composites,» *JOHN HIRTH SYMPOSIUM*, vol. 39, pp. 555-560, 1998.
- [13] N.A. Mara, D. Bhattacharyya, R.G. Hoagland and A. Misra, «Tensile behavior of 40 nm Cu/Nb nanoscale multilayers,» *Scripta Materialia*, vol. 58, p. 874–877, 2008.
- [14] "High Magnetic Field Science and Its Application in the United States: Current Status and Future Directions," National Academies Press, Washintong DC, 2013.
- [15] François Debray, Paul Frings, «State of the art and developments of high field magnets at the "Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses",» *Comptes Rendus Physique*, vol. 14, p. 2–14, 2013 .
- [16] K. Spencer, F. Lecouturier, L. Thilly, J.D. Embury, *Adv. Eng. Mat.*, vol. 290, pp. 6-5, 2004.
- [17] Florence DUPOUY, Rapport de thèse, «Contribution au Développement des Champs Magnétiques Pulsés très Intenses: R & D des Conducteurs Renforcés,» INSA-Toulouse, Toulouse, 1995.
- [18] Ludovic Thilly, Rapport de thèse, «Exploration théorique et expérimentale de fils « nanocomposites continus » présentant des propriétés extrêmes de conductivité électrique et de limite élastique. Application future : coilin 100 T,» Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, Toulouse, 2000.
- [19] Vanessa VIDAL, Rapport de thèse, «Optimisation des propriétés mécaniques des conducteurs nanofilamentaires Cu/X- X=Nb ou Ta,» Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, Toulouse, 2006.
- [20] Jean-Baptiste DUBOIS, Rapport de thèse, «Conducteurs nanocomposites métalliques élaborés par déformation plastique sévère : formation et stabilité thermo-mécanique des nanostructures, propriétés induites,» Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées de l'université de Poitiers, Poitiers, 2010.



**CHAPITRE I : SYNTHÈSE  
BIBLIOGRAPHIQUE**

# Synthèse bibliographique

---

## Table des matières

<b>Chapitre I : Synthèse Bibliographique.....</b>	<b>8</b>
<b>I.1 – Définitions .....</b>	<b>8</b>
<b>I.2- Défauts dans les matériaux cristallins.....</b>	<b>9</b>
<b>I.3– Les grandes classes de matériaux .....</b>	<b>10</b>
I.3.1- Matériaux composites.....	11
I.3.2- Matériaux multifonctionnels.....	12
I.3.3- Matériaux hybrides .....	13
I.3.4- Matériaux nanostructurés .....	15
I.3.4.1- Affinement microstructural et plasticité cristalline .....	16
I.3.4.2- Obtention des Matériaux nanostructurés .....	17
I.3.4.3- Techniques de déformation plastique sévère.....	18
I.3.4.4- Extrusion et ré-empilements successifs (ou ADB : Accumulative Drawing and Bundling) .....	18
I.3.4.5- Limites de l’affinement des microstructures par les techniques de SPD.....	19
I.3.5- Matériaux architecturés.....	20
<b>I.4- Etat de l’art sur Les composites métalliques à matrice de cuivre .....</b>	<b>21</b>
I.4.1- Composites à matrice métallique .....	22
I.4.2- Composites cuivre/niobium .....	23
I.4.2.1- Conducteurs Cu/Nb fabriqués par ARB.....	24
I.4.2.2- Microstructure des composites Cu/Nb fabriqués par ARB .....	24
I.4.2.3- Texture cristallographique dans les composites Cu/Nb fabriqués par ARB.....	25
I.4.2.3- Présentation des cuivre/niobium fabriqués par ADB .....	28
I.4.2.4- Microstructure des composites cuivre/niobium fabriqués par SPD .....	30
I.4.2.5.- Texture cristallographique dans les composites Cu/Nb.....	30
I.4.2.6- Taille et morphologie des grains.....	31
<b>I.5- Bilan.....</b>	<b>35</b>
<b>Références .....</b>	<b>36</b>

## Chapitre I : Synthèse Bibliographique

Ce chapitre est dédié à une synthèse bibliographique sur les matériaux nanostructurés et/ou architecturés avec un focus sur les composites à base de cuivre. Dans un premier temps, nous essayerons, dans la mesure du possible, de donner une définition des principaux termes et expressions abordés dans ce manuscrit. Nous ferons, dans un deuxième temps, une introduction sur les principaux constituants de la matière avant de donner un classement non exhaustif des grandes classes de matériaux et leurs principales propriétés. La dernière section traitera des composites cuivre/niobium fabriqués essentiellement par déformation plastique sévère.

### I.1 – Définitions

**Science des Matériaux :** La science (ou science et ingénierie) des matériaux est un domaine interdisciplinaire de la science qui étudie et manipule la composition, la structure des matériaux sur des échelles allant du nanomètre au mètre (voire plus) dans le but de contrôler les propriétés des matériaux grâce à des procédés de synthèses et de traitements. L'une des principales missions du scientifique en science des matériaux consiste en l'établissement des relations entre les performances d'un matériau et sa microstructure, sa composition. La science des matériaux se focalise donc sur les relations sous-jacentes entre la synthèse et le traitement, la structure et les propriétés des matériaux.

**Cristal :** D'une manière générale, un cristal est un matériau dont le cliché de diffraction est essentiellement constitué de point. En d'autres termes, la plupart de l'intensité est localisée sur des pics de Bragg relativement étroits [1]. Certains cristaux sont constitués à partir d'un motif atomique se répétant périodiquement dans les trois directions de l'espace et engendrant ainsi un réseau. Dans ce cas, la maille cristalline est entièrement décrite par :

- Les longueurs  $a$ ,  $b$ , et  $c$  des arêtes appelées « paramètres de maille du cristal »
- Les angle  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  formés respectivement par les arêtes  $(a,b)$ ,  $(a,c)$  et  $(c,b)$
- La nature, la position et le nombre d'atomes formant l'édifice.

**Réseau cristallin :** un réseau (objet mathématique descriptif) est constitué par un ensemble de points appelés nœuds ; à chaque nœud de ce réseau se trouve un motif (objet physique) qui, dans le cas d'un matériau, peut être un atome, une molécule ou un ion. Dans un cristal, toute droite passant par deux nœuds du réseau est appelée « rangée cristalline ». Tous les autres nœuds du réseau peuvent être décrits par des rangées parallèles à la première rangée considérée et l'ensemble des rangées ainsi considéré porte le nom de « famille de rangées cristallines ». Un « plan cristallin » (ou plan réticulaire) lui, est défini par trois nœuds du réseau ne se situant pas sur une même rangée. Le plan est représenté par les indices de Miller  $(hkl)$ , entiers le plus petits possibles). Tous les autres nœuds du réseau peuvent être disposés dans des plans parallèles au précédent. Le réseau cristallin étant périodique, dans une direction donnée, tous les plans parallèles sont équidistants. L'ensemble de plans parallèles et équidistants ainsi constitué est appelé « famille de plans cristallins » (ou réticulaires) et la distance entre deux plans consécutifs est appelée « distance interréticulaire », notée  $d_{hkl}$ . Les familles de plans équivalents par symétrie sont notées par les indices de Miller entre accolade

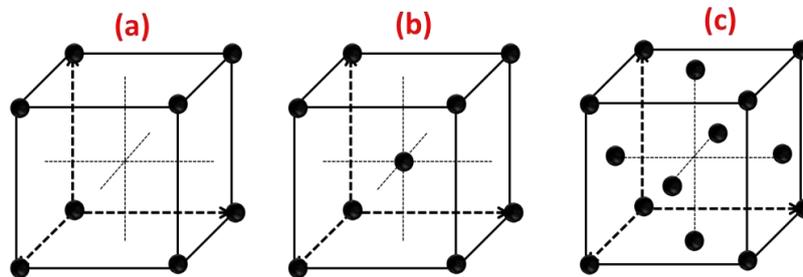
## Synthèse bibliographique

{hkl}. Par exemple, dans un réseau cubique, {100} représente l'ensemble des familles de plans des faces (100), (010), (001), ( $\bar{1}00$ ), ( $0\bar{1}0$ ), ( $00\bar{1}$ ).

**Maille cristalline :** une maille est la plus petite portion du réseau ayant les mêmes symétries que le réseau lui-même. Une maille est donc un prisme composé de plusieurs nœuds ; le réseau est un empilement de mailles élémentaires

Par exemple, pour les structures cubiques de la figure 1.2, les motifs (atomes) sont situés :

- à chacun des 8 sommets ( $8 \times 1/8$ ) de la maille; on a donc 1 atome par maille, c'est la structure cubique simple (figure 1.1a);
- à chacun des 8 sommets ( $8 \times 1/8$ ) et au centre de la maille ce qui donne 2 atomes par maille, c'est la structure cubique centrée (figure 1.1b);
- à chacun des 8 sommets ( $8 \times 1/8$ ) et au centre de chacune des 6 faces ( $6 \times 1/2$ ) ce qui donne un total de 4 atomes par maille, c'est la structure cubique à faces centrées (figure 1.1c)



**Figure 1. 1:** Les 3 structures cubiques des matériaux cristallins : (a) cubique simple (b) cubique centrée (c) cubique à faces centrées.

Tous les systèmes cristallins sont décrits par 7 grands types de mailles cristallines répartis en 14 réseaux (de Bravais) et leurs éléments de symétrie (voir annexe A-I). Un réseau est dit de Bravais si, à partir de chacun de ses points, on retrouve le cristal identiquement à lui-même, en structure, en orientation et en composition chimique. Le cristal est donc caractéristique de sa structure cristalline de base et des paramètres qui en découlent.

**Le polycristal :** la grande majorité des matériaux (métaux, alliages, céramiques...) est constituée d'agglomérats complexes de petits cristaux (que l'on va par la suite appeler cristallites ou grains). Un polycristal est défini comme un agrégat de grains. L'interface entre deux grains contigus est appelée joint de grains ; la plupart des propriétés macroscopiques du polycristal dépend fortement à la fois des propriétés individuelles des grains le constituant et de l'influence des joints de grains [2]. Le polycristal se caractérise par les dimensions, la forme de ses grains et par leur orientation les uns par rapport aux autres.

### I.2- Défauts dans les matériaux cristallins

Le cristal défini jusqu'ici (répétition périodique d'une maille élémentaire) représente le cristal idéal. Les cristaux réels sont de structures différentes, du moins localement, car ils sont le siège de défauts de différentes natures. Ces défauts, qui peuvent être ponctuels, à une, deux ou trois dimensions ne sont pas toujours néfastes quant aux propriétés des matériaux ; dans beaucoup de cas, on les favorise lors des procédés de fabrications en vue d'obtenir un

## Synthèse bibliographique

matériau final avec des propriétés spécifiques. Ces différents types de défauts et certaines de leurs influences sur les propriétés des matériaux sont listés dans le tableau I.1 (voir note de bas de page<sup>4</sup>).

Dimension	Type	Influence
0	Lacunes	Diffusion à l'état solide
	Défauts de Frenkel et de Schottky	Conductivité électrique (cristaux ionique)
	Atomes étrangers en (interstitiel, substitution)	Propriétés mécaniques – conductivité électrique (isolants et semi-conducteurs)
1	Dislocations	Propriétés mécaniques et électriques
2	Macles, joints de grains, défauts d'empilement	Propriétés mécaniques (ductilité)
3	Précipités, inclusions	Propriétés mécanique et magnétiques- traitements thermiques

Tableau I. 1: Principaux défauts cristallins et certaines de leurs influences sur les propriétés des matériaux.

### I.3- Les grandes classes de matériaux

Au sein de la matière, les atomes sont liés par des liaisons chimiques qui peuvent être de quatre types principaux : covalente, métallique, ionique et Van der Waals (ou hydrogène). Les propriétés d'un matériau sont fortement corrélées au type de liaisons entre les atomes car elles déterminent l'énergie de cohésion de celui-ci, la force nécessaire pour écarter les atomes les uns des autres jusqu'à la rupture ainsi que le coefficient de dilatation, la conductivité électrique ou thermique... Les matériaux sont souvent classés (par l'ingénieur) en trois grandes classes à partir du type de liaison mis en jeu entre les atomes : les métaux et leurs alliages (ductilité – liaisons métalliques et covalentes), les céramiques et les verres (fragilité et dureté – liaisons ioniques et covalentes), les polymères (déformabilité – liaisons de Van der Waals et de type hydrogène). En fonction de leur température de désintégration, les liaisons sont classées en liaisons fortes (métalliques, ioniques et covalentes) et liaisons faibles ou intermédiaires (Van der Waals et hydrogène).

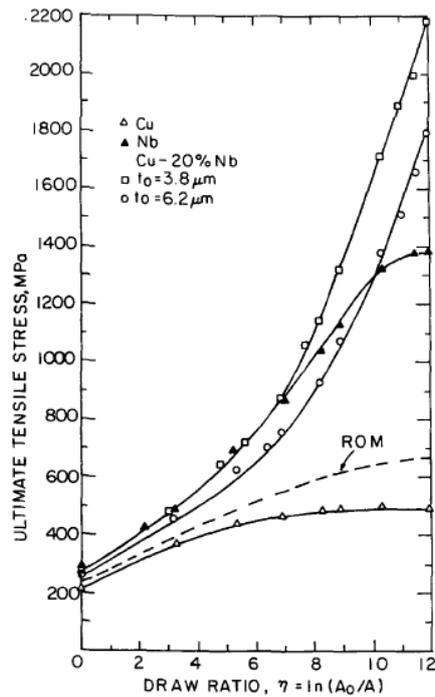
Les matériaux peuvent aussi être subdivisés en se basant sur leur mode d'emploi : soit de structure, soit de fonction. La distinction n'est, en pratique, pas toujours claire, car un matériau doit le plus souvent remplir (pas toujours avec les mêmes exigences) les deux conditions d'emploi. De façon générale, les matériaux de structure ou à fonction structurale sont principalement destinés à résister, sans subir de déformation excessive et sans se rompre, à des sollicitations mécaniques. Ils doivent également résister à toutes les formes de détériorations (vieillissement, corrosion) ; ils peuvent être des métaux, des polymères, des céramiques ou des composites. Les matériaux de fonction sont ceux conçus, élaborés et mis en forme pour remplir une fonction associée à une propriété spécifique, physique – optique –

<sup>4</sup> D'après les cours : « Introduction, Structure, Défauts » de A.-F GOURGUES-LORENZON ; Collection Les Cours. Mines ParisTech 2006 et « Matériaux cristallisés » de Nicolas LEQUEUX, ESPCI-Paris 2015-2016.

électrique ou magnétique – chimique ou électrochimique, et intervenant dans un dispositif ou un système ; ils peuvent être des métaux, polymères, céramiques ou composites.

### I.3.1- Matériaux composites

L'idée principale dans le développement des matériaux composites est de mélanger les propriétés de matériaux différents. Au sens large, le mot composite signifie constitué de deux ou de plusieurs parties différentes. Dans un sens beaucoup plus restrictif, un matériau composite peut être défini comme étant l'assemblage de deux matériaux de natures différentes, se complétant et permettant d'aboutir à un matériau dont les performances combinées peuvent être supérieures à celles des composants pris séparément [3]. En d'autres termes un matériau composite est donc un assemblage de plusieurs éléments qui produit une synergie entre les propriétés de ces éléments. Un composite est constitué d'un matériau de base (la matrice) et d'un matériau de renfort qui peut être sous forme de particules ou de fibres. Il existe différentes sous-classes de composites suivant la nature de la matrice : a) les composites à matrice organique (papier, carton, plastiques renforcés... b) les composites à matrice minérale (béton, composite céramique... c) les composites à matrice métallique. Les composites à matrice métallique (MMC) représentent un enjeu majeur dans plusieurs champs d'applications (aéronautique, spatial, militaire...) car ils exhibent à la fois de hautes propriétés mécaniques et/ou électriques à haute température et une masse volumique relativement faible. La figure 1.2 illustre les performances mécaniques d'un composite métallique cuivre/niobium en comparaison de celles du cuivre et du niobium pris séparément, dans le cas de fils obtenus à divers taux d'étirage. Nous verrons plus loin que les propriétés de ce composite sont supérieures aux prédictions des lois de mélange, car il y a aussi, après un certain taux d'étirage, une modification microstructurale qui induit un effet de taille, qui sera abordé au paragraphe I.4.



**Figure 1. 2 :** Comparaison des propriétés mécaniques d'un composite Cu/20%Nb aux propriétés du cuivre et du niobium pris séparément [4, 5].

### I.3.2- Matériaux multifonctionnels

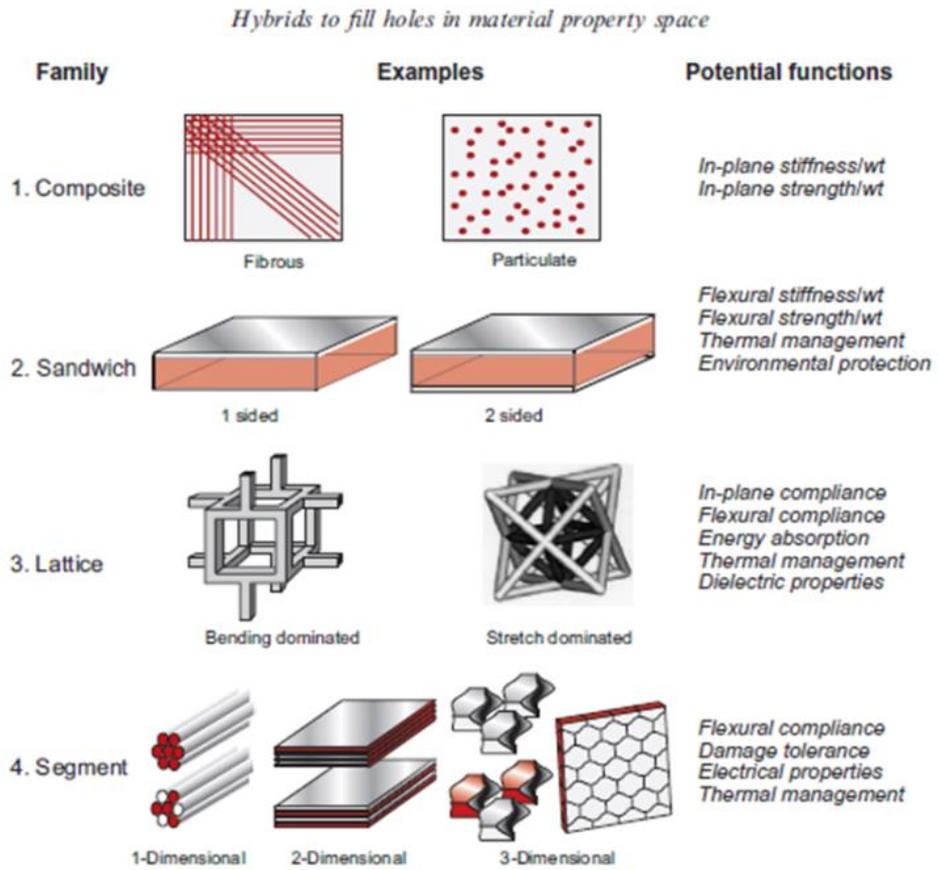
A une époque où les termes « énergie », « environnement », « développement durable » sont au cœur des préoccupations sociétales, l'utilisation de matériaux multifonctionnels devient une nécessité. Un matériau multifonctionnel, comme son nom l'indique, est un matériau qui combine en un seul et unique système plusieurs propriétés lui permettant de réaliser des performances multiples. Ces matériaux innovants sont destinés à tous champs d'applications (ou presque). Dans le domaine militaire, le soldat de l'armée de terre peut bien illustrer le besoin de l'utilisation de matériaux multifonctionnel. En effet, le soldat « débarqué » peut être considéré comme étant un système complexe composé de sous-systèmes qui doivent être conçus de façon à garantir la fonctionnalité, la santé et la sécurité du soldat. Son uniforme, par exemple, doit être confectionné à l'aide de matériaux combinant légèreté, résistance mécanique, résistance aux agents chimiques et biologiques et garantissant sa fonctionnalité en conditions environnementales extrêmes (froid, chaleur...). Il doit aussi être doté de systèmes antibalistiques et de communication faisant intervenir des technologies de pointe. Et tout ceci passe nécessairement par la mise au point de nouveaux matériaux tels que les matériaux multifonctionnels. Parmi ceux-ci, comme nous le verrons plus loin, on retrouve les alvéolaires, les matériaux autobloquants (cf. figure 1.3), les matériaux composites, les matériaux hybrides, les matériaux architecturés, pour ne citer que ceux-là. Au début des années 80, le terme de matériaux intelligents (« smart materials »), c'est-à-dire un matériau qui soit capable de s'adapter, sous l'effet d'un stimulus externe, pour mieux remplir leur mission dans un environnement changeant, est même apparu [6].

### I.3.3- Matériaux hybrides

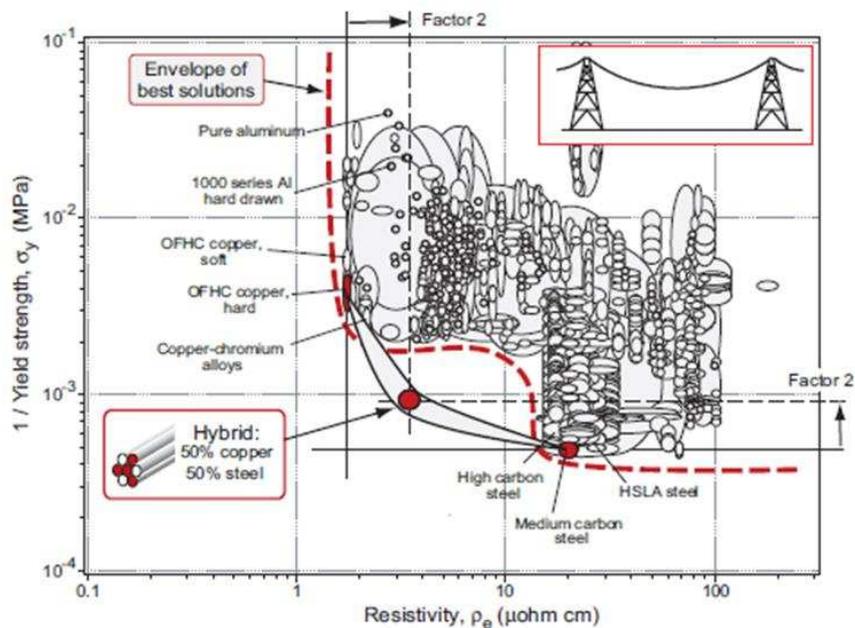
Les matériaux hybrides sont ceux obtenus par des combinaisons de deux (ou plus) matériaux monophasés assemblés de manière à avoir des propriétés non offertes par aucun des constituants pris séparément ; et partant de cette définition, les composites à renforts de particules ou de fibres, les structures « sandwich », le bois, ... sont des types de matériaux hybrides (cf. figure 1.3) [7]. Un matériau hybride est, le plus souvent, constitué à la fois d'espèces organiques et inorganiques. L'élément minéral peut être un métal (titane, zirconium, aluminium...) et la partie organique peut être soit inerte soit susceptible de polymériser par voie thermique ou par insolation UV [8, 9].

Le diagramme d'ASHBY de la figure 1.4 montre un exemple de performance des matériaux hybrides. Ce diagramme fait référence à un concepteur voulant fabriquer un matériau pour câble d'alimentation électrique de longue portée ; les caractéristiques principales d'un tel matériau sont une combinaison de bonne résistance mécanique et de conductivité électrique élevée. Sur ce diagramme, 1700 métaux et leurs alliages sont présentés. Les meilleurs conducteurs électriques sont le cuivre, l'aluminium et certains de leurs alliages, cependant, leurs résistances mécaniques sont médiocres ; ils ne peuvent donc pas satisfaire aux exigences du cahier des charges associé à ces câbles d'alimentation électrique. D'un autre côté, les matériaux les plus résistants sont le carbone et certains aciers qui ne sont pas bons conducteurs de l'électricité. En supposant que l'acier ne conduit pas l'électricité et que le cuivre a une résistance mécanique nulle, un matériau hybride fabriqué de 50% de fils de cuivre et de 50% de fils d'acier (encadré rouge en bas à gauche sur le diagramme), possède une résistance électrique valant deux fois celle du cuivre et la moitié de la résistance mécanique de l'acier [7]. Ce matériau hybride fabriqué à partir de deux matériaux monophasés allie donc deux propriétés (antagoniques) permettant ainsi de satisfaire aux exigences du cahier des charges.

# Synthèse bibliographique



**Figure 1. 3:** Quatre familles de configuration de matériaux hybrides avec leurs fonctionnalités principales [7].



**Figure 1. 4:** Conception de matériau hybride pour la synergie entre résistance mécanique et conductivité électrique élevées [7].

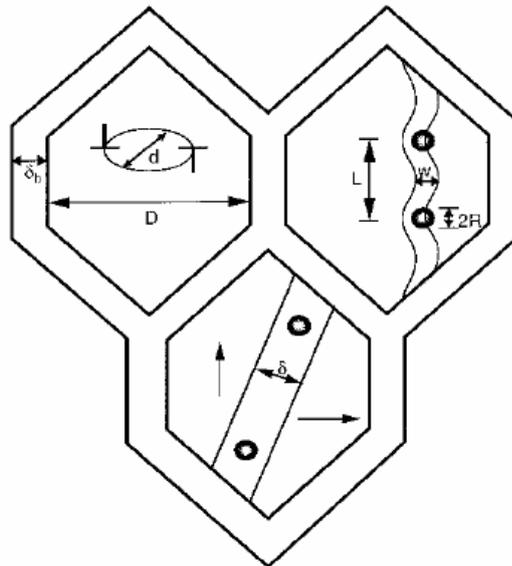
### I.3.4- Matériaux nanostructurés

La norme définit un nanomatériau comme étant un matériau composé (ou constitué) de nano-objets dont la taille est comprise entre 1 et 100nm et qui présente des propriétés spécifiques à l'échelle nanométrique. Cette définition repose sur des observations microstructurales : dans un matériau massif, c'est à partir de cette taille de grains que la fraction volumique d'atomes présents au niveau des joints de grains devient non négligeable [10].

Dans la référence [10], il a été rapporté une définition, plus rigoureuse, des nanomatériaux se basant sur des considérations physiques, fondées sur l'interaction microstructure-propriétés :

« Pour une propriété physique donnée, un nanomatériau est un matériau dont l'une des dimensions structurales est de l'ordre de grandeur ou inférieure à l'une des longueurs physiques caractéristiques de la propriété considérée ».

Cette définition repose sur deux grandeurs : une dimension structurale  $d$ , caractéristique de la microstructure et une longueur physique  $\lambda$ , caractéristique de la propriété étudiée. Des exemples de ces deux grandeurs sont donnés à la figure 1.5 ; pour la plasticité,  $\lambda$  peut correspondre à la taille des grains  $D$ , à l'espacement entre précipités  $L$ , etc.



**Figure 1. 5:** Exemples de dimensions structurales : taille de grains  $D$ , largeur des joints de grains  $\delta_b$ , distance entre obstacles  $L$ , largeur d'un obstacle  $R$ . Exemples de longueurs physiques caractéristiques : diamètre  $d$  d'une boucle de dislocation, distance entre deux dislocations partielles  $w$ , largeur d'une paroi de domaine magnétique  $\delta$  [10].

## I.3.4.1- Affinement microstructural et plasticité cristalline

Il est bien établi que l'affinement de la microstructure d'un matériau a un impact sur sa plasticité. Il existe déjà un grand nombre d'articles sur les propriétés mécaniques des matériaux cristallins obtenus par réduction de la taille moyenne des grains [11-14]. La figure 1.6 illustre différents effets de l'affinement microstructural sur la plasticité cristalline. Comme nous pouvons l'observer sur cette figure, en partant d'un matériau à gros grains, la réduction de la taille des grains peut avoir différents effets sur la limite d'élasticité. Différents comportements et les mécanismes sous-jacents ont été reportés dans la référence [12] ; certains peuvent même entraîner une baisse de la limite d'élasticité.

En effet, le domaine **I** est traduit par une loi bien connue en science et ingénierie des matériaux : la loi de HALL et PETCH, décrite par la relation (1), met en évidence une dépendance en  $1/\sqrt{\delta}$  de la limite d'élasticité,  $\delta$  étant la taille des grains :

$$\sigma_M = \sigma_0 + k\delta^{-1/2} \quad (1)$$

$\sigma_M$  est la limite d'écoulement macroscopique du matériau en MPa

$\sigma_0$  est idéalement la contrainte d'écoulement du monocristal en MPa

$\delta$  est la taille moyenne des grains en mm

$k$  est la constante de Hall-Petch en MPa mm<sup>1/2</sup>

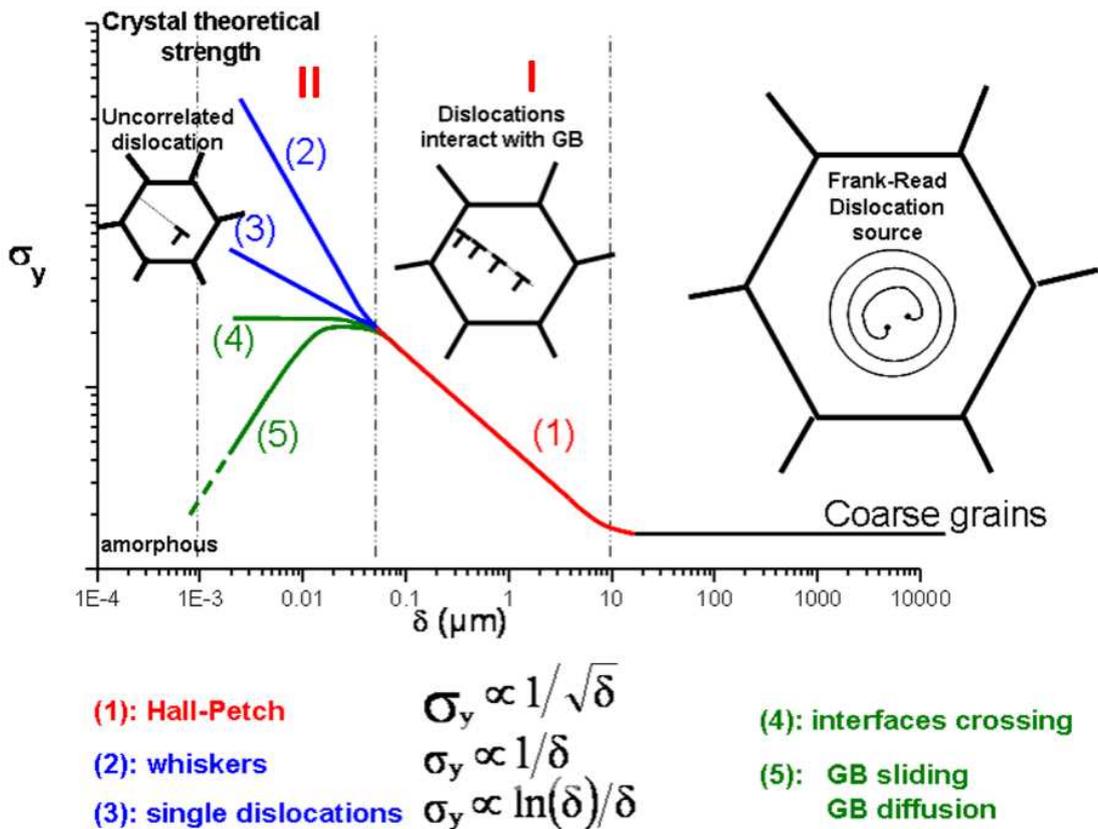


Figure 1.6 : Effets de taille sur la plasticité des matériaux cristallins [12].

Cette relation traduit l'augmentation de la résistance mécanique des matériaux par réduction de leur taille moyenne de grains. Comme nous pouvons l'observer sur la figure 1.6, la loi de HALL et PETCH reste valable jusqu'à une certaine taille de grain en dessous de laquelle on observe une déviation à cette loi que certains auteurs appellent la « loi de Hall-Petch inverse » [13, 15-19].

Depuis l'introduction de la loi de HALL et PETCH<sup>5</sup>, de nombreuses études ont été menées sur les propriétés mécaniques des matériaux à grains ultrafins. Et, plusieurs modèles ont été proposés en vue d'expliquer l'origine physique de la loi dont ils sont à l'origine :

- a) Le modèle d'empilement des dislocations associé à la formation d'empilements de dislocations aux joints de grains lorsque le matériau est soumis à contrainte extérieure.
- b) Le modèle de durcissement par dislocations qui suppose que la densité de dislocations nécessaire pour entrer dans le régime plastique dépend de la taille de grain et évolue en  $1/\delta$ , où  $\delta$  représente la taille de grain.
- c) Le modèle considérant le joint de grain comme source de dislocation qui suppose que la relation de Hall-Petch dérive de la capacité du joint de grain à émettre des dislocations.

La relation de Hall-Petch prévoit une dépendance en  $(\delta)^{-1/2}$  de la limite d'élasticité ; cette relation suppose que la limite d'élasticité doit tendre vers infini lorsque la taille de grain tend vers zéro. Cependant, des études expérimentales ont montré que, pour une certaine taille de grain, la limite d'élasticité cesse d'augmenter avec la diminution de la taille de grain. Dans le cas de matériaux à grains ultrafins ou nanométriques (domaine II de la figure 1.6), d'autres phénomènes comme l'émission des dislocations par les joints de grains, leur propagation dans le grain puis leur accumulation et leur absorption dans les joints de grains prédominent dans les mécanismes de la déformation plastique [20-23]. Cependant, d'autres mécanismes peuvent intervenir dans le phénomène de plasticité dans le cas de matériaux de types composites. Par exemple, F. Dupouy-Lecouturier et L. Thilly ont mis en évidence un comportement de type whiskers des renforts de niobium dans les nanocomposites filamenteux Cu/Nb [24]. La limite d'élasticité est alors proportionnelle à  $1/\delta$  ; notons que, comme nous le verrons au chapitre V, le comportement de type whiskers peut aussi être traduit par une loi exponentielle. La plasticité des whiskers est supposée contrôlée par la nucléation de nouvelles dislocations. Un mécanisme de type « boucles unitaires d'Orowan » pour des composites multicouches Cu/Nb a été rapporté dans la référence [11] avec une dépendance en  $\ln(\delta)/\delta$  de la limite d'élasticité.

### I.3.4.2- Obtention des Matériaux nanostructurés

Deux approches sont le plus souvent utilisées pour réduire la taille des grains des matériaux :

- a) L'approche « bottom-up » signifiant littéralement « de bas en haut » (et qui ne sera pas traitée ici) consiste à synthétiser atome par atome, couche par couche, et/ou

---

<sup>5</sup> La loi de Hall et Petch, établie initialement pour des contraintes de clivage, a depuis été étendue à la limite d'élasticité.

agglomération-consolidation de nanoparticules pour former un matériau massif à grains ultrafins.

- b) L'approche « top-down » signifiant littéralement « de haut en bas » consiste en la subdivision de la taille des grains d'un matériau massif à gros grains par accumulation de déformations. Contrairement à la première approche utilisée en métallurgie des poudres, cette dernière (déformation plastique sévère) offre, entre autres, la possibilité d'obtenir un matériau massif exempt de porosité.

### **I.3.4.3- Techniques de déformation plastique sévère**

La déformation Plastique Sévère (ou intense) est un terme générique qui regroupe les techniques s'appuyant sur des procédés de mise en forme de matériaux par application de déformations importantes permettant l'affinement de leur microstructure, accompagné de la formation progressive de grains fortement désorientés (HAGBs, High Angle Grain Boundaries) [20]. Cet affinement de la microstructure entraîne une augmentation de la résistance mécanique du matériau. W.A. Spitzig et P. D. Krotz ont ainsi mis en évidence l'évolution de la contrainte maximale de traction (UTS) d'un composite in-situ Cu/Nb avec l'affinement de la microstructure. Ils ont comparé les valeurs d'UTS du composite avec celles du Cu, du Nb et des prédictions de la loi de mélange (voir figure 1.2) [5]. On voit clairement l'évolution spectaculaire de l'UTS du composite ; pour des filaments de Nb de diamètre  $3,8\mu\text{m}$  (obtenus à des taux de déformation de l'ordre de 12), l'UTS du composite vaut plus du triple de celle prédite par la loi des mélanges. Toutes les techniques de Déformation Plastique Sévère mettent en jeu, pour l'affinement des microstructures, le confinement de la matière afin d'éviter les instabilités et la rupture des matériaux en cours de fabrication. Ces techniques qui continuent à se développer, intéressent une bonne partie de la communauté scientifique et industrielle.

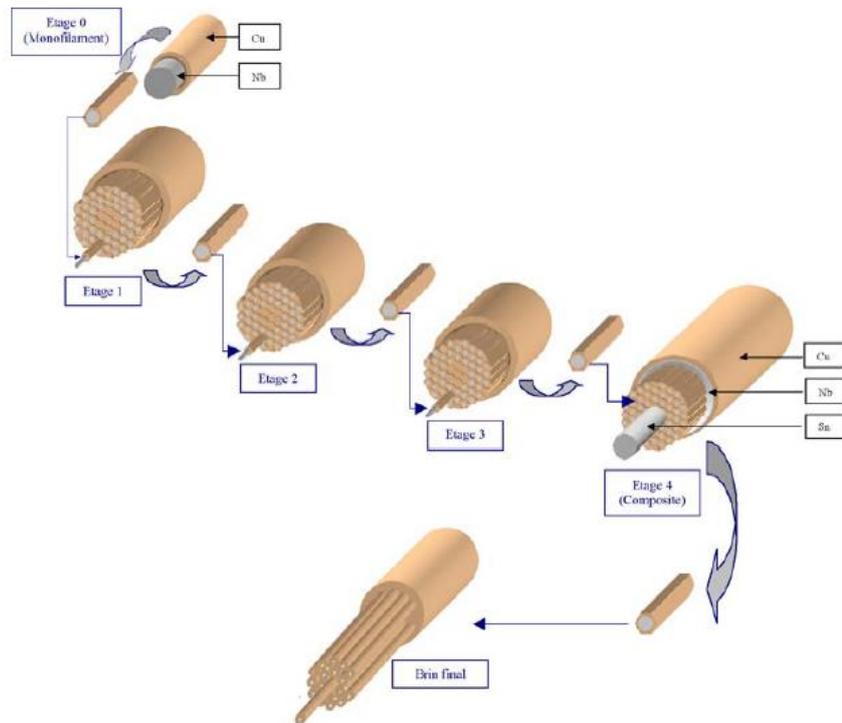
Seule l'**Accumulative Drawing and Bundling (ADB)** sera présentée à la section suivante ; pour plus de détails sur les différentes techniques de SPD, le lecteur pourra se référer au chapitre I de la thèse de V. Vidal où sont exposées les principales techniques de SPD [21] et aussi la référence [20] où R.Z. Valiev a passé en revue les principales techniques de SPD et les propriétés obtenues.

### **I.3.4.4- Extrusion et ré-empilements successifs (ou ADB : Accumulative Drawing and Bundling)**

Mise au point par F.P. Levi dans les années 1960 et développée pour la fabrication des câbles supraconducteurs Cu/Nb/Sn, l'Accumulative Drawing and Bundling (ADB) est une variante des techniques de déformation plastique intense qui offre, entre autres, la possibilité de fabriquer des matériaux composites. Elle permet, par confinement de la matière lors du passage de la billette dans une filière, d'atteindre de forts taux de déformation sans endommager la pièce. Cette technique consiste en une série d'étapes d'extrusion à chaud, d'étirage à froid, de découpe et de ré-empilement, formant un cycle pouvant se répéter  $n$  fois. La figure 1.7 schématise cette technique pour la fabrication en six étapes de fils supraconducteurs Cu/Nb/Sn par Alstom/MSA [22]. A la première étape (étage 0), des composite monofilamentaires Cu/Nb sont fabriqués, ces composites sont ensuite assemblés,

## Synthèse bibliographique

tréfilés et étirés pour obtenir un composite multifilamentaire (étape 1). Ce processus est réitéré jusqu'à l'étape cinq (étape 4) et à la fin de cette étape, on introduit de l'étain et l'ensemble est assemblé puis étiré jusqu'à l'obtention du fil composite final.



**Figure 1. 7 :** Schéma de production en « 6 étapes » de fils composites nanofilamentaires supraconducteurs Cu/Nb/Sn envisagé par Alstom/MSA [22].

### I.3.4.5- Limites de l'affinement des microstructures par les techniques de SPD.

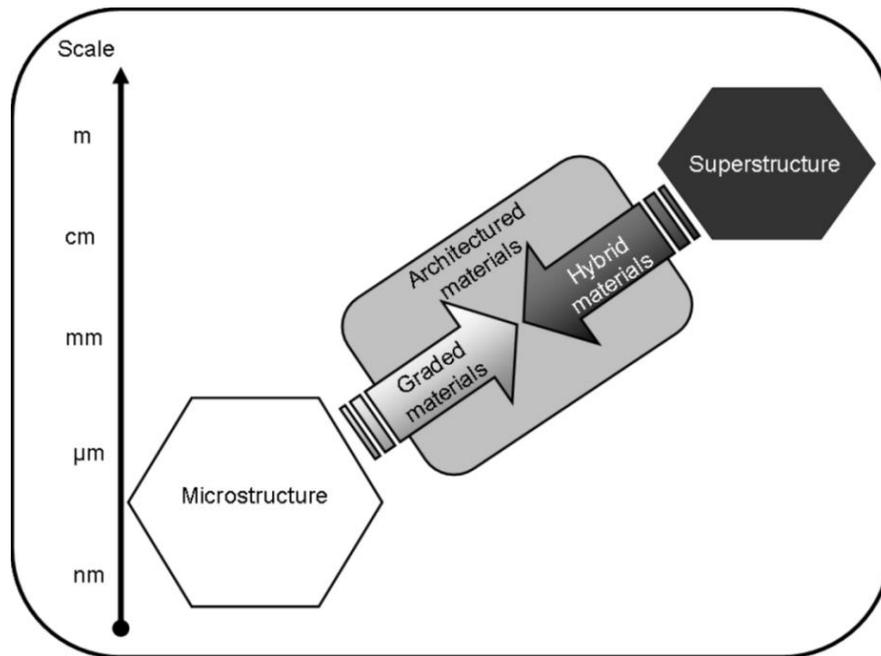
Plusieurs techniques de déformation plastique sévère ont pour finalité l'affinement de la microstructure des matériaux en vue d'augmenter leur performance mécanique et/ou physique. Cependant, l'augmentation de ces performances, en jouant notamment sur la microstructure, présente certaines limites. Par exemple, il a été montré expérimentalement que l'on ne peut pas diminuer indéfiniment la taille des grains. Certains auteurs ont rapporté que la saturation en tailles de grains était supérieure pour les matériaux monophasés par rapport aux biphasés [23, 24]. En effet, la référence [24] rapporte que, pour du cuivre monophasé déformé par High-Pressure Torsion (HPT), on peut atteindre des tailles de grains comprise entre 80nm et 300nm (selon la pureté du cuivre), alors que pour le système Cu-Fe, la taille moyenne des grains peut descendre jusqu'à une quinzaine de nanomètres. Il faut aussi noter que l'affinement de la microstructure des matériaux s'accompagne, en général, d'une chute de ductilité qui entraîne une diminution de leur formabilité (paramètre indispensable pour la mise en forme des matériaux).

De nombreuses stratégies ont ainsi été proposées afin d'optimiser les propriétés des matériaux face aux limites susmentionnées. Par exemple, L'ajout de nouvelles phases accompagné de l'affinement des microstructures de matériaux mono ou polyphasés, les traitements thermiques... ont permis d'augmenter leurs performances et/ou de les adapter à des besoins spécifiques et ainsi, un nombre non négligeable de nouveaux matériaux a vu le

jour. Cependant, la combinaison de plusieurs phases, avec des microstructures de dimensions différentes, conduit à des comportements en co-déformation très complexes et mal connus, dont la compréhension et le contrôle sont cruciaux pour l'utilisation fiable de la pièce finale. Le concepteur a donc besoin de degrés de liberté supplémentaires par rapport à ceux évoqués jusqu'à présent. Par exemple, le contrôle de la distribution spatiale des constituants offre un nouveau degré de liberté sur lequel on pourra jouer pour l'optimisation des propriétés du matériau final. En effet, lors de la conception d'un matériau hybride (ou à gradient) si, en plus du contrôle des paramètres microstructuraux (taille, forme, composition...) on contrôle la géométrie d'un ou des constituants en vue de l'optimisation des propriétés de la pièce finale, on parlera de « matériau architecturé ».

### I.3.5- Matériaux architecturés

Le concept de matériaux architecturés se manifeste par la présence de plusieurs échelles de dimensions dans la structure allant du domaine macroscopique au domaine microscopique et/ou nanoscopique ainsi que par une distribution spatiale contrôlée des phases constitutives de la pièce finale. Le terme « matériau sur mesure » est souvent utilisé pour parler de la famille des matériaux architecturés incluant : les stratifiés multicouches, les tissés ou enchevêtrés, les matériaux à gradient, les matériaux alvéolaires, les matériaux autobloquants... Cette famille de matériaux suscite un grand intérêt dans la communauté scientifique et industrielle et concerne potentiellement un grand nombre de secteurs applicatifs (énergie, santé, micro et nanotechnologies, transport, bâtiment...). Les matériaux architecturés apparaissent comme des matériaux possédant une échelle de longueur intermédiaire par rapport aux échelles de longueur qui interviennent dans la superstructure et la microstructure [8]. La figure 1.8 résume la définition des matériaux architecturés à partir des matériaux hybrides et à gradient. Partant de cette définition, nous allons voir que les composites Cu/Nb font partie de cette nouvelle classe de matériaux, ce qui a justifié de leur choix comme matériau modèle en vue d'étudier les effets d'architecture dans la réponse des matériaux multifonctionnels. C'est bien le thème du projet dans lequel évoluent les travaux rapportés ici, comme en témoigne l'acronyme anglais du projet ANR METAFORES qui se traduit littéralement par : « **Matériaux à architecture élémentaire sur mesure** pour réponse fonctionnelle optimisée : de l'expérience à la simulation. »



**Figure 1. 8 :** Schéma illustrant la définition des matériaux architecturés avec une échelle de longueur entre la microstructure et la superstructure [8].

### I.4- Etat de l'art sur Les composites métalliques à matrice de cuivre

Le cuivre est, avec l'or et l'argent, l'un des premiers métaux utilisés par l'homme ; son utilisation remonterait à environ 10 000 ans avant notre ère<sup>6</sup> [25]. De nos jours, l'extraction du cuivre s'effectue à partir de minerais oxydés et sulfurés ; ces derniers représentent plus de 80% de la production mondiale. Le métal obtenu à partir des minerais sulfurés est appelé « blister » et est encore impur (avec un titre compris entre 98 et 99,5%). Les procédés d'affinage (thermique et électrolytique) permettent d'obtenir un cuivre de haute pureté dont la teneur minimale en cuivre est de 99,9%. On distingue trois classes (définies par la norme NFA 53 100) suivant leurs teneurs résiduelles en oxygène ou en phosphore qui en déterminent leurs possibilités d'emploi et de mise en forme. C'est un métal de transition cristallisant dans un réseau cubique à faces centrées (CFC) ; il est malléable et ductile, reconnu surtout pour ses très bonnes conductivités thermique et électrique ; il est très utilisé dans l'industrie électrique (câbles), thermique (tuyaux) et électronique (interconnexion dans les circuits intégrés) et sert aussi à la fabrication d'ustensiles de cuisines. Il est connu comme le meilleur conducteur électrique (après l'argent) à température ambiante ; recuit, il est utilisé comme étalon de mesure de conductivité électrique. Cependant, en raison de ses faibles performances mécaniques, il ne peut pas être utilisé dans des applications à sollicitations mécaniques et/ou thermiques élevées. Pour augmenter ses propriétés mécaniques, notamment sa limite d'élasticité, il est souvent tréfilé, laminé ou extrudé. Et, comme mentionné précédemment, l'augmentation de sa limite d'élasticité fait face à une saturation qui dépend à la fois de la technique de fabrication, de la pureté du cuivre utilisé et de ses limites intrinsèques. Nguyen Q. Chinh et al. ont reporté des valeurs de saturation de la limite d'élasticité du cuivre hautement déformé à température ambiante par ECAP- route B<sub>c</sub> comprises entre 380 et

<sup>6</sup> C'est l'âge estimé d'un pendentif en cuivre trouvé dans la grotte de Shanidar, au Kurdistan

395MPa [26]. En effet, Frenkel [27] et Mackenzie [28] ont décrit les limites théoriques de la limite d'élasticité des matériaux et la façon dont ces limites peuvent être approchées. Selon eux, la limite d'élasticité théorique d'un matériau cristallin peut être définie comme étant la contrainte nécessaire pour cisailer un plan réticulaire par rapport à un autre dans un réseau parfait. Et la valeur de la limite d'élasticité théorique, dépendamment du modèle utilisé et des approximations, se situe entre  $\mu/2\pi$  (Frenkel) et  $\mu/30$  (Mackenzie) où  $\mu$  représente le module de cisaillement. Pour des matériaux filamenteux, J. T. Wood, rapporte qu'il est pratique de convertir les valeurs théoriques en limite d'élasticité ;  $\mu$  peut être alors approximée à  $3E/8$  ( $E$  étant le module d'Young du matériau). Pour le cuivre par exemple ( $\mu = 47\text{GPa}$  et  $E = 120\text{GPa}$ ), la limite d'élasticité théorique ( $\sigma \approx 3E/65$ ) serait alors proche de  $2\text{GPa}$ . Dans son manuscrit de thèse, J. T. Wood explique que la faible limite d'élasticité du cuivre est due à la présence et à la multiplication des dislocations. Par conséquent, pour créer des matériaux à forte limite d'élasticité, il faudra nécessairement développer des microstructures ne contenant ni dislocations ni sources de dislocations ou des microstructures avec de nombreux obstacles aux mouvements des dislocations [4].

### I.4.1- Composites à matrice métallique

Usuellement, un composite à matrice métallique est un matériau dans lequel une phase métallique continue (la matrice) est combinée à une autre phase (renfort) afin de renforcer le métal et d'augmenter la stabilité à haute température. Plus d'uns considèrent le lancement du satellite soviétique Spoutnik 1 comme l'évènement majeur dans l'histoire du développement des composites à matrices métalliques. En effet, pour la construction d'un vaisseau spatial, la nécessité d'utiliser des matériaux plus légers que les métaux monophasés et plus résistants que les composites à matrice polymères à, en grande partie, ouvert la voie au développement des composites métalliques. S'il est difficile de situer la première utilisation d'un composite à matrice métallique, la première publication sur le terme a sans doute été celle de W.E. Sturke publiée en 1958 sous le titre « The Mechanical Behavior of Aluminum-Boron Composite Material ». Le coût élevé de la fibre de bore a cependant empêché l'industrialisation de ce composite prometteur [29]. En revanche, cette publication a ouvert la voie à l'exploration d'autres systèmes, notamment les composites à matrices de cuivre (voir introduction générale). Il a été montré que, dans le cas des composites métalliques, la limite d'élasticité était supérieure pour les systèmes CFC/CC comparés aux systèmes CFC/CFC [29]. W. A. SPITZIG et al. ont expliqué la supériorité de la limite d'élasticité des systèmes CFC/CC par la formation de la texture de fibre {110} développée dans les renforts de structure CC avec la déformation à froid ; les renforts vont alors adopter, dans leur section transversale, une forme de ruban et vont agir comme des barrières planes vis-à-vis de l'écoulement plastique des deux phases. Tandis que les renforts de structure CFC subissent une déformation axisymétrique et leurs formes, dans la section transverse, ne changent pas de façon significative [30]. Un autre aspect très important pour obtenir une meilleure combinaison limite d'élasticité/résistance électrique concerne les facteurs de diffusion de la matrice (généralement bon conducteur électrique) et du renfort (utilisé principalement pour ses propriétés mécaniques). Il faut aussi noter que, dans le cas des composites CFC/CC, les deux phases doivent avoir des modules de cisaillement très proches afin de garantir de bonnes propriétés de co-déformation [21]. Le système cuivre/niobium, dont le diagramme de phase est donné à la figure 1.9, présente une

## Synthèse bibliographique

miscibilité quasi nulle à basse température et des modules de cisaillement similaires : il semble être bien adapté à la co-déformation.

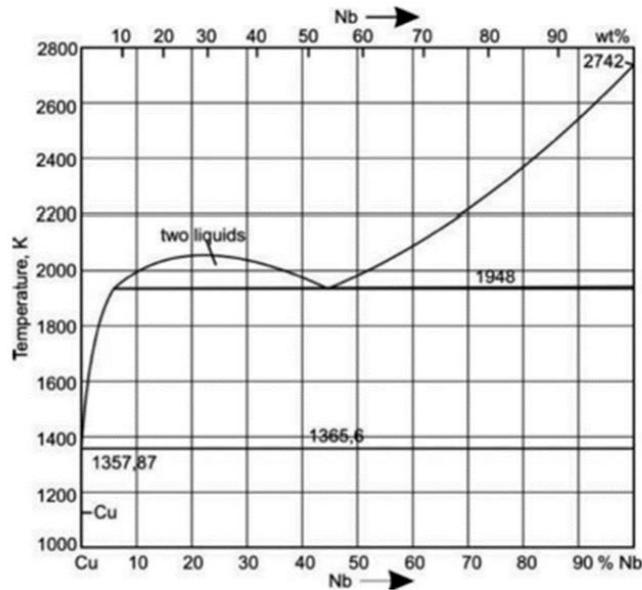


Figure 1.9 : Diagramme d'équilibre du système cuivre/niobium [31].

### I.4.2- Composites cuivre/niobium

Initialement développés pour la fabrication de fils supraconducteurs (Cu-Nb<sub>3</sub>Sn) [32, 33], les composites métalliques cuivre/niobium (Cu/Nb) sont aujourd'hui de potentiels candidats pour la fabrication de transformateurs électriques et de bobines à forts champs magnétiques pulsés intenses et de longue durée [5, 17, 34]. Ces conducteurs composites sont essentiellement fabriqués par :

- La méthode dite « in-situ », basée sur la fusion des deux matériaux, où les renforts de niobium sont intégrés dans la matrice de cuivre sous forme de dendrites pour ensuite adopter la forme de filaments au cours des étapes de déformations à froid (voir figure 1.10).

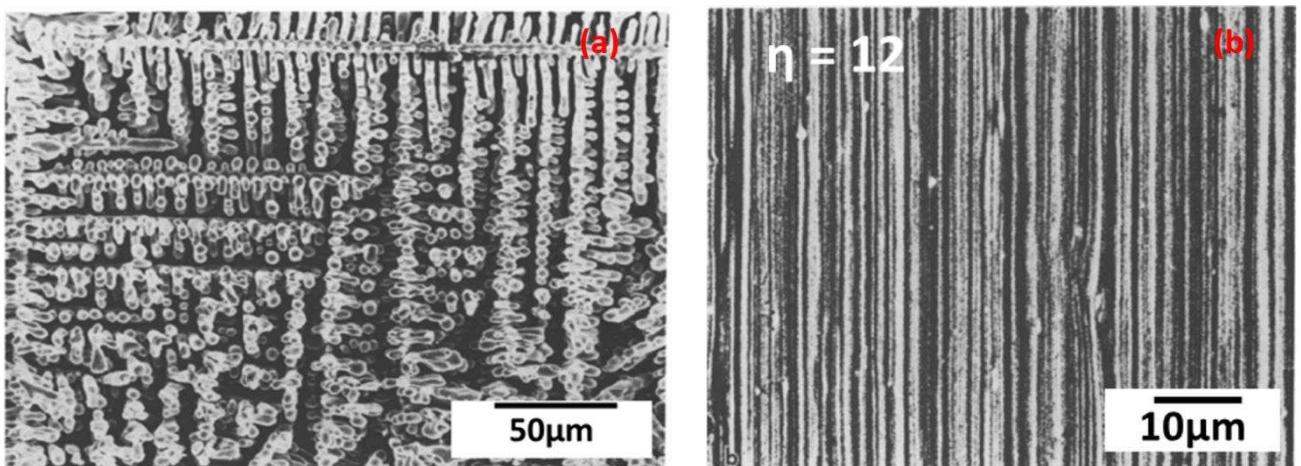


Figure 1.10 : Composite in-situ cuivre/niobium fabriqué par fusion à l'arc : (a) les dendrites de niobium, la matrice de cuivre étant enlevée (b) le composite après étirage à froid pour un taux de déformation  $\eta = 12$  [32].

## Synthèse bibliographique

- b) La méthode dite « continue » où matrice et renforts sont synthétisés séparément pour ensuite obtenir le composite par co-déformation. Dans ce dernier cas, deux techniques de déformation plastique sévère sont le plus souvent utilisées : l'Accumulative Roll Bonding (ARB) [35] et l'Accumulative Drawing and Bundling (ADB) [36].

### I.4.2.1- Conducteurs Cu/Nb fabriqués par ARB

L'ARB est une variante des techniques de déformation plastique sévère utilisée pour la fabrication de matériaux (monophasés ou polyphasés) à microstructure fine. Cette technique a été utilisée pour la mise en œuvre de conducteurs composites multicouches Cu/Nb à Carnegie Mellon University [35]. La figure 1.11a présente un résumé de la technique et la figure 1.11b montre une micrographie MEB d'un composite contenant 128 couches et obtenu après 73% de réduction de l'épaisseur initiale. On part initialement de tôles de cuivre pur et de niobium pur ; après les avoir nettoyé (dégraissage, brossage...) les deux tôles sont assemblées et l'ensemble subit une première passe de laminage. Cette première étape est très importante dans le procédé, car il a été montré que, pour une bonne adhésion des deux phases, il faut une réduction d'épaisseur d'au moins 60% en une seule passe [37]. Après cette étape, la tôle est découpée puis les pièces sont ré-empilées avant de subir un nouveau cycle et le processus peut se répéter plusieurs fois jusqu'à l'obtention de la pièce finale désirée [38]

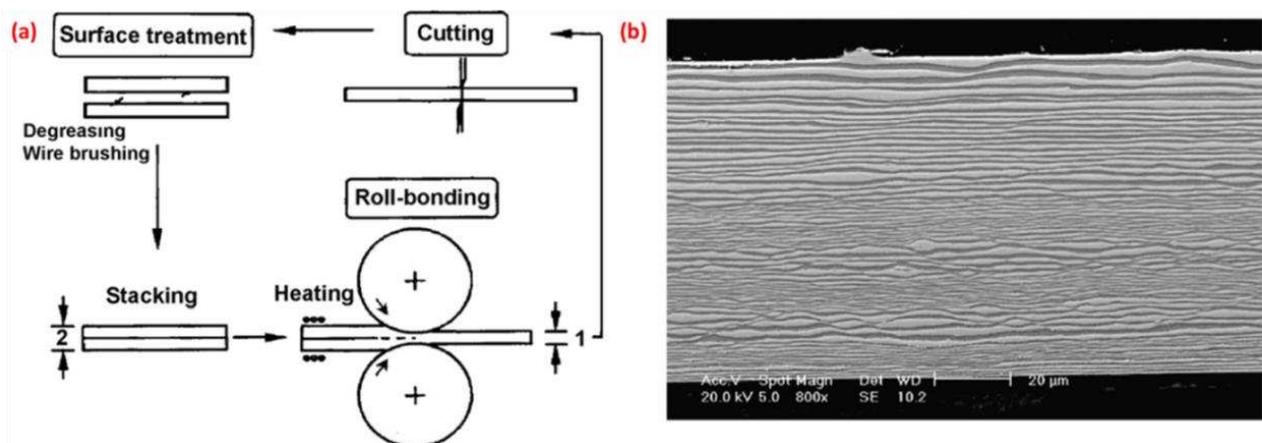


Figure 1. 11 : (a) Diagramme schématisé de la technique ARB et (b) micrographie MEB d'un composite Cu/Nb contenant 128 couches obtenu après 73% de réduction d'épaisseur [35].

### I.4.2.2- Microstructure des composites Cu/Nb fabriqués par ARB

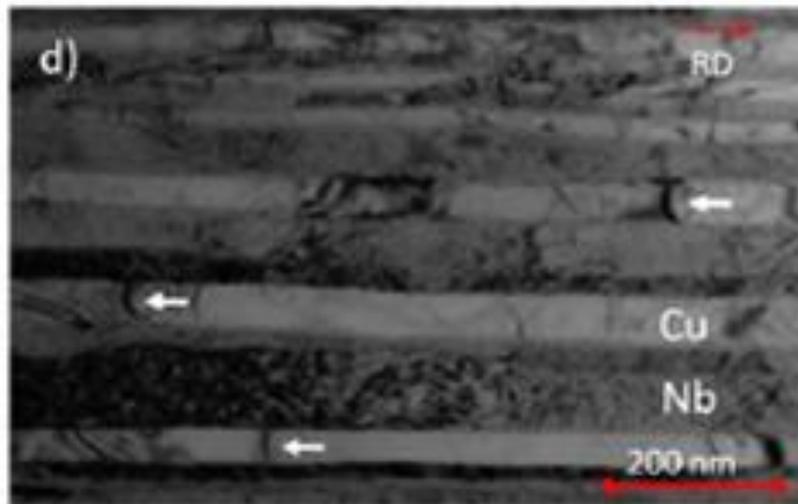
Dans cette section, nous ferons un résumé des principaux mécanismes de déformation et de recristallisation des composites multicouches Cu/Nb fabriqués par ARB. Pour plus de détails sur les mécanismes liés à la déformation et aux traitements thermiques des métaux, le lecteur pourra consulter les références : [39, 40, 41].

Comme dans tous les procédés de fabrication par traitement thermomécanique, la déformation et la recristallisation, entre autres, jouent un rôle primordial dans les modifications microstructurales des matériaux fabriqués par ARB. En particulier le processus de recristallisation peut être fortement influencé par la déformation du fait que l'évolution de la microstructure et de la texture durant la recristallisation est fonction des paramètres de déformation. Les observations par MEB et MET ont mis en évidence trois principaux

## Synthèse bibliographique

mécanismes de déformation dans les nanocomposites Cu/Nb fabriqués par ARB [42] : plasticité confinée (confined layer slip, CLS), maclage et cisaillement localisé (shear banding).

- La plasticité confinée (CLS) est un mécanisme qui prévaut dans les multicouches métalliques lorsque l'espacement entre les interfaces adjacentes diminue, forçant les dislocations individuelles à se courber dans leur couche d'origine. Ce mécanisme a été observé dans tous les composite multicouches Cu/Nb fabriqués par ARB lorsque l'épaisseur est inférieure ou égale à 48nm. Des dislocations courbées (indiquées par les flèches de couleur blanche) peuvent être observées sur la figure 1.12 présentant une image MET en champ clair d'un composite Cu/Nb avec des couches d'épaisseur 48nm.



**Figure 1. 12 :** Image MET en champ clair mettant en évidence des dislocations courbées, signature du CLS dans un composite Cu/Nb fabriqué par ARB / épaisseur d'une couche : 48nm [42].

- Le mécanisme de déformation par maclage a été observé dans les couches de cuivre lorsque l'épaisseur des couches devient inférieure ou égale à 18nm. Tous les macles observées faisaient le même angle ( $\approx 19,5^\circ$ ) avec les plans d'interface.
- Le dernier mécanisme (shear banding) a été observé via des images MEB sur des couches d'épaisseur 18nm et devient prédominant pour des couches d'épaisseur inférieure à 18nm.

### I.4.2.3- Texture cristallographique dans les composites Cu/Nb fabriqués par ARB

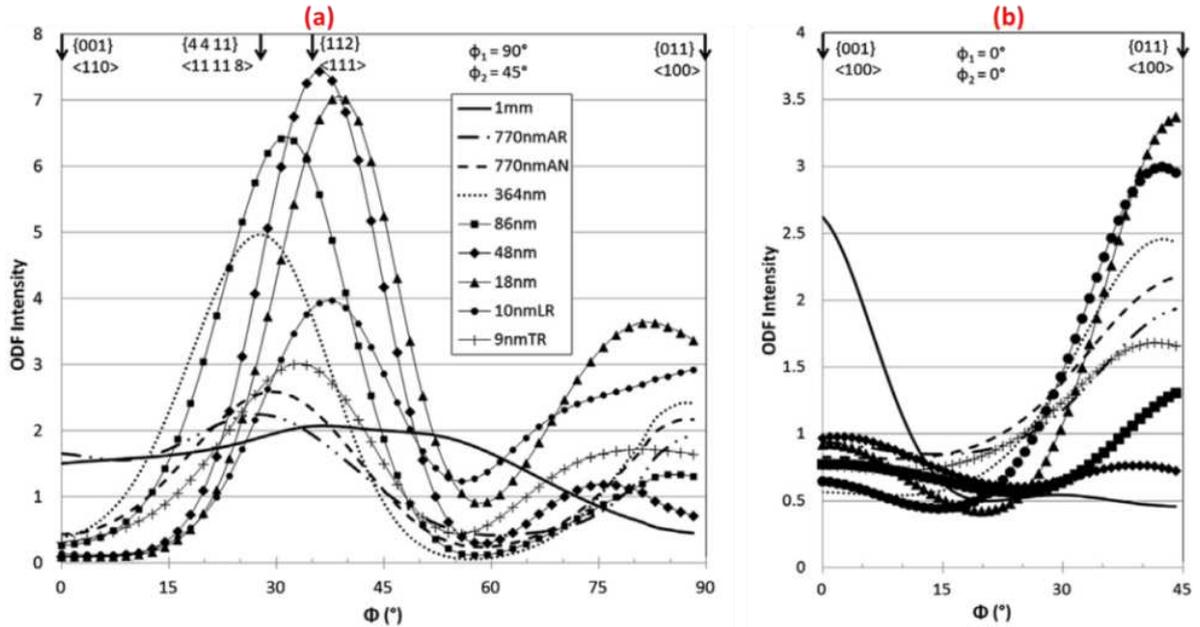
La texture cristallographique est un paramètre très important en science des matériaux, car elle conditionne les propriétés physiques des matériaux. L'évolution de la texture au cours de la déformation et des traitements thermiques a fait l'objet de nombreuses études dans la littérature. Cette évolution est fortement influencée par la technique de fabrication utilisée pour la mise en œuvre du matériau. Nous nous concentrons, ici, uniquement sur l'évolution de la texture des conducteurs Cu/Nb avec les cycles de ARB.

#### ❖ Cas de la matrice de cuivre

Initialement, la matrice de cuivre présente des composantes de texture de type fibre, de faibles intensités : la fibre  $\tau$  et la fibre Goss-cubique. La fibre  $\tau$  comprend des composantes de type cuivre  $\{112\} \langle 111 \rangle$ , la composante de Taylor  $\{44\bar{1}1\} \langle \bar{1}1 \bar{1}1 \rangle$  et la composante Goss  $\{011\} \langle 100 \rangle$  ; la composante cubique est souvent reliée à la recristallisation [42]. La

## Synthèse bibliographique

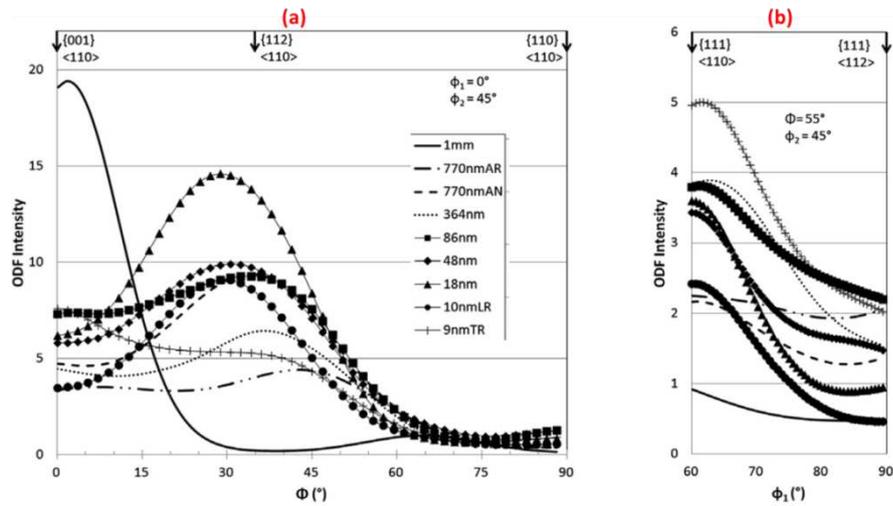
figure 1.13 présente l'évolution de la texture avec le taux de réduction (ou taux de déformation) des couches de cuivre. On peut remarquer un changement progressif du pic le plus intense  $\{44\bar{1}1\} \langle \bar{1}\bar{1}\bar{1}1 \rangle$  vers la composante cuivre  $\{112\} \langle 111 \rangle$  entre des couches d'épaisseurs 770nm et 48nm. Parallèlement, le maximum m.r.d. (multiples of random density, unité arbitraire de texture cristallographique) de la composante Goss passe de 2,4 pour des couches d'épaisseur 364nm à un minimum m.r.d. de 0,7 pour des couches d'épaisseur 48nm [42].



**Figure 1.13** : Courbes représentant l'évolution des textures de fibre de la matrice de cuivre pour des taux de déformation compris entre 0 et 11,62 : (a) fibre  $\tau$  et (b) fibre cubique-Goss. AR: as-rolled, AN: annealed, LR: longitudinal rolled, TR: transverse rolled [42].

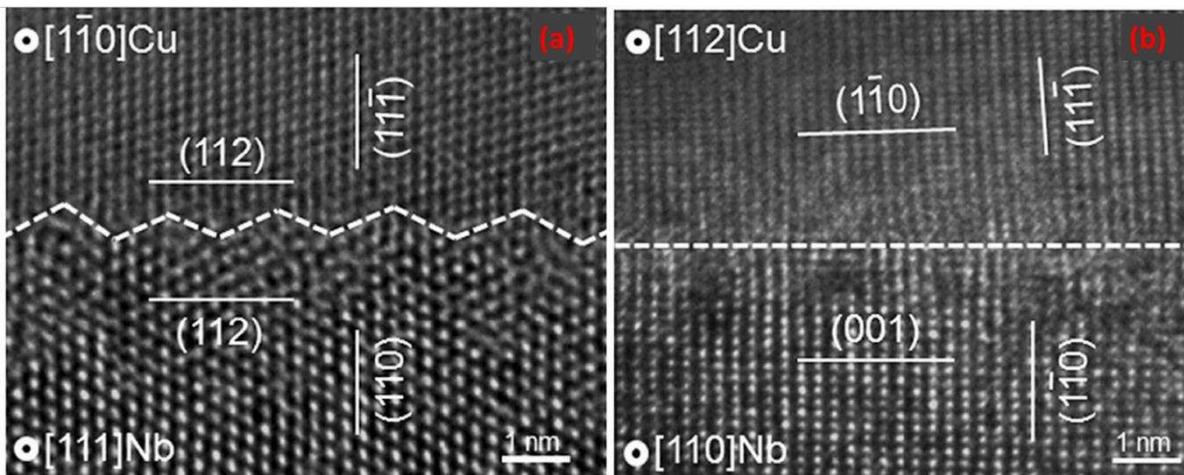
### ❖ Cas des renforts de niobium

Les renforts de niobium présentent initialement une texture assez marquée de types  $\alpha$ -fibre ( $\{001\} \langle 110 \rangle$ ,  $\{112\} \langle 110 \rangle$ ,  $\{110\} \langle 110 \rangle$ ) et  $\gamma$ -fibre ( $\{111\} \langle 110 \rangle$ ,  $\{111\} \langle 112 \rangle$ ). La figure 1.14 présente l'évolution de la texture avec le taux de réduction (ou taux de déformation) des renforts de niobium.



**Figure 1. 14 :** Courbes représentant l'évolution des textures de fibre des renforts de Nb pour des taux de déformation compris entre 0 et 11,62 : (a) fibre  $\alpha$  et (b) fibre  $\gamma$ . AR : as-rolled, AN : annealed, LR : longitudinal rolled, TR : transverse rolled [42].

Des études sur l'évolution de la texture avec le taux de réduction de ces composites ont mis en évidence une transition de la distribution classique de la texture vers une distribution non familière lorsque l'épaisseur des couches approche les 700nm (correspondant à un taux de déformation d'environ 8) [38]. Ces études ont montré, à fort taux de déformation, la présence d'interfaces énergétiquement favorables de type  $\{112\} \langle 110 \rangle_{\text{Cu}} // \{112\} \langle 111 \rangle_{\text{Nb}}$ ,  $\{110\} \langle 112 \rangle_{\text{Cu}} // \{001\} \langle 110 \rangle_{\text{Nb}}$  avec une prédominance des premières pour des couches d'épaisseurs comprises entre 200nm et 600nm [43]. La figure 1.15 présente des images MET haute résolution illustrant certains des interfaces mis en place au cours de la déformation par ARB dans les conducteurs Cu/Nb. La construction de ces interfaces a été interprétée par S.C.V. Lim et A.D. Rollett [35] par la notion de « recristallisation confinée ». Ils expliquent, en effet, que lorsque la distance entre les couches de cuivre et de niobium devient très petite, la force motrice de recristallisation diminue et donc la nucléation et/ou la croissance de nouveaux grains deviennent de plus en plus difficile. Ceci se traduit par la conservation d'une proportion de la composante de texture de déformation lors des traitements thermiques (et réciproquement).



## Synthèse bibliographique

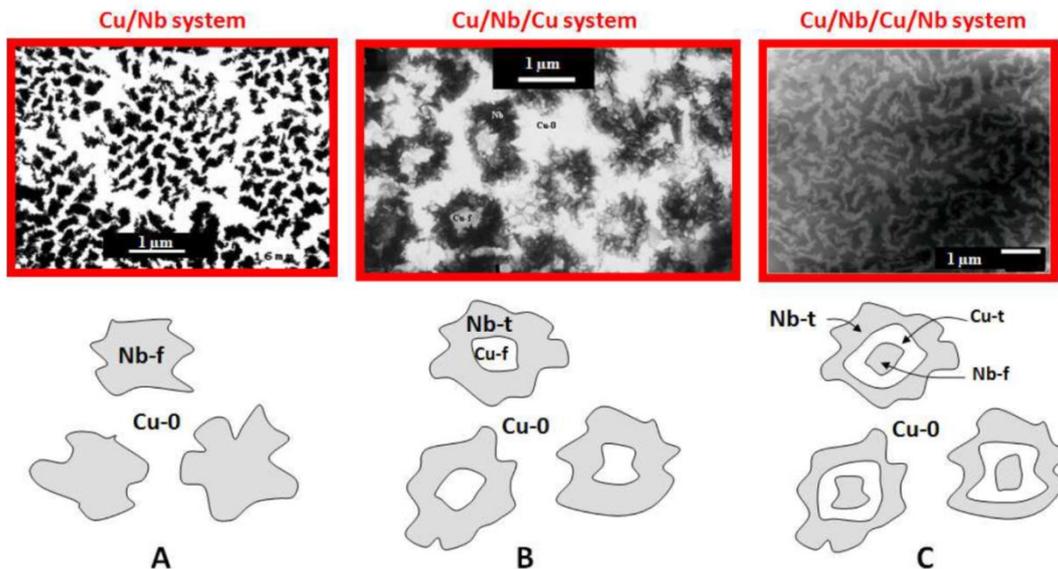
**Figure 1. 15 :** micrographies MET haute résolution mettant en évidence des interfaces privilégiés dans les Cu/Nb multicouches après déformation extrême : (a)  $\{110\} \langle 111 \rangle \text{Cu} // \{111\} \langle 110 \rangle \text{Nb}$  and (b)  $\{112\} \langle 111 \rangle \text{Cu} // \{110\} \langle 110 \rangle \text{Nb}$  [43].

### I.4.2.3- Présentation des cuivre/niobium fabriqués par ADB

Dans cette partie, nous allons principalement nous intéresser aux fils dits continus, la littérature concernant les fils dits in-situ étant vaste ; par ailleurs, la microstructure des fils in-situ diffère fortement de celle des continus étudiés dans cette thèse.

Peu de laboratoires se sont attachés à la fabrication et à la caractérisation des fils « continus » : en plus du LNCMI à Toulouse, seul le NHMFL-Tallahassee (USA) a fabriqué des fils « continus » par la méthode ADB. Nous pouvons ainsi citer les travaux récents de Badinier et al. [44], qui se sont intéressés aux propriétés mécaniques de ces fils Cu/Nb « américains » : à l'aide du model de Masing, prenant en compte le gradient des propriétés élasto-plastiques des différentes phases (canaux de Cu et renforts de Nb), le comportement macroscopique en traction a été reproduit, ainsi que l'effet Bauschinger important présenté par ces fils.

Dans le cadre de l'élaboration des fils composites cuivre/niobium fabriqués au LNCMI, il existe différents types de géométrie selon le design de la billette initiale (cf. figure 1.17a) : les filamenteuses (Cu/Nb), les co-cylindriques (Cu/Nb/Cu), les co-axiaux (Cu/Nb/Cu/Nb). Ces ont été obtenus après extrusion à chaud (700°C) suivis d'étirage à froid. La meilleure synergie limite d'élasticité/conductivité électrique ayant été obtenue au LNCMI pour le système filamenteuse [12]. Les microstructures correspondant à ces trois systèmes sont représentées à la figure 1.16.



**Figure 1. 16 :** Microstructures relatives aux trois systèmes de composites architecturés cuivre/niobium [45].

Les études présentées dans ce mémoire ont été réalisées sur les conducteurs micro-et (nano)-composites filamenteuses (Cu/Nb-F). La technique de fabrication de ces conducteurs et

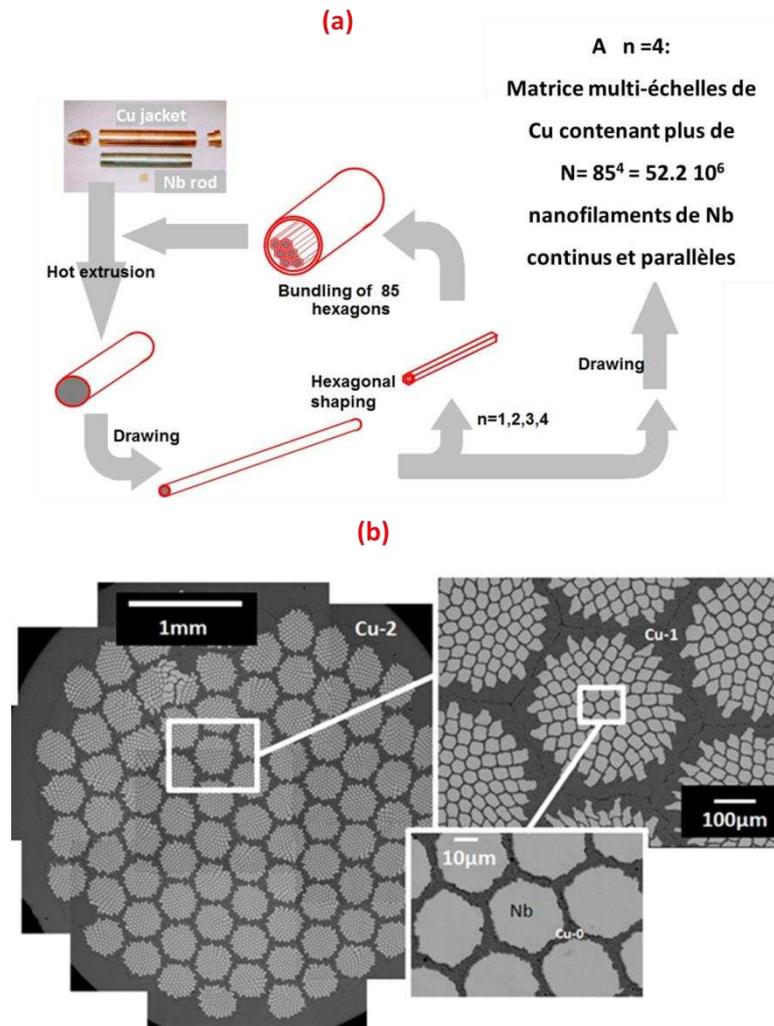
## Synthèse bibliographique

---

la microstructure d'un échantillon obtenu après deux cycles ADB suivi d'étirage à froid sont présentées à la figure 1.17. Initialement, un barreau de niobium est introduit dans une billette de cuivre, l'ensemble est extrudé à chaud (700°C) puis étiré à froid jusqu'à l'obtention d'un fil de forme hexagonale que l'on découpe en 85 segments qui vont être, à leur tour, réintroduits dans une nouvelle billette de cuivre avant de subir un nouveau cycle. Après  $n$  cycles ( $n = 1, 2, \dots$ ), on obtient un conducteur contenant  $85^n$  filaments continus et parallèles de niobium dans une matrice multi-échelles de cuivre. Pour  $n = 4$  par exemple, le conducteur est renforcé par plus de 52 millions de filaments continus de niobium dans une matrice contenant 5 canaux différents<sup>7</sup> de cuivre. Par la suite, les conducteurs Cu/Nb seront nommés en fonction de leur nombre de filaments ;  $N = 85^n$  sera donc un conducteur obtenu à l'étage  $n$  (nombre de cycles ADB) contenant  $85^n$  filaments continus de niobium et  $n+1$  canaux différents de cuivre. Par exemple,  $N = 85^2$  correspondra à un conducteur obtenu après deux cycles ADB et ses différents canaux de cuivre seront notés Cu-0/85<sup>2</sup>, Cu-1/85<sup>2</sup>, Cu-2/85<sup>2</sup> correspondant à la billette de cuivre initiale, à celle introduite à la fin du premier cycle et du deuxième cycle respectivement. Sur les images MEB à différents grossissements de la figure 1.17b, on peut distinguer les canaux Cu-0 entourant les filaments individuels de Nb, les canaux Cu-1 délimitant les paquets de 85 filaments de Nb et les canaux de Cu-0, les canaux Cu-2 correspondant au cuivre extérieur qui englobe les 85 paquets de 85 filaments de Nb et les Cu-0 entourés par les canaux de Cu-1. De la même façon, après trois cycles ADB, on aura un conducteur contenant  $85^3$  filaments de Nb et quatre échelles de cuivre (Cu-0/85<sup>3</sup>, Cu-1/85<sup>3</sup>, Cu-2/85<sup>3</sup> et Cu-3/85<sup>3</sup>).

---

<sup>7</sup> Les canaux de cuivre sont différents en termes de microstructure et donc de propriétés physiques et mécaniques.



**Figure 1. 17 :** (a) Résumé du Procédé de fabrication ADB et (b) micrographie MEB –FEG en mode BSE d’une coupe transverse d’un conducteur Cu/Nb-F de diamètre 4,5mm obtenu après deux cycles ADB (il contient  $85^2$  filaments continus de Nb et 3 échelles de Cu).

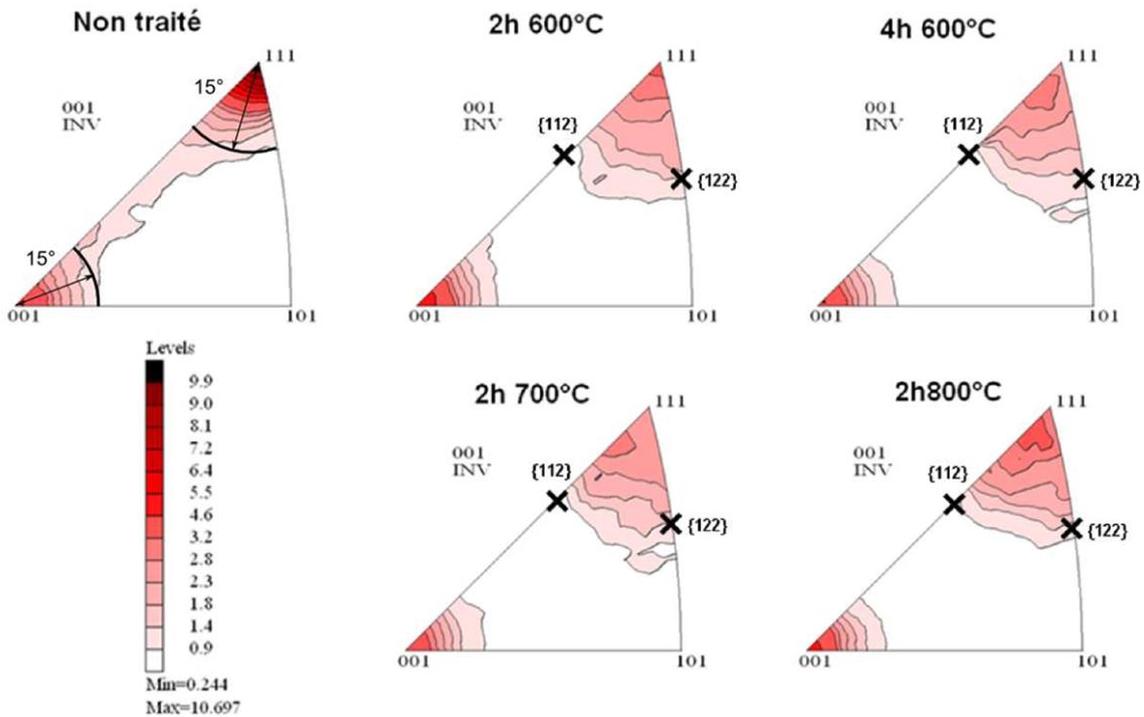
#### I.4.2.4- Microstructure des composites cuivre/niobium fabriqués par SPD

Le procédé de fabrication des composites Cu/Nb entraîne des modifications microstructurales en termes de forme, de taille et d’orientation des grains. Dans cette section, nous allons présenter un court résumé sur les microstructures des deux phases.

#### I.4.2.5.- Texture cristallographique dans les composites Cu/Nb

##### ❖ Cas de la matrice de cuivre

Les études par diffraction des rayons X sur des échantillons prélevés à différentes étapes de la fabrication ont révélé la formation d’une forte texture de fibre de type  $\langle 111 \rangle$  au cours de la déformation [40]. Tandis que les étapes d’extrusion à chaud vont favoriser la formation d’une texture de fibre de type  $\langle 100 \rangle$  [21]. Les études sur l’évolution de la texture du cuivre avec les traitements thermiques menées par J.-B. Dubois [39] ont confirmé que la composante  $\langle 100 \rangle$  est bien une composante de recristallisation, comme on peut l’observer à la figure 1.18.



**Figure 1. 18** : Evolution des composantes de texture  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$  du cuivre avec les traitements thermiques dans les conducteurs composites cuivre/niobium [39].

### ❖ Cas des renforts de niobium

Initialement, la microstructure du niobium est composée de grains équiaxes et deux composantes majoritaires de texture :  $\langle 110 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$ . De la même façon que le cuivre (de structure cfc), le niobium, de structure cc, développe une texture de déformation de type  $\langle 110 \rangle$  [40].

### 1.4.2.6- Taille et morphologie des grains

#### ❖ Cas du cuivre

Initialement, la matrice de cuivre est dans un état recuit et composée de grains équiaxes de taille moyenne d'environ 20 micromètres. Après les étapes de déformation imposées par le procédé de fabrication, les grains deviennent cylindriques et très allongés suivant l'axe d'étirage [40, 46]. Le cliché de MET en champ clair met en évidence, à la figure 1.19, des grains de diamètre voisin de 200 nm et de longueur supérieure à  $2\mu\text{m}$  pour les canaux de Cu-0 [46]. Ces canaux de cuivre, de taille nanométrique, sont constitués d'un seul grain dans leur épaisseur contenant très peu (ou pas) de dislocations. Ils sont le résultat de très fort taux de déformation ( $\eta > 20$ ) et des traitements thermiques [40]. Le schéma de la figure 1.20, tiré de [40], illustre l'évolution de la structure granulaire des canaux Cu-0 au cours de la déformation.

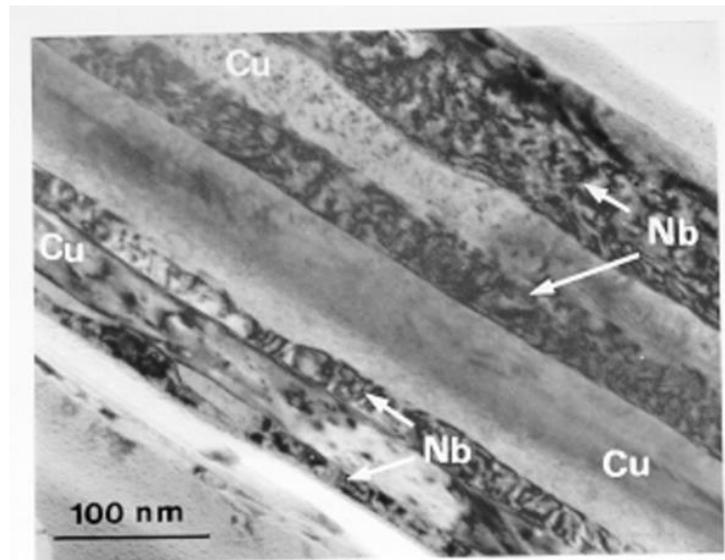


Figure 1. 19 : Cliché MET pris en champ clair sur une coupe longitudinale d'un conducteur Cu/Nb-F [46].

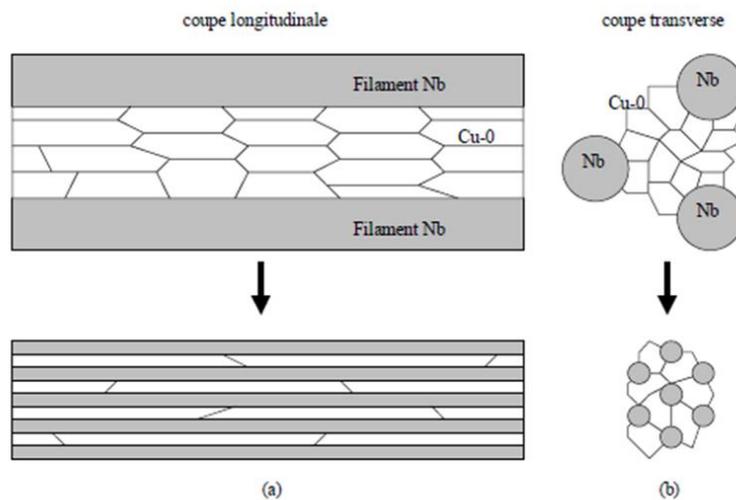


Figure 1. 20 : Evolution de la structure granulaire de la matrice de cuivre au cours de la déformation. (a) : dans la direction longitudinale ; (b) : dans la direction transverse [40].

La figure 1.21 présente une micrographie MET d'une zone composée de canaux de cuivre de type Cu-2 ou Cu-3. Ces canaux de cuivre contiennent plusieurs grains de taille sub-micrométriques dans leur épaisseur. Les zones de contraste sombre sur l'image mettent en évidence une densité de dislocations élevée à l'intérieur de ces grains ( $\beta = 6.6 \cdot 10^{15} \text{ m}^{-2}$ )<sup>8</sup> [40].

<sup>8</sup> Ce calcul a été effectué par L.Thilly [ref] par mesure indirecte en mesurant la variation de la résistivité résiduelle à très basse température (10K) après recuit de recristallisation.



Figure 1. 21 : vue transverse d'une zone de cuivre large, dans un canal Cu-2 ou Cu-3 [40].

### ❖ Cas du niobium

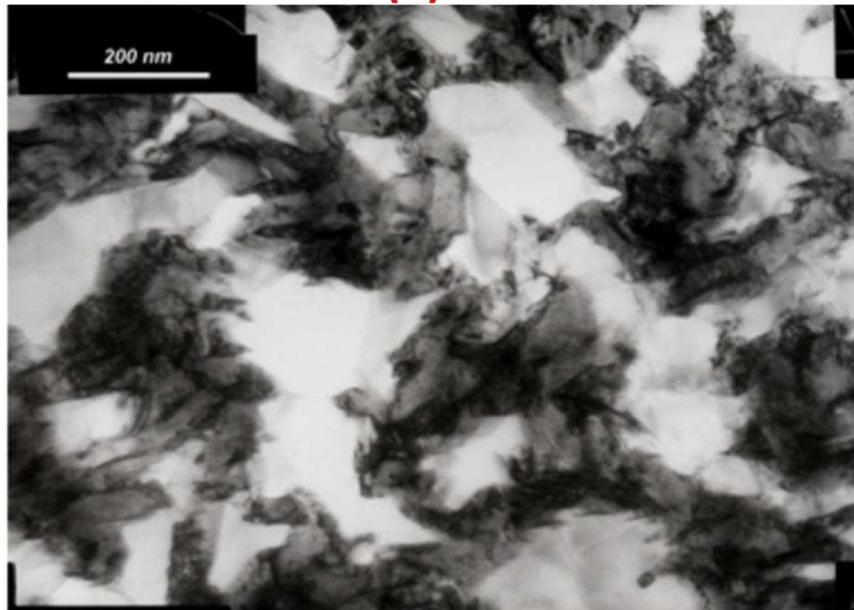
La microstructure du niobium à l'état initial est constituée de grains équiaxes de taille moyenne  $30\mu\text{m}$ . Au fur et à mesure des étapes de déformation, les renforts de niobium perdent leur forme cylindrique initiale pour une forme ellipsoïdale avec des excroissances ou « bras » en périphérie [40]. Cette modification de morphologie observée pour les filaments de niobium est typique des matériaux de structure CC fortement déformés par étirage. Ce phénomène, appelé « curling » a été observé par V. Vidal pour les renforts de niobium et de tantale dans les composites Cu/Nb et Cu/Ta [21]. La figure 1.22 présente des clichés MET où l'on peut observer le phénomène de curling des renforts de Nb et Ta. Comme on peut le remarquer, ce phénomène est beaucoup plus prononcé pour les renforts de Ta et V. Vidal l'a expliqué par la grande différence des modules de cisaillement du

## Synthèse bibliographique

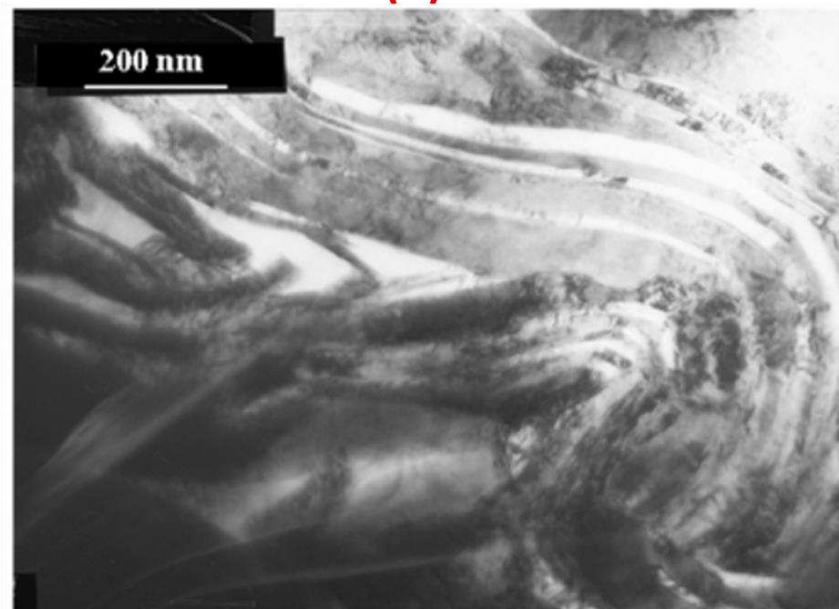
---

cuivre et du tantale ( $\mu_{Ta} \gg \mu_{Cu}$ ) : les renforts de Ta imposent donc leur mode de déformation à la matrice de Cu plus ductile [21].

(a)



(b)



**Figure 1. 22** : Image MET en champ clair mettant en évidence le phénomène de curling des structures CC déformées par étirage : (a) renforts de Nb d'un composite Cu/Nb/Cu –  $d=0,506\text{mm}$  de l'étage  $N = 85^3$  et (b) des renforts de Ta d'un composite Cu/Ta –  $d=1,93\text{mm}$  de l'étage  $N = 85^3$  [21].

### I.5- Bilan

**A travers cette synthèse bibliographique, nous avons passé en revue :**

1. Les possibilités d'augmenter certaines propriétés des matériaux en jouant, notamment, sur leur microstructure par des procédés de fabrication bien adaptés. Un autre degré de liberté peut être aussi obtenu via l'architecture des matériaux.
2. Dans le cas particulier des nanocomposites cuivre/niobium architecturés fabriqués par déformation plastique sévère (ARB et ADB), la complexité microstructurale et les propriétés qui en découlent peuvent être résumées comme suit :
  - ❖ Des études menées par A.D. Rollett, Irene J. Beyerlein, J.S. Carpenter et al. sur les Cu/Nb multicouches fabriqués par ARB ont mis en évidence une dépendance de type Hall-Petch en fonction de l'épaisseur des couches et la mise en place d'interfaces spécifiques Cu/Nb stables pour les fortes déformations. La construction de ces interfaces semble associée au phénomène de recristallisation confinée observé lorsque les épaisseurs des couches deviennent submicrométriques ou nanométriques..
  - ❖ Les études menées par F. Dupouy-Lecouturier, L. Thilly, V.Vidal, J.- B. Dubois et al. sur les Cu/Nb fabriqués par ADB ont mis en évidence :
    - La nature multiéchelle de la matrice de cuivre présentant une double texture de fibre  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$  avec des grains très allongés dans la direction d'étirage :
    - Pour les très fortes déformations ( $\eta > 20$ ), les canaux fins de cuivre tendent vers une structure monocristalline contenant, dans leur épaisseur, un seul grain dépourvu de dislocations, similaire à des nanowhiskers.
    - Les filaments de niobium présentent une composante unique texture de fibre  $\langle 110 \rangle$  et des grains nanométriques très allongés suivant l'axe du fil. Pour les très fortes déformations, ces grains se courbent (phénomène de curling) pour accommoder la déformation et la structure polycristalline initiale des filaments évoluent vers une structure monocristalline. Et, comme pour les canaux fins de cuivre, leur structure est semblable à celle des nanowhiskers.
    - Notons que des interfaces spécifiques semi-cohérentes ont aussi été observées dans les Cu/Nb-F fabriqués par ADB.
  - ❖ Toutes ces études ont mentionné une très bonne combinaison de limite d'élasticité/conductivité électriques des conducteurs nanocomposites Cu/Nb.

### Références

- [1] «International Union of Crystallography: Report of the Executive Committee for 1991,» *Acta Cryst.*, vol. A48, pp. 922-946, 1992.
- [2] A. P. ZHILYAEV, V. YU. GERTSMAN, O. V. MISHIN, A. I. PSHENICHNYUK, I. V. ALEKSANDROV, R. Z. VALIEV, «Grain Boundary Misorientation Spectra (GBMS) determined by real ODF in F.C.C. materials susceptible to annealing twinning,» *Acta metall. mater.* , vol. 41, n° 19, pp. 2657-2665, 1993.
- [3] Jean-Marie BERTHELOT, *Matériaux Composites: Comportement mécanique et analyse des structures*, Paris: MASSON S.A., 1996.
- [4] J. T. Wood, «High- Strength, High -Conductivity two- phases materials,» McMaster University, Hamilton, Ontario, 1994.
- [5] W. A SPITZIG, A. R. PELTON and F. C. LAABS, «Characterization of the Strength and Microstructure of Heavily Cold Worked Cu-Nb Composites,» *Acta metall.*, vol. 35, n° 110, pp. 2427-2442, 1987.
- [6] P.F. Gobin et C. Chevrot, «Vers des matériaux intelligents : matériaux multifonctionnels,» *Matériaux & Techniques* , vol. 97, p. 17–18, 2009.
- [7] M. F. ASHBY, «Hybrids to fill holes in material property space,» *Philosophical Magazine*, vol. 85, p. 3235–3257, 2005.
- [8] O. Bouaziz, Y. Bréchet et J.D. Embury, «Heterogeneous and architected materials: A possible strategy for design of structural materials,» *Advanced Engineering Materials*, vol. 10, 2008.
- [9] Jihane Jabbour, «Synthèse et caractérisation d'un matériau hybride organique - inorganique: Application à la réalisation de circuits photoniques,» Université de Montpellier II Sciences et Techniques du Languedoc, Montpellier, 2007.
- [10] Cécilie DUHAMEL, Rapport de thèse, «Cuivre nanostructuré et nanopoudres de cuivre dopé avec de l'argent pour l'étude du comportement thermo-mécanique,» Université Paris XII, Paris, 2005.
- [11] S. Berbenni , V. Favier, M. Berveiller, «Impact of the grain size distribution on the yield stress of heterogeneous materials,» *International Journal of Plasticity* , vol. 23, p. 114–142, 2007.
- [12] Amit Misra and Ludovic Thilly, «Structural metals at extremes,» *MRS Bulletin*, vol. 35, 2010.
- [13] Marc FIVEL, Samuel FOREST, «Plasticité cristalline et transition d'échelle : cas du polycristal,» *Techniques de l'Ingénieur*, vol. M4 017, pp. 1 - 11, 10 Juin 2004.
- [14] A.A. Nazarov et al., «Analysis of substructure evolution during simple shear of polycrystals by means of a combined viscoplastic self-consistent and disclination modeling approach,» *Acta*

## Synthèse bibliographique

---

- Materialia* , vol. 54 , p. 985–995, 2006.
- [15] L. Thilly, F. Lecouturier, J. von Stebut, «Size-induced enhanced mechanical properties of nanocomposite copper/niobium wires: nanoindentation study,» *Acta Materialia* , vol. 50, p. 5049–5065, 2002.
- [16] G. Saada, «Hall–Petch revisited,» *Materials Science and Engineering A* , vol. 400–401, p. 146–149, 2005.
- [17] Nikos V. Galanis, Ioannis N. Remediakis, Georgios Kopidakis, «Structure and mechanical properties of ultra-nanocrystalline diamond and nanocrystalline Cu from atomistic simulations,» *Mechanics of Materials*, vol. 67, p. 79–85, 2013.
- [18] Siu Sin Quek, Zheng Hoe Chooi, Zhaoxuan Wu , Yong Wei Zhang, David J. Srolovitz, «The inverse Hall–Petch relation in nanocrystalline metals: A discrete dislocation dynamics analysis,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 88, p. 252–266, 2016.
- [19] Eric N. Hahn, Marc A. Meyers, «Grain-size dependent mechanical behavior of nanocrystalline metals,» *Materials Science & Engineering A*, vol. 646, p. 101–134, 2015.
- [20] R.Z. Valiev et al, «Bulk nanostructured materials from severe plastic deformation,» *Progress in Materials Science* , vol. 45, pp. 103-189, 2000.
- [21] Vanessa VIDAL, Rapport de thèse, «Optimisation des propriétés mécaniques des conducteurs nanofilamentaires Cu/X- X=Nb ou Ta,» Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, Toulouse, 2006.
- [22] M. Durante, P. Bredy et al., «Development of a Nb3Sn multifilamentary wire for accelerator magnet,» *Physica C*, vol. 354, pp. 449-453, 2001.
- [23] A. Bachmaier, E. Neubauer, M.Kitzmantel, R. Pippan, C. Motz, «Microstructural evolution in immiscible alloys processed by HPT,» chez *6th International Conference on Nanomaterials by Severe Plastic Deformation - NanoSPD6*, Metz. France, 2014.
- [24] L. Kräme, S. Wurster, R. Pippan, «Deformation behavior of Cu-composites processed by HPT,» chez *6th International Conference on Nanomaterials by Severe Plastic Deformation-NanoSPD6*, Metz, France, 2014.
- [25] Daniel DAVID, Matériaux- Analogues, archéologiques et corrosion, Paris: BIO Intelligence Service, 2003, p. 15.
- [26] Nguyen Q. Chinh, Tamas Csanadi, Jenő Gubicza, Terence G. Langdon, «Plastic behavior of face-centered-cubic metals over a wide range of strain,» *Acta Materialia* , vol. 58 , p. 5015–5021, 2010.
- [27] J.Frenkel, « Z. Physik,» vol. 37:572 , 1926.

## Synthèse bibliographique

---

- [28] J. K. MacKenzie, Bristol, U.K., 1949.
- [29] Salim DERMARKAR, «Matériaux composites à matrice métallique,» *Techniques de l'Ingénieur*, 1990.
- [30] W. A. SPITZIG, A. R. PELTON, F. C. LAABS, «Characterization of the strength and Microstructure of Heavily Cold Worked Cu-Nb Composites,» *Acta Metall.*, vol. 35, pp. 2427-2442, 1987.
- [31] W.J. GŁUCHOWSKI, Z.M. RDZAWSKI, J.P. STOBRAWA, K.J. MARSZOWSKI, «Microstructure and Properties of Cu-Nb Wire Composites,» *ARCHIVES OF METALLURGY AND MATERIALS*, vol. 59, pp. 35-40, 2014.
- [32] A.R. PELTON, F.C. LAABS, W.A. SPITZIG and C.C. CHENG, «Microstructural Ananysis of in-situ Cu-Nb Composites Wires,» *Ultramicroscopy*, vol. 22, pp. 251-266, 1987.
- [33] K. T. Hartwig, D. O. Bryant, S. N. Mathaudhu, R. E. Barber, and J. T. Im, «Grain Refinement of Niobium by Severe Plastic Deformation,» *AIP Conference Proceedings*, vol. 711, n° %1441-449, 2004.
- [34] E. Botcharova, J. Freudenberger, A. Gaganov, K. Khlopkov, L. Schultz, «Novel Cu–Nb-wires: Processing and characterisation,» *Materials Science and Engineering A*, vol. 416 , p. 261–268, 2006.
- [35] S.C.V. Lim and A.D. Rollett , «Length Scale Effects on Recrystallization and Texture Evolution in Cu layers of a Roll-Bonded Cu-Nb Composite,» *Mater Sci Eng A*, vol. 520, pp. 189-196, 2009.
- [36] F. Dupouy, S. Askénazy, J.P. Peyrade, D. Legat, «Composite conductors for high pulsed magnetic fields,» *Physica B*, vol. 211, pp. 43-45, 1995.
- [37] B.L. Hansen, J.S. Carpenter, C.A. Bronkhorst, S.D. Sintay, J.R. Mayeur et al., «Modeling the texture evolution of Cu/Nb layered composites during rolling,» *International Journal of Plasticity* , vol. 49 , p. 71–84, 2013.
- [38] Irene J. Beyerlein, Jason R. Mayeur, Shijian Zheng, Nathan A. Mara, Jian Wang and Amit Misra, «Emergence of stable interfaces under extreme plastic deformation,» *PNAS*, vol. 111, p. 4386–4390, 2014.
- [39] Jean-Baptiste DUBOIS, Rapport de thèse, «Conducteurs nanocomposites métalliques élaborés par déformation plastique sévère : formation et stabilité thermo-mécanique des nanostructures, propriétés induites,» Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées de l'université de Poitiers, Poitiers, 2010.
- [40] Ludovic Thilly, Rapport de thèse, «Exploration théorique et expérimentale de fils « nanocomposites continus » présentant des propriétés extrêmes de conductivité électrique et de limite élastique. Application future : coilin 100 T,» Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, Toulouse, 2000.

## Synthèse bibliographique

---

- [41] Chao Voon S. Lim, Rapport de thèse, «Length Scale Effect on the Microstructural Evolution of Cu layers in a Roll-bonded CuNb Composite,» Carnegie Mellon University, 2008.
- [42] J.S. Carpenter, S.C. Vogel, J.E. LeDonne, D.L. Hammon, I.J. Beyerlein, N.A. Mara, «Bulk texture evolution of Cu–Nb nanolamellar composites during accumulative roll bonding,» *Acta Materialia*, vol. 60, p. 1576–1586, 2012.
- [43] Nathan A. Mara, Irene J. Beyerlein, «Review: effect of bimetal interface structure on the mechanical behavior of Cu–Nb fcc–bcc nanolayered composites,» *Journal of Materials Science*, vol. 49, p. 6497–6516, 2014.
- [44] G. Badinier, C.W.Sinclair, S.Allain, O.Bouaziz, «The Bauschinger effect in drawn and Cu–Nb wires,» *Materials Science & Engineering A*, vol. 597, p. 10–19, 2014.
- [45] L. Thilly, *ANR-METAFORES, Document scientifique*, Poitiers, 2012.
- [46] Florence Dupouy, Rapport de thèse, «Contribution au développement des Champs Magétiques Pulsés très Intenses: R & D des Conducteurs Renforcés,» INSA-Toulouse, Toulouse, 1995.

**CHAPITRE II : CARACTERISATION DES  
PROPRIETES PHYSIQUES DES  
CONDUCTEURS COMPOSITES**

# Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

---

## Table des matières

<b>Chapitre II : caractérisation des propriétés physiques des conducteurs Composites cuivre/niobium filamenteux (Cu/Nb-F) .....</b>	<b>40</b>
<b>II.0- Caractéristiques dimensionnelles des échantillons.....</b>	<b>40</b>
<b>II.1- Introduction.....</b>	<b>41</b>
<b>II.2- Caractérisation mécanique .....</b>	<b>42</b>
II.2.1- Essai de traction uni-axiale, généralités .....	42
II.2.1.1- Notions de contrainte et de déformation.....	43
II.2.1.2- Diagramme conventionnel de traction .....	44
<b>II.3 - Déformation plastique des matériaux métalliques.....</b>	<b>46</b>
II.3.1- Evolution microstructurale au cours de la déformation plastique .....	48
II.3.2- Durcissement mécanique des conducteurs Cu/Nb-F.....	49
<b>II.4- Machine de Traction uni-axiale .....</b>	<b>51</b>
<b>II.5- Dispositif expérimental .....</b>	<b>52</b>
<b>II.6- Résultats pour l'étage n = 85<sup>2</sup>.....</b>	<b>54</b>
<b>II.7- Résultats pour l'étage n = 85<sup>3</sup>.....</b>	<b>55</b>
<b>II.8- Résultats des calculs de durcissement mécanique.....</b>	<b>57</b>
<b>II.9- Caractérisation électrique des conducteurs Cu/Nb-F .....</b>	<b>59</b>
II.9.1- Conductivité électrique : généralités .....	59
II.9.1.1- influence des défauts cristallins sur la conductivité électrique .....	61
II.9.2- Dispositif expérimental .....	62
II.9.3- Mesure de conductivité longitudinale .....	64
II.9.4 - Mesure de conductivité transverse .....	64
II.9.4.1- Principe de la mesure .....	65
II.11- Résultats des mesures transverses.....	70
<b>I.5- Bilan .....</b>	<b>74</b>
<b>Références .....</b>	<b>75</b>

### Chapitre II : caractérisation des propriétés physiques des conducteurs Composites cuivre/niobium filamentaires (Cu/Nb-F)

#### II.0- Caractéristiques dimensionnelles des échantillons

Avant de commencer avec ce chapitre consacré à la caractérisation de propriétés physiques macroscopiques des conducteurs composites Cu/Nb-F, nous allons présenter les caractéristiques dimensionnelles des échantillons étudiés durant ces travaux de thèse. Les conducteurs micro- et (nano)-composites architecturés Cu/Nb filamentaires de ce mémoire concernent principalement deux étages :  $n = 85^2$  et  $n = 85^3$ . Nous rappelons que les échantillons de l'étage  $n = 85^2$  ont été prélevés après deux cycles ADB et étirage à froid (n'ayant pas d'échantillons bruts d'extrusion à disposition), ils contiennent  $85^2$  filaments de niobium et trois canaux différents de cuivre (Cu-0/85<sup>2</sup>, Cu-1/85<sup>2</sup> et Cu-3/85<sup>2</sup>). Tandis que les échantillons l'étage  $n = 85^3$  ont été obtenus après trois cycles ADB et étirage à froid : ils contiennent  $85^3$  filaments de niobium pour quatre canaux différents de cuivre (Cu-0/85<sup>2</sup>, Cu-1/85<sup>2</sup>, Cu-3/85<sup>2</sup> et Cu-3/85<sup>2</sup>). Les dimensions théoriques, les taux d'écroissance ainsi que les taux de déformation vraie sont répertoriés dans les tableaux II.1 et II.2. Nous ferons, tout au long de ce mémoire, référence à ces tableaux pour rendre compte des évolutions des propriétés locales et/ou globales de ces conducteurs en fonction de l'affinement de la microstructure. Les taux d'écroissance et de déformation cumulée avec les différentes étapes d'étirage à froid sont définis ci-dessous.

Le taux d'écroissance RA est obtenu par la relation :

$$RA = \frac{S_i - S_f}{S_i}$$

où  $S_i$  et  $S_f$  représentent respectivement les sections du conducteur lors du dernier traitement thermique de recristallisation (extrusion à 700°C) et finale du conducteur considéré.

Le taux de déformation de déformation vraie  $\eta$  est donné par la relation :

$$\eta = \ln \frac{S_0}{S_f}$$

$S_0$  et  $S_f$  sont respectivement les sections du conducteur en début d'élaboration et à l'étape d'élaboration considérée.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

$d_{\text{éch.}}(\text{mm})$	$d_{\text{Nb}}(\mu\text{m})$	$d_{\text{Cu-0}}(\mu\text{m})$	$d_{\text{Cu-1}}(\mu\text{m})$	$d_{\text{Cu-2}}(\mu\text{m})$	RA (%)	$\eta$
4,51	30	4,78	48	272	97,86	14,3
2,064	14	2,2	21,96	124,48	98,77	16
1,511	10	1,61	16,07	91,12	98,80	16,5
1,023	6,86	1,09	10,87	61,69	99,5	17
0,809	5,42	0,86	8,59	48,78	99,83	17,7
0,592	3,97	0,63	6,28	35,69	99,85	18,3
0,547	3,67	0,58	5,8	32,97	99,87	18,5
0,506	3,39	0,54	5,36	30,49	99,92	18,6
0,401	2,69	0,43	4,24	24,16	99,95	19
0,293	1,96	0,31	3,09	17,65	99,98	19,7
0,251	1,68	0,26	2,64	15,12	99,99	20
<b>Fraction volumique (%)</b>	<b>44,64</b>	<b>15,21</b>	<b>17,51</b>	<b>22,64</b>		

**Tableau II. 1 :** Dimensions théoriques et fractions volumiques des phases des échantillons de l'étage  $n = 85^2$ . Ces échantillons ont été obtenus par étirage à froid après l'étape d'extrusion à 700°C.

$d_{\text{éch.}}(\text{mm})$	$d_{\text{Nb}}(\mu\text{m})$	$d_{\text{Cu-0}}(\mu\text{m})$	$d_{\text{Cu-1}}(\mu\text{m})$	$d_{\text{Cu-2}}(\mu\text{m})$	$d_{\text{Cu-3}}(\mu\text{m})$	RA (%)	$\eta$
4,51	2,67	0,42	4,22	48	272	97,86	19,13
2,064	1,22	0,20	1,93	22	124	97,98	20,69
1,634	0,96	0,15	1,53	17	98,4	98,73	21,16
1,511	0,89	0,14	1,41	16	91	98,92	21,32
1,293	0,76	0,12	1,21	13,7	78	99,21	21,63
1,023	0,60	0,096	0,96	11	61,6	99,50	22,10
0,946	0,56	0,088	0,88	10	57	99,57	22,25
0,875	0,51	0,081	0,82	9,30	53	99,64	22,41
0,809	0,48	0,076	0,76	8,59	48,7	99,69	22,57
0,748	0,44	0,07	0,70	7,94	45	99,73	22,72
0,692	0,41	0,065	0,65	7,34	41,7	99,77	22,88
0,64	0,38	0,06	0,60	6,79	38,5	99,81	23
0,592	0,35	0,055	0,55	6,28	35,7	99,83	23,19
0,547	0,32	0,051	0,51	5,81	33	99,86	23,35
<b>Fraction volumique (%)</b>	<b>34,53</b>	<b>11,17</b>	<b>13,55</b>	<b>17,51</b>	<b>22,64</b>		

**Tableau II. 2 :** Dimensions théoriques et fractions volumiques des phases des échantillons de l'étage  $n = 85^3$ . Ces échantillons ont été obtenus par étirage à froid après l'étape d'extrusion à 700°C.

### II.1- Introduction

Un matériau, quel qu'il soit, est doté d'une structure faisant référence à la manière dont s'agencent ses éléments constitutifs et cette structure s'étend de l'échelle subatomique (noyau - électrons) à l'échelle macroscopique (éléments de structure visibles à l'œil nu) en passant par les échelles atomique (atomes et/ou molécules) et microscopique (groupements d'atomes). Le matériau, en fonction de l'application visée, est caractérisé à l'échelle macroscopique par ce que l'on appelle ses *propriétés d'usage* qui représentent une sorte de « carte d'identité » de celui-ci. Lors de la mise au point d'un nouveau matériau, il est donc indispensable de déterminer ses propriétés d'usage qui feront l'objet de garantie de ce dernier. Ces propriétés font souvent l'objet de normes et sont obtenues en utilisant des techniques de caractérisation bien appropriées. Les micro- et nano-composites étudiés dans ce manuscrit

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

---

font partie de la classe des nouveaux matériaux et, à ce titre, doivent être caractérisés en vue de la détermination de leurs propriétés d'usage. Nous rappelons que l'objectif principal de ces composites Cu/Nb consiste en leur utilisation dans la fabrication de bobines non destructives générant des champs magnétiques pulsés intenses ( $B \approx 100T$ ). Ils doivent donc combiner d'excellentes propriétés mécaniques (limite d'élasticité élevée) et électriques (conductivité électrique élevée). Ce chapitre, divisé en deux grandes parties, est donc consacré à la caractérisation macroscopique des conducteurs Cu/Nb-F :

- 1) Caractérisation mécanique via des tests de traction uni-axiale à température ambiante (293K) et à la température de l'azote liquide (77K)
- 2) Caractérisation électrique via des mesures de conductivité électrique longitudinale à température ambiante (293K) et à la température de l'azote liquide (77K)

En outre, des mesures de conductivité transverse à température ambiante ont été réalisées afin d'alimenter en données expérimentales une modélisation (mise en œuvre dans la thèse de Tang GU) dans le cadre du projet ANR METAFORES.

### II.2- Caractérisation mécanique

L'étude du comportement mécanique d'un matériau a pour objectif de connaître sa réponse à des sollicitations mécaniques (ou thermomécaniques) données. Ces essais et leurs analyses permettent d'évaluer les aspects de qualité et de sécurité des produits tout au long de leur cycle de vie. Il existe de nombreux types d'essais mécaniques : traction – compression – torsion – fatigue – fluage... et ces essais peuvent être réalisés sous des conditions environnementales très variées. L'essai mécanique approprié est donc choisi en fonction de l'utilisation du produit final.

#### II.2.1- Essai de traction uni-axiale, généralités

Parmi les différents tests mécaniques, l'essai de traction est considéré comme le plus simple et le plus courant. Il consiste à monter (à l'aide d'un système de mors bien choisi) le matériau à étudier sur une machine de traction. Le matériau est alors soumis à un couple de forces colinéaires, de même valeur et de sens opposé. Les effets de cisaillement et de torsion étant négligés, dans le plan perpendiculaire à l'axe de traction, on suppose que la surface  $S$  est soumise uniformément à une série de forces  $dF$  (cf figure 2.1) telle que :

$$\mathbf{F} = \sum d\mathbf{F} \quad (1)$$

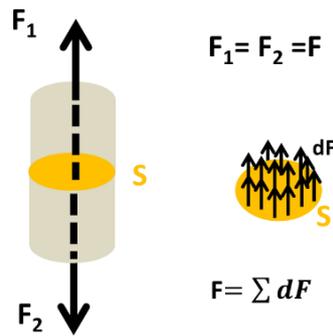


Figure 2. 1 : Force normale d'un essai de traction uni-axiale sur éprouvette cylindrique.

Sous l'influence de l'effort  $F$ , l'échantillon se déforme graduellement, en général, jusqu'à la rupture et l'on enregistre simultanément l'effort et l'allongement ; pour un essai de traction uni-axiale, l'allongement est donné par :

$$\Delta L = L - L_0 \quad (2)$$

Avec  $L$  et  $L_0$  les longueurs finale et initiale de l'éprouvette.

### II.2.1.1- Notions de contrainte et de déformation

Pour la caractérisation mécanique des matériaux, on utilise le plus souvent le couple  $(\sigma, \epsilon \text{ ou } \dot{\epsilon})$  qui représente la contrainte et la déformation ou la vitesse de déformation respectivement.

❖ **Contrainte** : elle détermine l'intensité des efforts de cohésion qui existe entre les atomes d'un matériau lorsque celui-ci est soumis à des forces extérieures. Elle peut être de traction, de compression ou de cisaillement. Pour un essai de traction uni-axiale, elle se définit macroscopiquement comme étant la force agissant sur l'unité de surface du matériau. Dans le système international, la contrainte s'exprime en pascal ( $\text{Pa} = \text{N/m}^2$ ). Afin d'établir la relation de la contrainte normale, on va considérer l'élément de surface  $dS$  au point  $M$  de normale  $\vec{n}$ , soumis à la force  $\vec{dF}$  de la figure 2.3 telle que :

$$\vec{dF} = \vec{P} \cdot dS$$

Le vecteur  $\vec{P}$  dépendant du point  $M$  et de l'orientation de  $n$  est appelée le vecteur contrainte qui agit sur la surface élémentaire  $dS$  au point  $M$  d'orientation  $n$  et il est défini par :

$$\vec{P}(\mathbf{M}, \vec{n}) = \lim_{dS \rightarrow 0} \frac{\vec{dF}}{dS} \quad (3)$$

La projection de  $\vec{P}$  sur la normale  $\vec{n}$  s'appelle la contrainte normale et est notée  $\sigma$  (sigma) et sa projection sur le plan tangent à  $dS$  est appelée contrainte de cisaillement ou la contrainte tangentielle  $\vec{\tau}$ ; elles sont définies par :

$$\sigma = \vec{P} \cdot \vec{n} \quad \text{et} \quad \vec{\tau} = \vec{P} - \sigma \vec{n} \quad (4)$$

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

- Lorsque  $\sigma > 0$ , on parlera de contrainte de traction ou de tension.
- Lorsque  $\sigma < 0$ , on parlera de contrainte de compression.

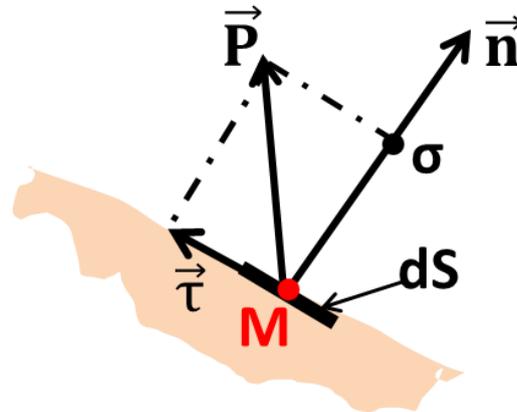


Figure 2. 2: Définitions des contraintes normale et de cisaillement.

❖ **Déformation** : elle indique dans quelles proportions les liaisons inter atomiques (à l'échelle microscopique) et la structure elle-même (à l'échelle macroscopique) ont été déformées. Pour un essai de traction (ou de compression) uni-axiale, elle est le rapport de la variation de longueur de l'éprouvette en fin d'essai à la longueur initiale. Cette définition est issue du formalisme de Green-Lagrange en mécanique des milieux continus. La valeur de déformation dépend fortement de la longueur initiale de l'éprouvette. Cette définition a été utilisée pour les calculs de la déformation des résultats présentés dans ce chapitre.

$$\varepsilon = \frac{1}{2} \left( \frac{L^2 - L_0^2}{L_0^2} \right) \approx \frac{\Delta L}{L_0} \quad (5)$$

Cependant, de façon rigoureuse, la déformation est définie par le logarithme de la dilatation  $\lambda$  provoquée par la contrainte appliquée du fait qu'elle doit être nulle pour une dilatation unitaire. En considérant un allongement infiniment petit  $dl$ , la déformation totale de l'éprouvette est donnée par :

$$\varepsilon_{rat.} = \int_{l_0}^l \frac{dl}{l} = \ln\left(\frac{L}{L_0}\right) \quad (6)$$

Contrairement à la définition de la relation 5, telle que définie en 6 (déformation rationnelle), la déformation est additive et peut être utilisée pour les calculs en plasticité.

En admettant que le volume de la partie utile de l'éprouvette reste constant ( $S \times l = S_0 \times l_0$ ) au cours de l'essai, la contrainte rationnelle est donnée par :

$$\sigma_{rat.} = \frac{F}{S} = \frac{F}{S_0} \left( \frac{L}{L_0} \right) = \frac{F}{S_0} \left( \frac{L_0 + \Delta L}{L_0} \right) = \frac{F}{S_0} \left( 1 + \frac{\Delta L}{L_0} \right)$$

soit, 
$$\sigma_{rat.} = \sigma(1 + \varepsilon) \quad (7)$$

### II.2.1.2- Diagramme conventionnel de traction

Le diagramme conventionnel de traction représente l'évolution de la contrainte appliquée en fonction de la déformation. Ce diagramme permet une interprétation qualitative

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

et quantitative du comportement mécanique du matériau. En effet, sur le diagramme de la figure 2.3a on distingue aisément les régimes élastique et plastique :

- ❖ La zone représentée par le segment OA fait référence à la partie correspondant à la déformation réversible (déformation élastique).
- ❖ Le tronçon AB fait référence à une zone de déformation non réversible (ou déformation plastique homogène) qui s'opère avec une réduction régulière de la section tout au long de la longueur utile de l'éprouvette.
- ❖ Dans la partie BC, la déformation plastique se localise dans une petite partie de l'éprouvette et n'est plus homogène. C'est le phénomène de striction, précurseur de la rupture ; la déformation augmente et la charge diminue.

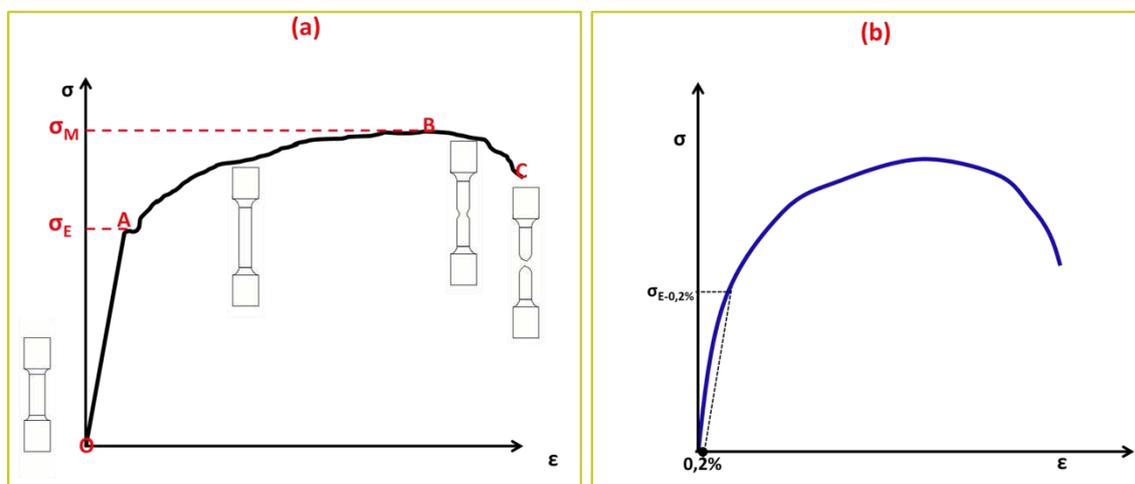


Figure 2. 3: Schéma de diagrammes contrainte-déformation pour essais de traction (ou de compression).

Quantitativement, ce diagramme permet la déduction des propriétés classiques du matériau :

- ❖ **Limite d'élasticité ( $\sigma_E$ )** : elle correspond à la valeur de la contrainte à partir de laquelle le matériau commence à se déformer plastiquement. Si cette définition paraît assez simple, il n'est pas toujours aussi simple de déterminer la transition élastique-plastique car, dans la plupart des cas, celle-ci s'effectue graduellement (cf. figure 2.3b). On définit alors une limite d'élasticité conventionnelle à partir de 0,2% de déformation ( $\sigma_{E-0,2\%}$ ). Notons que la limite d'élasticité d'un matériau dépend de plusieurs paramètres dont la température, la densité de dislocations immobiles, la taille des grains.
- ❖ **Résistance à la traction ( $\sigma_M$ )** : c'est la valeur maximale de la contrainte atteinte durant le test ; elle est souvent notée UTS (pour Ultimate Tensile Strength en anglais).
- ❖ **Module d'élasticité ( $E$ )** : le module d'élasticité ou module d'Young est donné par la pente de la partie linéaire du diagramme contrainte-déformation. Il est obtenu par la loi de Hooke pour les petites déformations (cf. équation 8). Le module d'Young, principalement fonction des forces interatomique, renseigne sur la rigidité du matériau. Cependant, le calcul du module à partir du diagramme contrainte-déformation nécessite l'utilisation d'un

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

---

extensomètre très précis, car aussi rigide que puisse être une machine de traction, sa raideur influence la pente de la courbe.

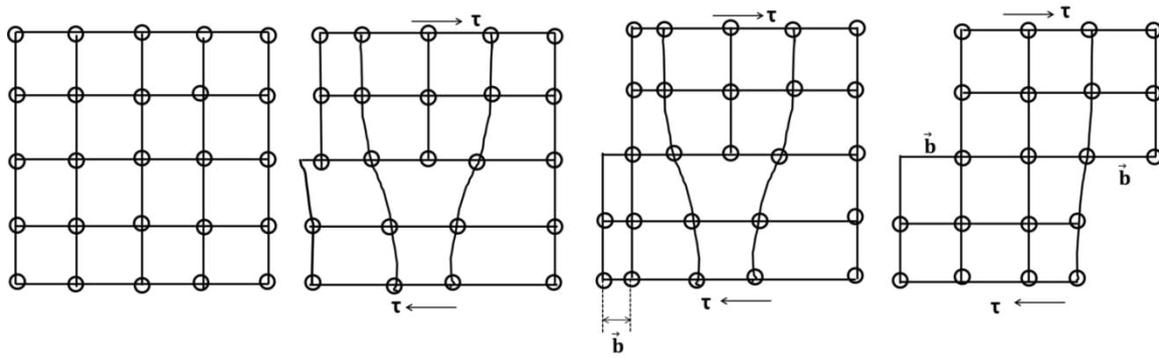
$$\sigma = E\varepsilon \quad (8)$$

- ❖ **Rigidité** : elle est fonction de l'énergie des liaisons entre les atomes ou les molécules constituant le matériau. On mesure la rigidité principalement par le module d'Young. Plus ce module est élevé, plus le matériau est rigide.
- ❖ **Ductilité** : elle correspond à la capacité d'un matériau à se déformer de façon permanente avant de se rompre. Plus l'allongement à la rupture est élevé, plus le matériau est considéré comme ductile. A l'opposé, lorsque la déformation permanente est très réduite ou nulle, on parle d'un matériau fragile.

### II.3 - Déformation plastique des matériaux métalliques

La résistance mécanique est un problème critique en physique de la matière condensée. Comme nous l'avons déjà mentionné, on veut toujours éviter que les pièces d'une structure quelconque se déforment de manière irréversible (plastiquement). Ainsi, au-delà de l'établissement des propriétés d'usage d'une pièce à l'aide de tests relativement simples, on cherche à identifier les paramètres qui sont à l'origine de ces propriétés et ce, pour différentes raisons. Par exemple, l'identification des paramètres à l'origine du phénomène de la plasticité d'un matériau peut amener à expliquer et comprendre le phénomène pour ensuite, quand cela est possible, les influencer en vue d'une modification des propriétés mécaniques macroscopiques. Il est maintenant bien établi que, dans les matériaux cristallins usuels, la plasticité est due essentiellement au mouvement des dislocations [1]. En effet, lorsqu'on déforme un cristal de manière irréversible, on voit apparaître à sa surface des lignes parallèles espacées de quelques dizaines de nanomètres ; ces lignes proviennent de l'émergence des dislocations en surface. En d'autres termes, la déformation plastique d'un cristal s'opère principalement par mouvements de dislocations. La figure 2.4 schématise le glissement d'une dislocation (coin) sous l'effet d'une contrainte de cisaillement  $\tau$  ; lorsque la dislocation traverse le cristal, elle provoque une translation d'amplitude  $b$  des rangées atomiques ( $\vec{b}$  étant le vecteur de Burgers de la dislocation). Le passage successif de nombreuses dislocations va créer une surface marche visible à l'échelle macroscopique.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F



**Figure 2. 4 :** Déplacement d'une dislocation coin dans un cristal sous l'effet d'une contrainte de cisaillement  $\tau$  provoquant le glissement d'une partie d'un cristal.

Ainsi, la déformation plastique qui se manifeste à l'échelle macroscopique résulte d'un mouvement d'ensemble de dislocations à l'échelle de la microstructure. La cinématique de ce mouvement d'ensemble des dislocations est décrite par la formule d'Orowan (équation 9) et la contrainte nécessaire pour déplacer une dislocation et vaincre les frottements du réseau est donnée par la relation de Peierls-Nabarro (équation 10)

$$\dot{\epsilon} = T\rho_m v b \quad (9)$$

$$\vec{f} = \tau \vec{b} \quad (10)$$

$\dot{\epsilon}$  étant la vitesse de déformation,  $T$ , le facteur de Taylor,  $\rho_m$  est la densité de dislocations mobiles de vecteur de Burgers  $\vec{b}$  et de vitesse moyenne  $v$ .  $\vec{f}$  représente la force par unité de longueur de dislocation nécessaire pour déplacer une dislocation sur une longueur égale à  $b$ .

Cependant, toutes les dislocations présentes dans un matériau ne sont pas mobiles. Les analyses cristallographiques d'échantillons déformés montrent d'ailleurs que les glissements se produisent généralement dans des plans bien déterminés de la maille cristalline. La loi de Schmid et Boas stipule qu'un système de glissement est activé et participe à la déformation plastique du monocristal quand sa contrainte de cisaillement atteint une valeur critique  $\tau_c$  (contrainte critique projetée). En déformation uniaxiale, le glissement des dislocations débute lorsque la contrainte imposée  $\sigma$  atteint la valeur critique [2] telle que :

$$\tau_c = m\sigma_c \quad (11)$$

$m = \cos(\lambda) \times \cos(\phi)$  étant le facteur de Schmid avec  $\lambda$ , l'angle entre la direction de glissement et l'axe de sollicitation et  $\phi$ , celui entre la normale au plan de glissement et l'axe de sollicitation.  $m$  varie de 0 à 0,5.

Les plans de glissement (les plus denses) présentant un facteur de Schmid le plus élevé sont les premiers activés. La plupart des plans (les plus denses) et des directions de glissement dans les structures cubique à faces centrées, cubique centré et hexagonal compact sont répertoriés dans le tableau II.3.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

Structure	Plan de glissement	Direction de glissement
CFC	{111}	<110>
CC	{110} {112} {123}	<111>
HC	{0001}	<11-20>

Tableau II. 3 : Principaux systèmes de glissement observés [3, 4].

### II.3.1- Evolution microstructurale au cours de la déformation plastique

L'évolution de la microstructure d'un cristal au cours de la déformation plastique a fait l'objet de nombreux travaux. On définit (au moins) quatre stades en fonction de la densité de dislocations ainsi que de leur arrangement (ou organisation) au sein du cristal durant la déformation. Certains auteurs parlent d'un cinquième stade dont la compréhension présente une certaine ambiguïté [5]. Cependant, pour les métaux de structures cubiques les quatre stades de la déformation plastique sont plutôt bien admis [5, 6, 7]. Nous allons présenter succinctement ces quatre stades de la déformation plastique pour un monocristal ; pour plus de détails, le lecteur pourra se référer à [5, 6]

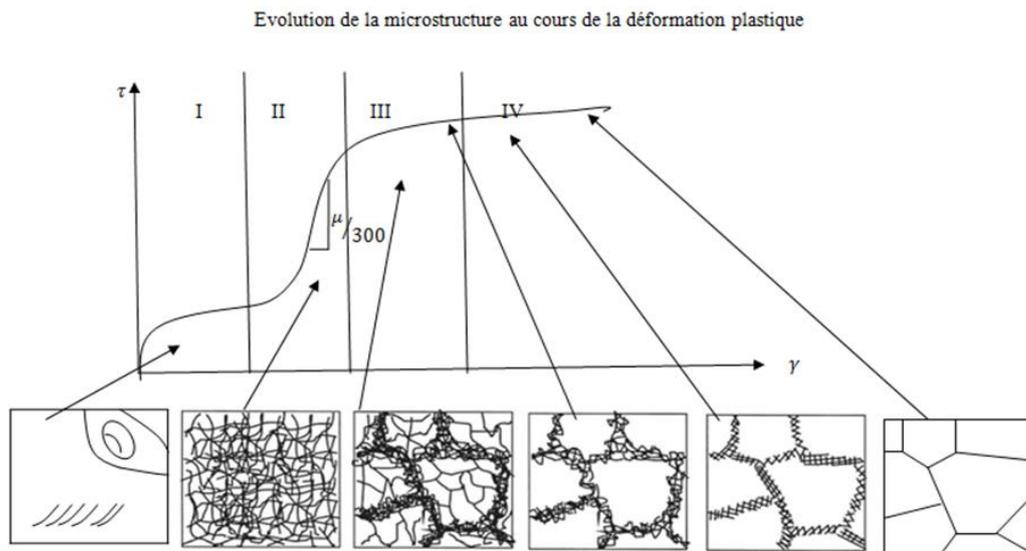


Figure 2.5 : Evolution de la microstructure du monocristal au cours de la déformation plastique [6].

La figure 2.5 présente schématiquement l'évolution de la microstructure du monocristal en quatre stades :

**Stade I :** Glissement facile des dislocations dans les plans primaires (les seuls activés à ce stade). Le taux d'érouissage est faible du fait que les dislocations du système n'interagissent pas avec celles d'autres systèmes (non encore activés) ; leur libre parcours moyen (distance parcourue par une dislocation sans être immobilisée) est grand. On a un

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

---

facteur de Schmid élevé pour un faible taux de consolidation ( $\theta = d\tau/d\gamma$ ). L'accumulation des dislocations s'accompagne d'une rotation graduelle du réseau.

La fin du stade I est atteinte quand la contrainte de cisaillement résolue dans le système conjugué de glissement est égale à la contrainte critique de cisaillement résolue à laquelle le système primaire de glissement s'est activé au début de la déformation [5].

**Stade II :** Durcissement linéaire, activation du glissement secondaire. L'interaction entre les dislocations des deux systèmes diminue le libre parcours moyen de ces dernières. On assiste à une forte augmentation de la contrainte pour franchir les arbres de la forêt. Le taux de consolidation est élevé (environ  $\mu/300$ ,  $\mu$  étant le module de cisaillement) et reste constant durant tout le stade.

La fin du stade II correspond à l'apparition du glissement dévié (cross-slip) qui est un phénomène correspondant aux dislocations qui changent de plan de glissement au cours de leur déplacement. L'étendue de ce stade de la déformation est d'autant plus courte que la température est plus élevée ou que l'énergie de défaut d'empilement du métal est plus élevée [5].

**Stade III :** Durcissement parabolique ; on observe une accélération de la restauration dynamique. Le réseau dense créé par la déformation se réorganise (structure quasi stable en fin de stade III), notamment via l'annihilation par glissement dévié des dislocations vis de vecteur de Burgers opposés. Le taux de consolidation est faible en raison de la stabilisation de la densité de dislocations.

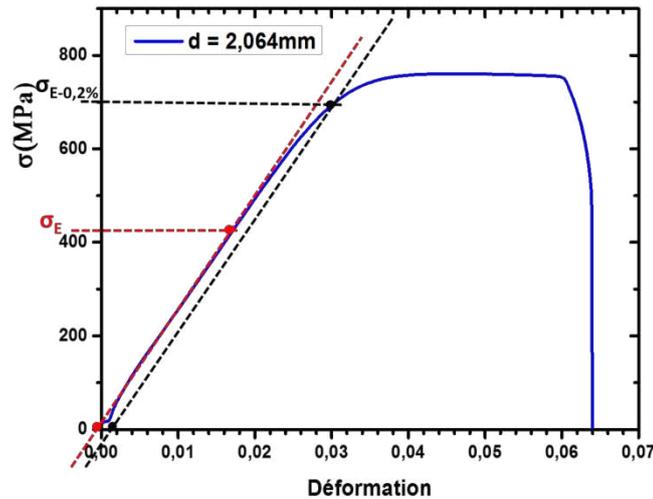
**Stade IV :** A ce stade, le réseau de dislocations s'organise en structure stable caractérisée par des cellules dont les parois sont constituées de dislocations enchevêtrées et stables (avec des sous joints faiblement désorientés : LAGB). Les parois des cellules ont alors une faible capacité à capturer de nouvelles dislocations. Le taux de consolidation est faible et tend vers une valeur limite non nulle. Le réseau dense de dislocations est très bien organisé à la fin de ce stade, avec des joints fortement désorientés, les HAGB.

### II.3.2- Durcissement mécanique des conducteurs Cu/Nb-F

Une des difficultés dans l'interprétation des courbes de traction consiste en la détermination de la transition élasto-plastique. La figure 2.6 présente une courbe contrainte-déformation d'un conducteur composite Cu/Nb-F avec une transition élasto-plastique progressive. Nous pouvons déterminer la transition élastique-plastique suivant deux critères :

- a) L'écart à la linéarité du domaine élastique : on trouve une limite d'élasticité  $\sigma_E$  d'environ 400MPa, équivalente la limite d'élasticité du cuivre écrouis.
- b) La contrainte à 0,2% de déformation qui donne une limite d'élasticité d'environ 700MPa.

De précédentes études sur les micro- et-(nano) -composites Cu/Nb ont déjà mis en évidence les difficultés à définir leur limite d'élasticité en raison, notamment de leur caractère multi-échelles où les différentes phases (Cu et Nb) et/ou les canaux de cuivre (Cu-0, Cu-1, Cu-2, ...) ne plastifient pas simultanément.



**Figure 2. 6 :** Exemple de courbe contrainte-déformation pour la détermination de la transition élastique- plastique des conducteurs Cu/Nb-F (traction à 293K -  $N = 85^2$  /  $d = 2$ mm).

Une étude sur la transition élasto – (visco)-plastique des composites Cu/Nb a été menée par L. Thilly et al. par suivi de la forme des pics de diffraction lors d’essais de déformation in-situ sous rayonnement synchrotron [8]. Ils ont en effet constaté que, pour ces conducteurs micro – et (nano)-composites, l’écoulement plastique macroscopique a toujours lieu lorsque le module tangent ( $\frac{d\sigma}{d\varepsilon}$ ) dépasse une valeur correspondant au tiers du module d’Young. Ils ont alors proposé le critère E/3 pour la description de la transition élasto-plastique des conducteurs composites Cu/Nb-F. L’application de ce critère passe par la courbe de durcissement mécanique. Nous rappelons que, partant d’une courbe contrainte-déformation, le durcissement mécanique  $\theta_a$  n’est autre que sa dérivée première, soit :

$$\theta_a = \frac{d\sigma}{d\varepsilon} \quad (12)$$

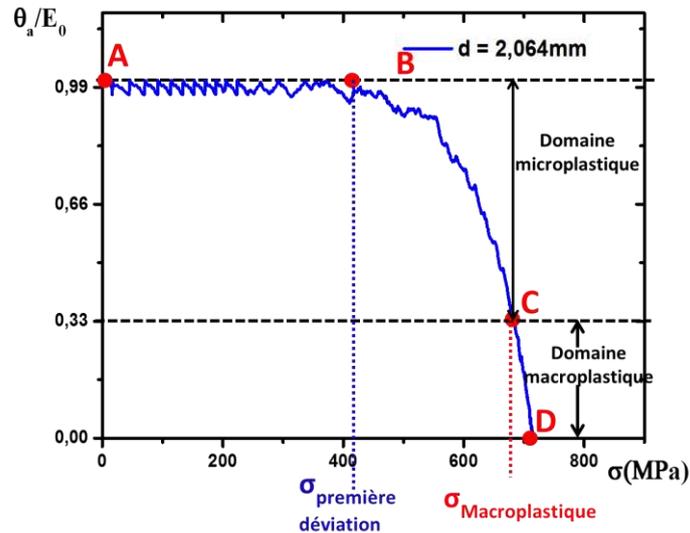
Ce critère, illustré à la figure 2.7, est donc utilisé pour décrire la transition élasto-plastique des conducteurs composites Cu/Nb-F étudiés durant ces travaux de thèse. En effet, sur la courbe de durcissement mécanique de la figure 2.7, on peut distinguer trois domaines :

- Le domaine AB, partie linéaire, correspond au domaine purement élastique. La projection du point B sur l’axe des contraintes donne la valeur de la contrainte de première déviation.
- Le domaine BC correspond à un régime micro-plastique ; tout le matériau n’est pas dans le régime plastique.
- Le domaine CD où le régime plastique est atteint, tout le matériau plastifie, le début de ce domaine correspond au point C (à 1/3 de E) et la projection de ce point sur l’axe des contraintes donne la valeur de la contrainte macroplastique, notée ici  $\sigma_M$ , de l’échantillon (728MPa)

On retrouve par ce critère, une bonne corrélation entre  $\sigma_{E-0.2\%}$  et la contrainte macroplastique  $\sigma_M$  telle qu’il a été suggéré dans [8] pour les macro-composites. Notons

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

que pour les micro- et nano-composites, ces deux critères donnent des valeurs bien différentes.



**Figure 2.7 :** Exemple de courbe de durcissement mécanique utilisée pour l'étude de la transition élasto-plastique des conducteurs Cu/Nb par le critère E/3 (traction 293K – N = 85<sup>2</sup> / d = 2mm).

### II.4- Machine de Traction uni-axiale

Une machine de traction uni-axiale est constituée de systèmes de traction (bâti, mors, cellule de charge), de capteurs de mesures des allongements et des efforts et aussi d'un système informatique pour le contrôle de l'essai et l'acquisition des données. Les mors sont installés de sorte que leurs axes soient colinéaires avec celle du piston ou la traverse mobile de la machine de traction. En général, les efforts sont mesurés par des jauges de contraintes et les allongements se mesurent soit par le déplacement de la traverse (écartement des mors) soit par l'utilisation d'un extensomètre. Bien que les machines de traction soient rigides, les mesures d'allongement par écartement des mors ne correspondent pas à l'allongement réel (vrai) de l'échantillon testé. En effet, l'allongement ainsi mesuré contient, entre autres, l'allongement élastique du bâti de la machine de traction. Pour accéder à l'allongement réel de l'échantillon, on utilise soit un extensomètre soit des marqueurs sur l'échantillon avant l'essai et on suit leur déplacement par traitement d'image ; dans ce dernier cas, on doit donc disposer d'une caméra pour prendre les images de l'échantillon à tout instant du test.

Pour un essai de traction uni-axiale, on peut schématiser, dans le régime classique, le système par deux ressorts en série. En effet, comme mentionné précédemment, en plus de la déformation de l'échantillon, la machine de traction (et le montage utilisé) induit une déformation résiduelle que l'on doit prendre en compte pour une présentation rigoureuse des résultats. Et cette contribution à la déformation de la machine via sa raideur devient indispensable lorsque l'on veut effectuer des calculs de module d'Young.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

En effet, pour un tel système, l'échantillon étant, ici, symbolisé par son module élastique  $E_{éch}$  et le montage par sa raideur  $E_M$ , la déformation induite par l'application d'une contrainte extérieure  $\sigma$  est telle que :

$$\epsilon_{tot} = \epsilon_{éch} + \epsilon_M \quad (13)$$

En utilisant l'équation 8, on a :

$$\frac{\sigma}{E_{tot}} = \frac{\sigma}{E_{éch}} + \frac{\sigma}{E_M} \quad (14)$$

Soit :

$$\frac{1}{E_{tot}} = \frac{1}{E_{éch}} + \frac{1}{E_M} \quad (15)$$

### II.5- Dispositif expérimental

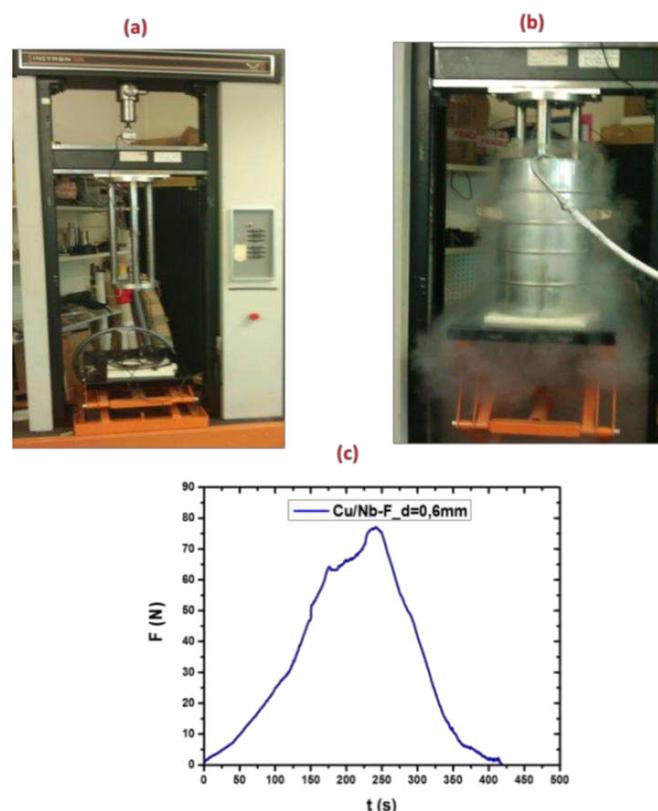
Les essais mécaniques sur les conducteurs Cu/Nb-F ont été effectués au Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses (LNCMI) de Toulouse sur une gamme de diamètres allant de 2 à 0,25mm d'échantillons obtenus après deux cycles ADB ( $N = 85^2$ ) et trois cycles ADB ( $N = 85^3$ ) respectivement.

Les tests sont réalisés sur une machine de traction Instron avec une vitesse de 2mm/min en utilisant des cellules de charge de 5kN et 1kN. Les longueurs utiles (ou calibrées) sont comprises entre 9cm et 3cm environ, ce qui correspond à des vitesses de déformation comprises entre  $1,22 \times 10^{-3} s^{-1}$  et  $3,55 \times 10^{-4} s^{-1}$ . Le système enregistre l'évolution de la charge en fonction du temps, l'allongement est ensuite calculé en multipliant ce temps par la vitesse (en mm/s) d'écartement des mors. Rappelons que ces conducteurs sont destinés à la fabrication de bobines (fonctionnant à 77K) non destructives générant des champs magnétiques pulsés intenses. Les essais ont donc été réalisés à température ambiante (293K) et à la température de l'azote liquide (77K). Des photographies de la machine de traction pour les essais à l'ambiante et à la température de l'azote liquide sont présentées à la figure 2.8. Notons que pour les essais à 77K l'ensemble « mors-échantillon » est immergé dans le bain d'azote liquide ; on attend quelques minutes pour la stabilisation du système (mise à froid) avant de lancer l'essai ; une courbe  $F(t)$  de mise à froid d'un conducteur Cu/Nb-F de diamètre 0,6mm est donnée à la figure 2.8c. Sur cette courbe, on peut remarquer que la force augmente graduellement avec le temps jusqu'à une valeur maximale pour ensuite diminuer jusqu'à zéro. Pour tous les essais à 77K, on considère la mise à froid est terminée lorsque l'équilibre thermique est atteint, c'est-à-dire lorsque la force revient à zéro ( $F = 0$ ), avant de lancer l'essai. Deux systèmes de mors nommés « mors auto-serrant » et « mini-mors » avec ou sans galets ont été utilisés (voir figure 2.9). Le second système offre l'avantage de pouvoir installer les fils de faibles diamètres sans les endommager dans les mâchoires par un serrage trop poussé ; l'enroulement autour des galets permet de réduire le risque de glissement dans les mors. Tous les essais à 77K sont réalisés avec les mini-mors (sans les galets pour l'échantillon de diamètre 2mm).

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

Notons que les deux systèmes de mors utilisés ont des raideurs très différentes et que celles-ci n'ont pas pu être estimées de manière fiable (géométrie des fils, basse température, etc.). Il n'a pas été possible non plus d'utiliser un extensomètre compatible avec les différents diamètres et les différentes températures.

Ainsi, à défaut de connaître la raideur du montage, les résultats de cette section sont présentés en utilisant la déformation totale et les courbes de durcissement mécanique ( $\theta_a = d\sigma/d\varepsilon$ ) sont représentées en relatif, c'est-à-dire  $\theta_a/E_0$ , où  $E_0$  est la valeur du module d'Young total correspondant au domaine élastique. Il faut aussi noter que certains problèmes liés au glissement dans les mors ou d'un serrage trop poussé de l'échantillon dans les mors n'ont pas été totalement maîtrisés ; pour certains essais, les ruptures ont lieu en dehors de la zone utile. Dans certains cas, les ruptures sont fragiles (l'UTS vraie pourrait être plus élevée que celle obtenue). Nous présenterons dans cette partie uniquement les valeurs des UTS obtenus en fonction des diamètres. L'erreur sur les valeurs d'UTS est estimée à 5% ce qui correspond, par exemple, à environ 40MPa sur la contrainte maximale obtenue pour l'échantillon de diamètre 2mm à l'étage N = 85<sup>2</sup> (772MPa) ; à noter que sur ce même échantillon, on a obtenu une valeur d'UTS d'environ 800MPa lors d'un essai de traction à température ambiante au laboratoire Léon Brillouin, sur un autre dispositif expérimental. Des courbes de traction et de durcissement sont présentées à l'annexe A-II



**Figure 2. 8 :** (a) et (b) machine de traction en configuration pour des tests à 293K et à 77K respectivement ; (c) courbe de mise à froid d'un conducteur Cu/Nb-F de diamètre 2mm obtenu après 2 cycles ADB (N = 85<sup>2</sup>).

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

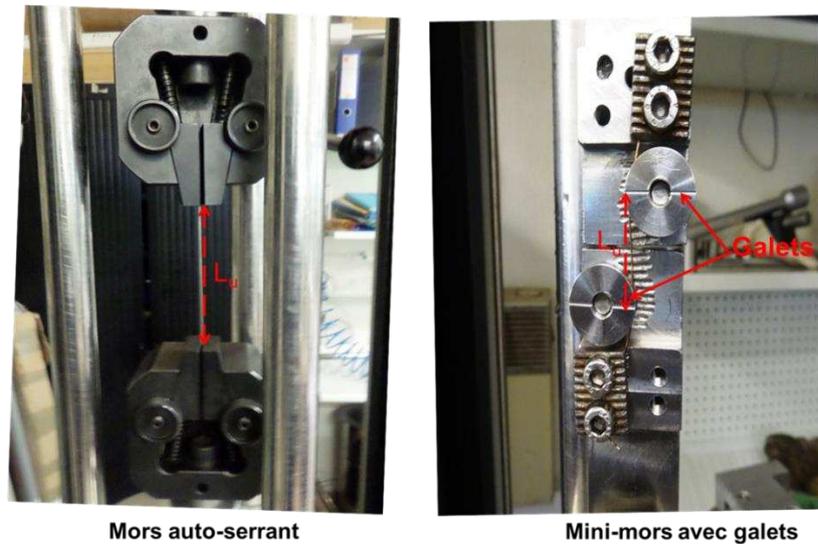


Figure 2.9: Systèmes de mors utilisés pour les essais de traction uni-axiale.

### II.6- Résultats pour l'étage n = 85<sup>2</sup>

Les diamètres et les valeurs de la contrainte maximale de traction (UTS) correspondant aux échantillons de l'étage n = 85<sup>2</sup> sont regroupés dans le tableau II.4 et la figure 2.10 présente l'évolution de l'UTS en fonction du diamètre des fils, soit en fonction de l'affinement de la microstructure des essais à 293K et 77K. Pour les essais à 77K, et pour les mêmes diamètres, on a une augmentation d'environ 20% des valeurs d'UTS par rapport aux essais à 293K. L'augmentation de la résistance à la traction avec la diminution de la température est due au fait que les dislocations se déplacent plus difficilement à basse température notamment dans le niobium de structure cubique centrée (contraintes de Peierls) [9, 10, 11]. On remarque que, pour les gros diamètres ( $d > 1\text{mm}$ ), la contrainte maximale ne semble pas évoluer (domaine I), contrairement aux petits diamètres ( $d \leq 1\text{mm}$ ) où l'on observe à une augmentation (modérée) progressive des valeurs de la contrainte maximale (domaine II). Ce comportement, observé sur les deux types d'essais, pourrait s'expliquer par la manifestation d'un début d'effet de taille lorsque le diamètre de l'échantillon passe en dessous d'environ 1mm.

Cu/Nb-F_N=85 <sup>2</sup> / Traction 293K et 77K – V = 2mm/mn – Cellule 5KN				
d(mm)	L <sub>u</sub> -RT/77K(mm)	UTS-293K(MPa)	UTS-77K (MPa)	Montage
2,064	94/86,5	761	886	Mors auto serrant
1,511	97/40	760	888	Mors auto serrant
1,023	39/43	805	992	Mini mors
0,809	48,5/39,5	835	1022	Mini mors
0,592	44/37	859	1047	Mini mors
Cu/Nb-F_N=85 <sup>2</sup> / Traction 293K et 77K – V = 2mm/mn – Cellule 1KN				
0,547	21/27,5	876	1063	Mini mors
0,506	23/21	888	1070	Mini mors
0,401	26/23,5	885	1066	Mini mors
0,293	27/31	896	1092	Mini mors
0,251	25/35	941	1098	Mini mors

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

Tableau II. 4 : Résultats des essais de traction uni-axiale des Conducteurs Cu/Nb-F à l'étage n = 85<sup>2</sup>.

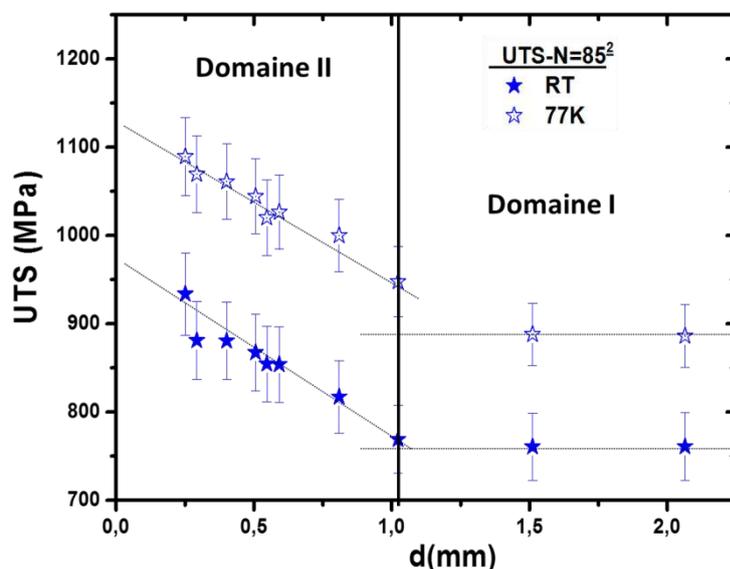


Figure 2.10: Contraintes maximales de traction (UTS) à 293K et 77K des conducteurs Cu/Nb-F de l'étage n = 85<sup>2</sup>.

### II.7- Résultats pour l'étage n = 85<sup>3</sup>

Les tests de traction uni-axiale (à 293K et 77K) de l'étage n = 85<sup>3</sup> ont été réalisés par N. Ferreira du LNCMI. Les résultats (valeurs d'UTS) sont répertoriés dans le tableau II.5.

Cu/Nb-F_N=85 <sup>3</sup> / Traction 293K et 77K – V = 2mm/mn – Cellule 5KN				
d(mm)	L <sub>0</sub> -RT/77K(mm)	UTS-293K(MPa)	UTS-77K (MPa)	Montage
2,064	96/78	742	882	Mini mors
1,634	101/70	771	871	Mini mors
1,511	101/55	774	893	Mini mors
1,293	101/52	786	927	Mini mors
1,023	57/51	798	989	Mini mors
0,946	57/49	852	989	Mini mors
0,875	56/50	808	1034	Mini mors
0,809	55/52	854	1058	Mini mors
0,748	63/51	921	1072	Mini mors
0,692	54/51	892	1108	Mini mors
0,64	51/51	913	1093	Mini mors
0,592	53.5/49	962	1155	Mini mors
0,547	55/48,5	979	1174	Mini mors

Tableau II. 5 : Résultats des essais de traction uni-axiale des Conducteurs Cu/Nb-F à l'étage n = 85<sup>3</sup>.

L'évolution des valeurs de la contrainte maximale de traction (UTS) en fonction des diamètres est présentée à la figure 2.11. Les valeurs des UTS à 77K affichent, par rapport aux UTS à 293K, une augmentation d'environ 14% pour les diamètres supérieurs ou égaux à 1,5mm et, pour les diamètres inférieurs, l'augmentation est d'environ 18%. Pour les deux types d'essais (293K ou 77K), on assiste à une évolution modérée de l'UTS jusqu'à environ d

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

= 1,293mm (domaine I') pour ensuite augmenter rapidement avec la réduction des diamètres (domaine II'). En effet, il semblerait que pour les gros diamètres (domaine I'), il y a la manifestation d'un début d'effet de taille. La forte augmentation de la pente du domaine II' résulte probablement d'un effet de taille assez prononcé de l'étage  $N = 85^3$  qui apparaît pour les diamètres inférieurs ou égaux à 1mm.

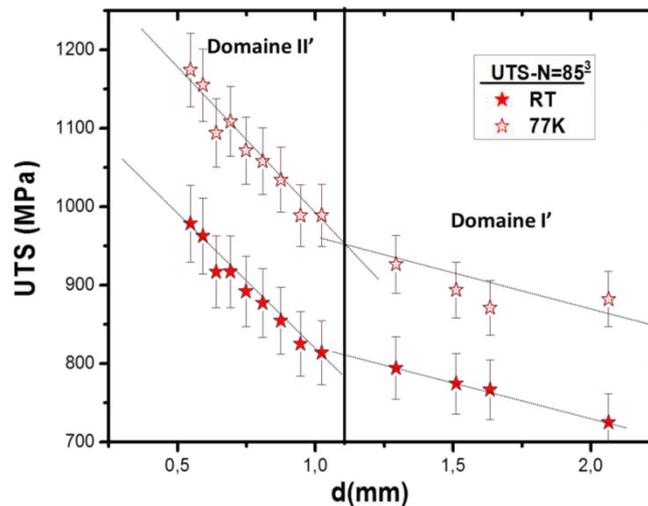


Figure 2.11 : Contraintes maximales de traction (UTS) à 293K et 77K des conducteurs Cu/Nb-F de l'étage  $n = 85^3$ .

La figure 2.12 compare les résultats des essais à 293K des deux étages ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ).

- Pour l'étage  $n = 85^2$ , au cours du domaine I (de  $d = 2\text{mm}$  à environ  $d = 1\text{mm}$ ) l'UTS n'évolue pas (ou très peu) avec la réduction des diamètres. Dans le domaine II (pour  $d \leq 1\text{mm}$ ), on observe une augmentation (modérée) de l'UTS avec l'affinement de la microstructure. Pour cet étage, on a donc un début d'effet de taille lorsque le diamètre de l'échantillon devient inférieur ou égal à 1mm. A noter que pour ces petits diamètres (voir tableau II.1) certains canaux du Cu-0 sont submicrométriques, ce qui pourrait donc expliquer ce début d'effet de taille observé.
- L'étage  $n = 85^3$ , lui, présente une évolution modérée de l'UTS dans le domaine I' ; il semblerait cependant que l'affinement de la microstructure (voir tableaux II.1 et II.2) pour les diamètres 2mm (et 1,6mm) par rapport à l'échantillon  $N = 85^2$  n'induit pas d'effet de taille ; l'UTS correspondant au diamètre 2mm est même inférieure à celle du même diamètre de l'échantillon  $N = 85^2$ . Ainsi, pour les diamètres supérieurs à 1,5mm, la proportion accrue de cuivre dans l'échantillon  $N = 85^3$  (65% contre 55% pour le  $N = 85^2$ ) semble l'emporter sur l'effet (ou le début d'effet) de taille. Cependant, en dessous de  $d = 1,5\text{mm}$  jusqu'à environ  $d = 1\text{mm}$ , l'effet de taille l'emporte sur la proportion accrue de cuivre et les valeurs d'UTS, pour les diamètres équivalents, sont plus élevées que celles de l'étage  $n = 85^2$ . Le domaine II' (pour  $d \leq 1\text{mm}$ ) met en évidence un effet de taille assez

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

prononcé ; pour  $d = 1\text{mm}$  (début du domaine II') par exemple, la différence entre les UTS des deux étages est égale à environ 45MPa pour ensuite passer à 125MPa au diamètre 0,547mm, d'où la pente aiguë des échantillons de l'étage  $n = 85^3$  pour cette gamme de diamètres. Ces résultats sont plutôt cohérents car, pour cet étage, les filaments de niobium, tous les canaux de Cu-0 et certains du Cu-1 sont submicrométriques, voire nanométriques (cf. tableau II.2).

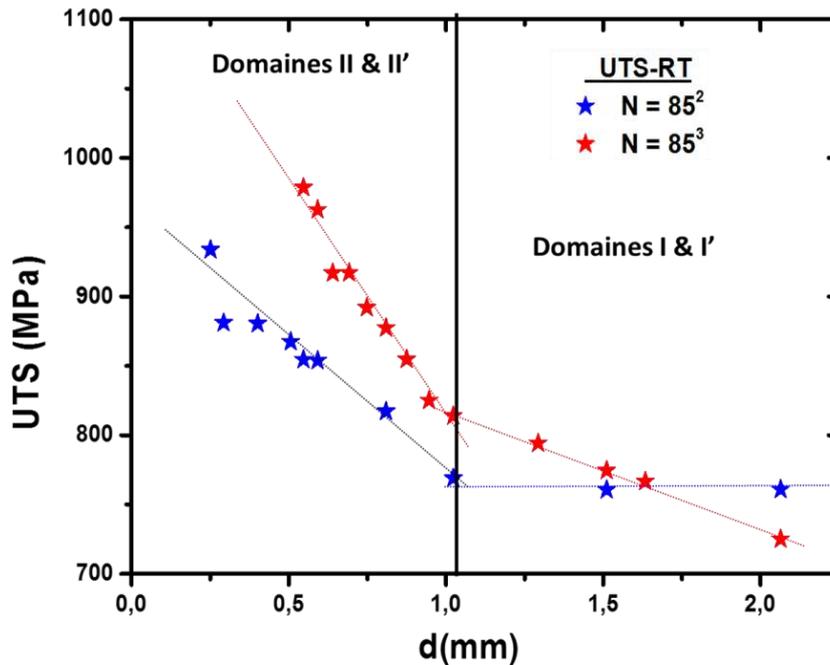


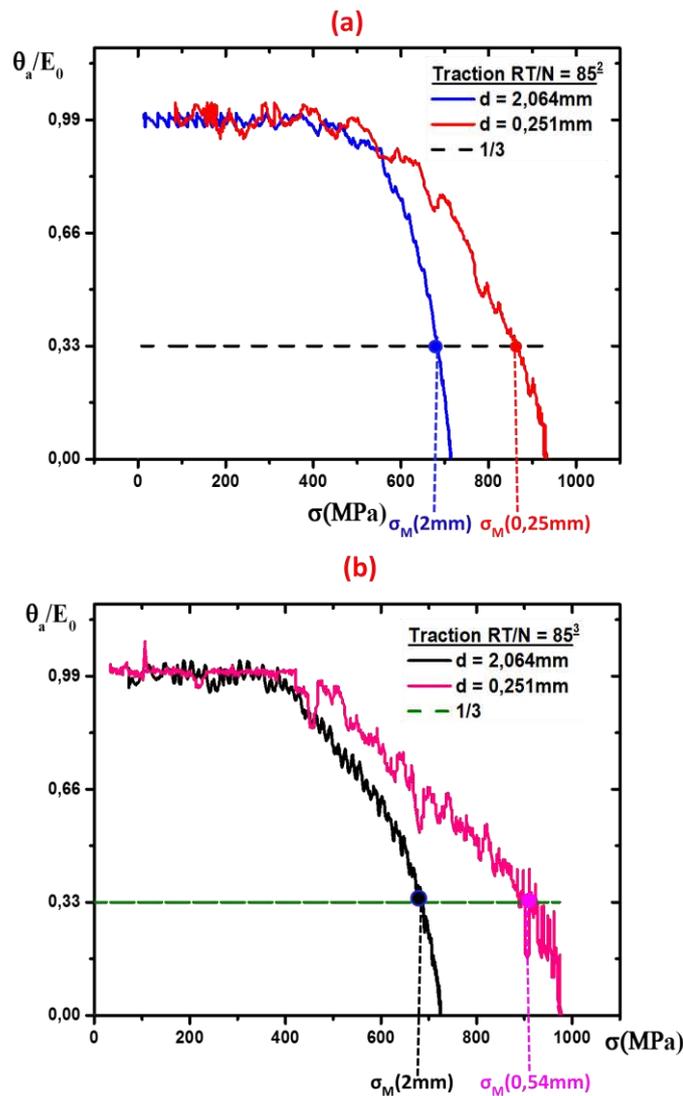
Figure 2. 12 : Comparaison des UTS à 293K en fonction des diamètres des conducteurs Cu/Nb-F aux étages  $n = 85^2$  et  $n = 85^3$ .

### II.8- Résultats des calculs de durcissement mécanique

Sur la figure 2.13 les courbes de durcissement correspondant aux diamètres extrêmes des deux étages ( $n = 85^2$  et  $n = 85^3$ ) pour les essais à 293K sont reportées. Une comparaison de ces graphiques nous permet de mettre en évidence les points suivants :

- ❖ Les domaines purement élastiques sont pratiquement les mêmes pour tous les échantillons.
- ❖ Le domaine microplastique est plus étendu pour les échantillons de microstructures plus fines; ceci se traduit par un retard du domaine macroplastique et donc, une augmentation des contraintes macroplastiques des échantillons de diamètres 0,251mm (870MPa contre 691MPa pour l'échantillon de diamètre 2mm) et 0,54mm (914MPa contre 674MPa pour l'échantillon de diamètre 2mm).
- ❖ Le critère  $E/3$  offre une description plus complète de la transition élasto - (ou élastovisco)-plastique des conducteurs composites Cu/Nb-F.

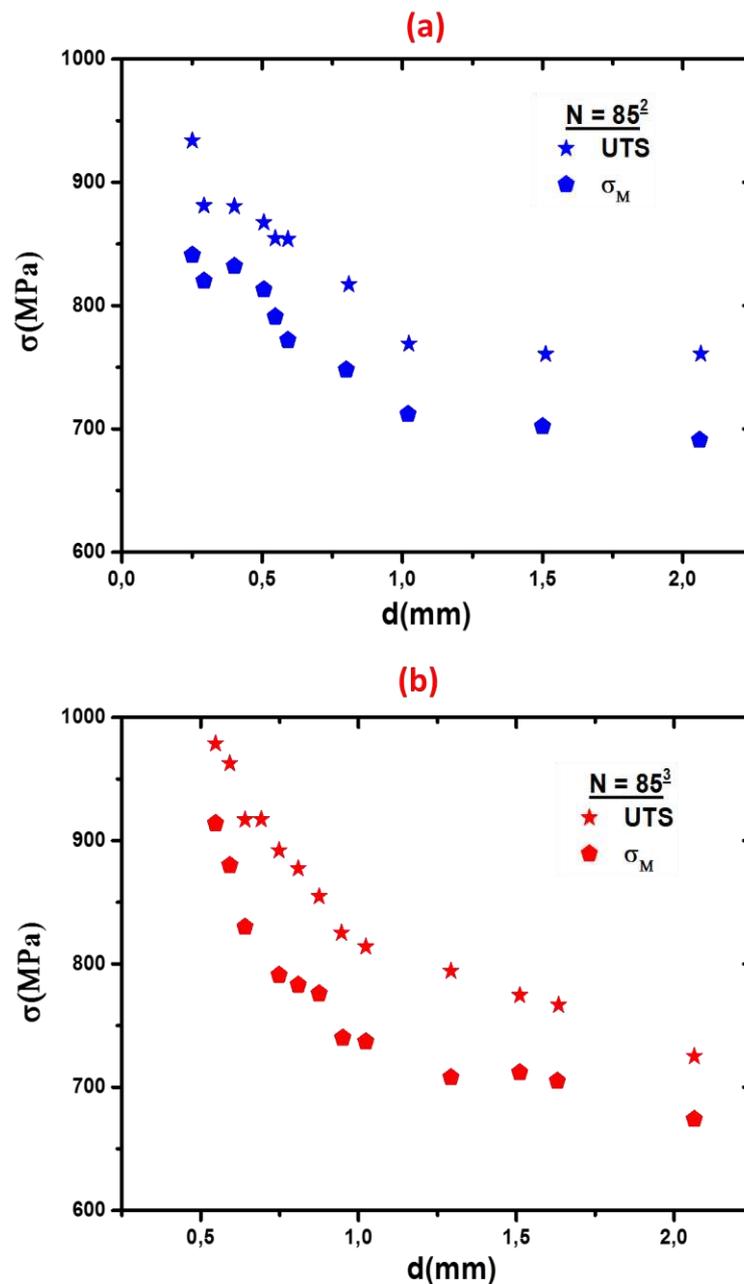
## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F



**Figure 2.13 :** Courbes de durcissement mécanique des essais de traction à 293K correspondant aux diamètres extrêmes (a) : 2mm et 0,25mm pour l'étage  $n = 85^2$  ; (b) : 2mm et 0.54mm pour l'étage  $n = 85^3$ .

La figure 2.14 donne l'évolution de la contrainte macroplastique  $\sigma_M$  en fonction des diamètres et propose une comparaison de cette évolution avec celle des UTS pour les essais à 293K. La contrainte macroplastique suit la même évolution que l'UTS ; on y retrouve les deux domaines :

- Etage  $n = 85^2$  : le domaine I où  $\sigma_M$  reste pratiquement constante suivi du domaine II (à partir de  $d = 1\text{mm}$  environ) présentant une évolution modérée avec l'affinement de la microstructure.
- Etage  $n = 85^3$  : domaine I' avec une évolution modérée de  $\sigma_M$  avec l'affinement de la microstructure suivi du domaine II' où  $\sigma_M$  augmente plus rapidement avec la réduction du diamètre.



**Figure 2.14** : Evolution de la contrainte macroplastique ( $\sigma_M$ ) en fonction du diamètre pour les essais à 293K. (a) étage  $n = 85^2$  et (b) étage  $n = 85^3$ . Les UTS ont été reportées pour comparaison.

## II.9- Caractérisation électrique des conducteurs Cu/Nb-F

### II.9.1- Conductivité électrique : généralités

La conductivité électrique d'un matériau détermine sa capacité à laisser passer un courant électrique. Dans les métaux, le transport du courant se fait principalement par les électrons « libres ». En effet, dans un métal les électrons des couches extérieures peuvent se libérer du noyau atomique et se déplacer librement dans tout le volume du matériau. L'ensemble de ces électrons, qualifié de « gaz d'électrons », est caractérisé par un mouvement

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

---

de direction aléatoire où les électrons se déplacent indépendamment les uns des autres de telle sorte que la distribution des vitesses électroniques soit nulle ( $\bar{v} = 0$ ). Cependant, par application d'un champ électrique extérieur, on peut orienter le mouvement des électrons et avoir une vitesse moyenne non nulle et donc, donner naissance à un courant électrique. Plusieurs modèles dont ceux de Drude (théorie classique) et de Sommerfeld (théorie quantique) permettent la description de la conductivité électrique des porteurs de charge. Nous nous contentons ici de l'utilisation de la loi d'Ohm pour les calculs sur la conductivité électrique des conducteurs Cu/Nb-F.

$$\sigma_{\text{bulk}} = \frac{1}{\rho_{\text{bulk}}} = ne\mu \quad (16)$$

Où  $\mu$ , la mobilité des électrons, est reliée au temps de relaxation (la durée entre deux collisions) par :  $\mu = \tau e/m$ ;  $n$ ,  $m$  et  $e$  étant respectivement la densité d'électrons libres, la masse et la charge de l'électron. En supposant l'électron animé d'un mouvement uniforme de vitesse  $v$ , la distance  $\ell$  parcourue pendant la durée  $\tau$  est  $\ell = \tau v$ .

Cette distance, appelée « libre parcours moyen électronique » joue un rôle fondamental sur les propriétés électriques des métaux. L'expression de la conductivité électrique en fonction du libre parcours moyen électronique est donnée par :

$$\sigma_{\text{bulk}} = \ell \frac{ne^2}{mv} \quad (17)$$

Au niveau de la surface de Fermi, la vitesse moyenne des électrons peut être reliée au vecteur d'onde et en considérant la surface isotrope, le vecteur d'onde de Fermi peut être écrit en fonction de la densité des porteurs de charge (électrons libres) :

$$K_f = (3\pi^2 n)^{-1/3} \quad (18)$$

Dans ces conditions, la conductivité électrique du matériau devient proportionnelle au libre parcours moyen des électrons :

$$\frac{\sigma_{\text{bulk}}}{\ell} = \text{constante} \quad (19)$$

Le temps de relaxation ( $\tau$ ) au niveau de la surface de Fermi pour un électron correspond à la durée moyenne entre deux collisions. Selon la règle de Matthiessen, ces dernières peuvent avoir lieu avec les phonons (pseudo-particules associées aux vibrations du réseau cristallin), les impuretés présentes en solution dans le réseau cristallin et les défauts cristallins. Le temps de relaxation dépend donc de trois interactions :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{\text{phonons}}} + \frac{1}{\tau_{\text{impuretés}}} + \frac{1}{\tau_{\text{défauts}}} \quad (20)$$

En introduisant le temps de relaxation dans la relation 17 et en utilisant la résistivité  $\rho$  (inverse de la conductivité), on aboutit à la relation :

$$\rho_{\text{bulk}}(T) = \rho_{\text{phonons}} + \rho_{\text{impuretés}} + \rho_{\text{défauts}} \quad (21)$$

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

Seul le premier terme dépend de la température, puisque la fréquence de vibration des atomes dépend de la température ; les deux derniers sont constants et constituent la résistivité résiduelle  $\rho_0$  du matériau

$$\rho_{\text{bulk}}(T) = \rho_0 + \rho_{\text{ph}}(T) \quad (23)$$

Dans son manuscrit de thèse [12], L. Thilly a déterminé l'influence de la température et du taux d'érouissage sur le libre parcours moyen électronique par des calculs pour différentes températures ( $\rho_{\text{ph}}(T)$ ) et états microstructuraux ( $\rho_0$ ). Une partie de ses résultats, obtenus sur du cuivre, est répertoriée dans le tableau II.6.

T(K)	Cu-OFHC recuit		Cu-OFHC RA=60%		Cu-OFHC RA=99,98%	
	$\rho$ ( $\mu\Omega.cm$ )	$\ell$ (nm)	$\rho$ ( $\mu\Omega.cm$ )	$\ell$ (nm)	$\rho$ ( $\mu\Omega.cm$ )	$\ell$ (nm)
10	0,001	66000	0,01	6600	0,05	1320
63	0,08	825	0,12	550	0,16	412,5
77	0.2	330	0,22	300	0,25	264
273	1,54	42,8	1,58	41,8	1,64	40,2

Tableau II. 6 : Libre parcours moyen à différentes températures, pour des états structuraux différents du cuivre [12].

### II.9.1.1- influence des défauts cristallins sur la conductivité électrique

L'apparition des défauts dans la périodicité du réseau cristallographique d'un métal accroît la diffusion des électrons libres et provoque une diminution du libre parcours moyen électronique, donc une diminution de la conductivité. Dans cette section, inspirée essentiellement de [12], nous allons aborder l'influence des dislocations et des effets de taille sur la conductivité électrique des conducteurs composites Cu/Nb-F.

#### ❖ Influence des dislocations

En considérant que seul le cœur des dislocations participe à la diffusion des électrons, le calcul du tenseur de conductivité à 0K créé par une ligne de dislocation de longueur  $\beta$  par unité de volume, effectué dans le cas d'une surface de Fermi sphérique fermée, donne l'accroissement de la résistivité  $\Delta\rho$  engendré par une densité de dislocations aléatoirement réparties :

$$\Delta\rho = \frac{8\hbar\Omega_0}{3e^2n_0} \beta \quad (24)$$

$\Omega_0$  et  $n_0$  étant respectivement le volume de la cellule primitive et le nombre de porteurs contenus dans ce dernier.

En remplaçant l'accroissement de la résistivité par son expression en fonction de la mobilité des électrons en présence des dislocations, on obtient :

$$\mu\beta = \frac{3e}{8\hbar} = 5,70 \cdot 10^{14} \text{V}^{-1}\text{s}^{-1} \quad (25)$$

Dans le cas du cuivre :  $\Omega_0 = 12 \text{ \AA}^3$  ;  $n_0 = 1$ , on trouve l'expression suivante pour la résistivité par unité de dislocation :

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

$$\frac{\Delta\rho}{\beta} = 1,3 \cdot 10^{-19} \Omega \cdot \text{cm}^3 \quad (26)$$

Ce résultat a été confirmé par les mesures directes de densités effectuées en MET :

$$\frac{\Delta\rho}{\beta} = 1,3 \pm 0,1 \cdot 10^{-19} \Omega \cdot \text{cm}^3 \quad (27)$$

### ❖ Effet de taille

D'après le tableau I, à basse température, lorsque l'influence des phonons devient négligeable, le libre parcours moyen  $\ell_{\text{Cu}}$  est plus grand que le micromètre ; à 10K par exemple, il est de 66 $\mu\text{m}$  et 1,32 $\mu\text{m}$  pour du cuivre avec des taux d'écroutissements de 60% et 99.98% respectivement. Si certaines dimensions de l'échantillon sont inférieures à  $\ell_{\text{Cu}}$  (cas des films minces ou des fils fins), le libre parcours moyen électronique est limité par la distance entre les bords de l'échantillon ; un effet de taille apparaît alors en apportant une composante supplémentaire dans la diffusion des électrons.

Ainsi, pour un fil de diamètre  $\delta$ , la résolution du modèle de Dingle<sup>9</sup> donne les expressions suivantes de la conductivité  $\sigma$  en fonction de la conductivité  $\sigma_{\text{bulk}}$  du même matériau massif :

$$\text{a) Pour } \delta < 0,46\ell, \quad \frac{\sigma}{\sigma_{\text{bulk}}} = \frac{\delta}{\ell} - \frac{3}{8} \left(\frac{\delta}{\ell}\right)^2 \left[\ln\left(\frac{\ell}{\delta}\right) + 1,059\right] \quad (28)$$

$$\text{b) Pour } \delta \in [0,46\ell; 3\ell], \quad \frac{\sigma}{\sigma_{\text{bulk}}} = \left[1 + \frac{\ell}{\delta}\right]^{-1} \quad (29)$$

$$\text{c) Pour } \delta \geq 3\ell, \quad \frac{\sigma}{\sigma_{\text{bulk}}} = 1 - \frac{3\ell}{4\delta} \quad (30)$$

On remarque que la relation 28 tend vers zéro lorsque le diamètre du fil devient infiniment mince ; ce qui se traduit par l'effet de taille par diffusion des électrons aux interfaces très proches. Alors que la relation 30 tend vers 1 lorsque le diamètre du fil devient très supérieur au libre parcours moyen électronique, on retrouve alors la conductivité du matériau massif. Il est intéressant de noter que l'on peut considérer, d'après les équations 28, 29 et 30 qu'un effet de taille se fait sentir tant que les zones conductrices sont plus petites que trois fois le libre parcours moyen électronique.

### II.9.2- Dispositif expérimental

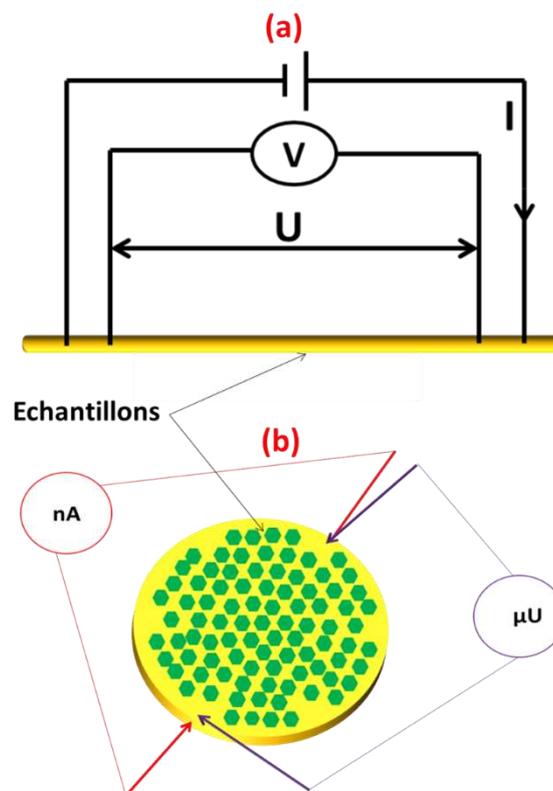
Les mesures de conductivité électrique longitudinale des conducteurs Cu/Nb ont été réalisées au laboratoire national des champs magnétiques intense (LNCMI) de Toulouse (mesures longitudinales) et au laboratoire Sciences et Ingénierie des Matériaux et Procédés (SIMAP) de Grenoble pour les mesures transverses. Ces essais sont effectués sur différents diamètres pour des échantillons obtenus après deux ( $N = 85^2$ ) et trois ( $N = 85^3$ ) cycles ADB.

<sup>9</sup> Le modèle de Dingle a été modifié et modélisé dans [12] ; les équations 28, 29 et 30 sont les résultats de cette modélisation.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

Toutes les mesures sont effectuées en utilisant la méthode dite des « quatre pointes » qui consiste à aligner quatre pointes sur l'échantillon à analyser : le courant est injecté aux extrémités à l'aide de deux pointes et les deux autres servent à la mesure de la tension. Un des avantages de cette technique réside dans la non-polarisation des électrodes (ou pointes) utilisées pour la mesure et donc, de s'affranchir des résistances utilisées pour les contacts (fils et pointes) ; la résistance totale est alors égale à celle du matériau étudié et la tension mesurée est directement proportionnelle au courant (généralement faible) imposé [13]. Les résultats peuvent être totalement différents suivant la technique (deux pointes ou quatre pointes) utilisée ; dans son manuscrit de thèse, Hermane MBITSI [14] rapporte des valeurs de résistances électriques obtenues dans l'axe de nanotubes de carbone de  $3,75\Omega$  et  $0,0056\Omega$  respectivement par les techniques de deux et quatre pointes. Un schéma de la technique des quatre pointes pour les mesures de conductivités électriques longitudinale et transverse est donné à la figure 2.15. Le rapport de la tension  $U$  mesurée et du courant  $I$  injecté, dans le cas d'une mesure par la technique des quatre points, donne directement la valeur de la résistance électrique  $R$  du matériau qui est, pour un fil de longueur  $L$  et de section  $S$ , reliée à la résistivité électrique par la relation :

$$U = RI \quad \text{et} \quad R = \rho \frac{L}{S} \quad (31)$$



**Figure 2.15 :** Schéma de la technique 4 pointes pour les mesures de conductivité électrique : (a) en configuration longitudinale (b) en configuration transverse.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

---

### II.9.3- Mesure de conductivité longitudinale

Les mesures de conductivité longitudinale (à 293K et 77K) sont réalisées sur les échantillons répertoriés dans les tableaux II.1 et II.2 en utilisant des multimètres de model 2400 fournis par Keithley. On injecte un courant de 100mA aux deux extrémités du fil de longueur 40cm ; la tension est alors mesurée entre les deux pointes d'injection du courant (cf figure 2.15a). L'estimation des erreurs de mesure est effectuée à partir de la relation 21 par la méthode logarithmique. Les valeurs mesurées comparées, à l'IACS du cuivre recuit, sont données dans l'annexe IIA. En effet, le cuivre, de par sa qualité de bon conducteur de l'électricité, a été pris comme référence pour les mesures de conductibilité par la commission électrotechnique internationale (1913). Sa résistivité, à l'état recuit, d'une valeur de **1,7241  $\mu\Omega$ . cm**, est donc utilisée comme étalon de cette mesure. Par définition, la conductibilité du cuivre recuit est égale à 100% IACS (International Annealed Copper Standard). Après calcul de la résistivité  $\rho$  pour chacun des diamètres, on a procédé au calcul de l'IACS à l'aide de la relation :

$$\text{IACS (\%)} = \frac{1,7241}{\rho (\mu\Omega.\text{cm})} \times 100 \quad (32)$$

### II.9.4 - Mesure de conductivité transverse

Les mesures de conductivité électrique transverse des conducteurs Cu/Nb-F ont été réalisées à température ambiante sur quatre échantillons : deux de diamètres 4,5mm et 2 mm à l'étage  $n = 85^2$  et deux de diamètres 4,5mm et 2 mm à l'étage  $n = 85^3$ . Les tests ont été effectués au laboratoire SIMAP de Grenoble en collaboration avec Fabien VOLPI. Pour garantir la fiabilité des mesures, la surface de l'échantillon à analyser doit être plane, non écaillée et le rapport diamètre/épaisseur doit être autour de 10 ( $d/e \approx 10$ ). Pour satisfaire à ces exigences, les échantillons sont découpés perpendiculairement à l'axe du fil sur des épaisseurs d'environ 1mm. Ils sont ensuite polis mécaniquement suivi d'une finition à l'alumine colloïdale neutre (OPAN) dont le but est d'enlever la couche écaillée induite par le polissage mécanique. Ce protocole de polissage, inspiré de celui utilisé pour la préparation d'échantillons pour la technique de diffraction des électrons rétrodiffusés, sera développé au chapitre suivant. Le rayon de courbure des pointes ne doit pas être trop faible afin de pouvoir garantir une bonne distribution des charges aux contacts. La pointe utilisée pour nos mesures a un rayon de courbure d'environ 10 $\mu\text{m}$  et cela a rendu difficile, pour ne pas dire impossible, son positionnement uniquement sur du cuivre lorsque les dimensions de certains canaux de cuivre sont inférieures au rayon de courbure de la pointe (voir tableau II.7). Les dimensions des échantillons testés et une photographie de l'appareil de mesure sont données au tableau II.6 et à la figure 2.16. Rappelons que ces essais sont réalisés pour pouvoir mieux modéliser le comportement électrique globale de ces composites même si les propriétés électriques transverses jouent un rôle négligeable par rapport aux propriétés longitudinales dans l'utilisation de ces fils pour la fabrication des bobines à champ magnétique pulsé intense. Notons que ces essais constituent une première sur les conducteurs composites Cu/Nb.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

Echantillon	$d_{Nb}$ ( $\mu m$ )	$d_{Cu-0}$ ( $\mu m$ )	$d_{Cu-1}$ ( $\mu m$ )	$d_{Cu-2}$ ( $\mu m$ )	$d_{Cu-3}$ ( $\mu m$ )	%Nb	%Cu	RA(%)
N=85 <sup>2</sup> /d= 4,5mm- e=340 $\mu m$	30	4,8	47	272	-	45	55	91
N=85 <sup>2</sup> /d= 2mm- e=218 $\mu m$	14	2,2	22	124	-	45	55	98
N=85 <sup>3</sup> /d= 4,5mm- e=320 $\mu m$	2,7	0,42	4,2	48	272	35	65	91
N=85 <sup>3</sup> /d= 2mm- e=190 $\mu m$	1,22	0,2	1,93	22	124	35	65	98

Tableau II. 7 : Dimensions et taux d'écroissages des échantillons pour les mesures de conductivité transverse.

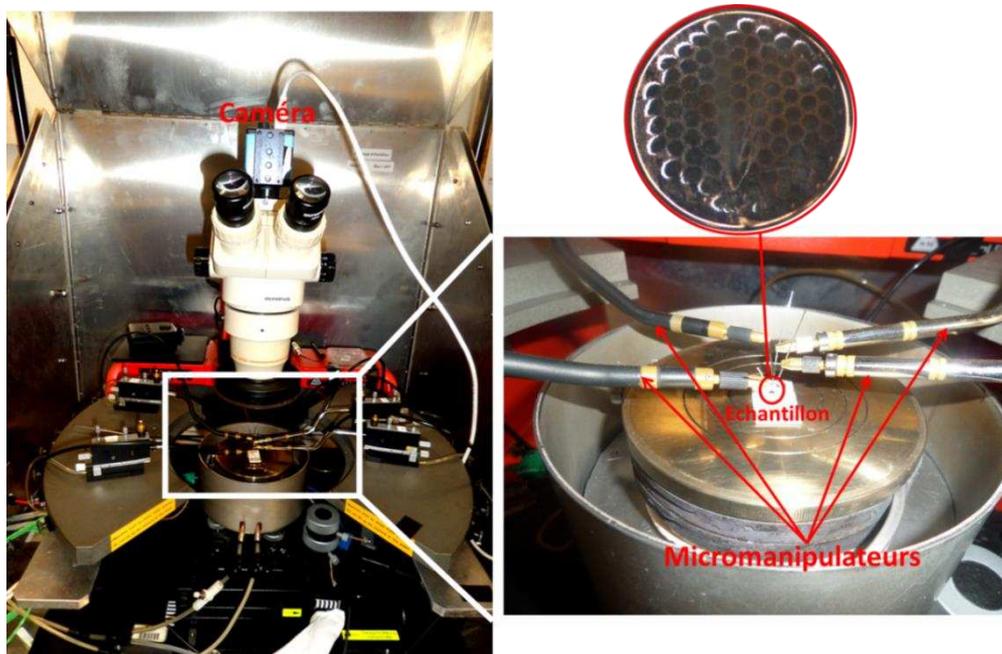


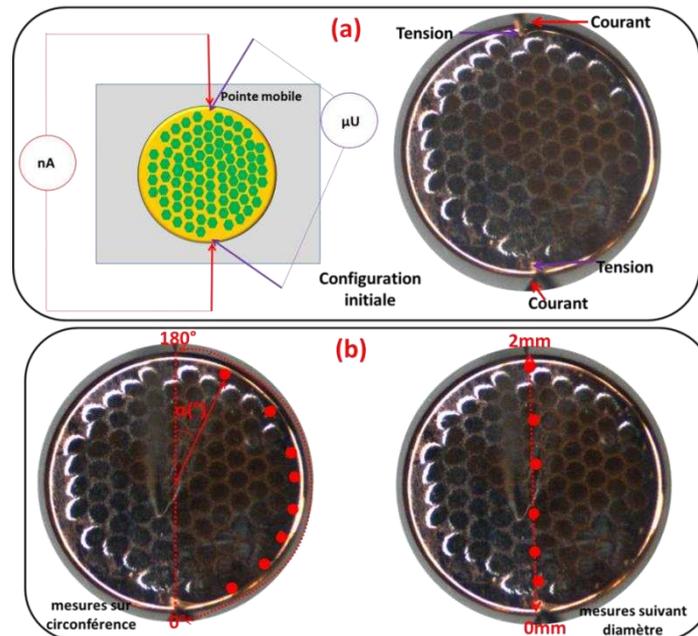
Figure 2.16 : Appareil utilisé pour les mesures de conductivité transverse.

### II.9.4.1- Principe de la mesure

Les mesures sont effectuées par la technique des quatre points exposée au début de cette section. Le schéma de la figure 2.17a illustre la configuration pour un point de mesure. Les pointes pour injecter le courant sont positionnées de part et d'autre de la circonférence perpendiculairement à l'épaisseur de l'échantillon. Les deux autres pointes, dont une mobile, pour la mesure de la tension sont placées au niveau de la surface. Un balayage de courant est effectué de -100nA à 100nA avec un pas de 5nA et un logiciel enregistre simultanément les valeurs du courant injecté et de la tension. A la fin d'une mesure, la courbe  $U = f(I)$  qui doit être une droite (dont la pente donne la résistance électrique) apparaît sur l'écran de l'ordinateur de pilotage ; par simple lecture, on peut donc voir si la mesure a été ou non perturbée. On déplace ensuite la pointe mobile sur un autre point de mesure et ainsi de suite. Pour chaque configuration, des photographies de l'échantillon sont prises pour pouvoir, par la suite, repérer les points de mesure (dans la mesure du possible). Pour chacun des échantillons,

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

des mesures suivant la circonférence et suivant le diamètre ont été effectuées (voir figure 2.17b).



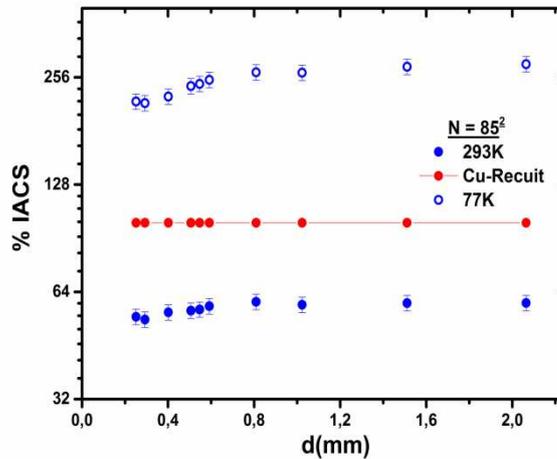
**Figure 2.17 :** Configurations pour les mesures de conductivité transverse : (a) schéma et photo de la configuration initiale ; (b) Configurations des points de mesures (points rouges) suivant la circonférence et suivant le diamètre.

### II.10- Résultats des mesures longitudinales

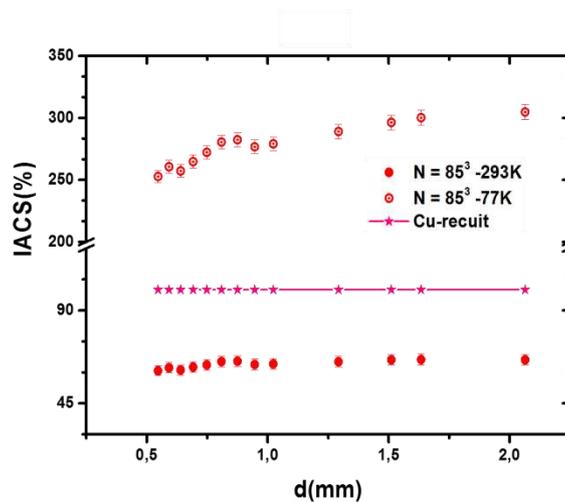
Les résultats à température ambiante (293K) et à la température de l'azote liquide (77K) sont obtenus sur deux gammes de diamètres pour des échantillons prélevés aux étages  $n = 85^2$  (de 2mm à 0,25mm) et  $n = 85^3$  (de 2mm à 0,54mm), c'est-à-dire obtenus après deux et trois cycles ADB. L'ensemble des résultats est présenté à la figure 2.18 (étage  $n = 85^2$ ) et à la figure 2.19 (étage  $n = 85^3$ ) en pourcentage d'IACS en fonction des diamètres ; la courbe représentant l'IACS à température ambiante du cuivre recuit est prise comme référence sans tenir compte d'éventuels effets de taille ni d'érouissage. Les essais à 77K ont mis en évidence une augmentation d'environ 200% de l'IACS par rapport aux essais à 293K ; cette augmentation est directement liée à la contribution de l'effet des phonons. On observe en revanche une baisse globale de l'IACS avec la réduction des diamètres ; la chute étant plus brutale pour les petits diamètres ( $d < 1\text{mm}$ ) : pour l'échantillon  $N = 85^2$  (entre  $d = 0,81\text{mm}$  et  $d = 0,25\text{mm}$ ), la variation relative est d'environ -9% pour les essais à 293K contre -17% pour ceux à 77K. Pour l'échantillon  $N = 85^3$  (entre  $d = 0,81\text{mm}$  et  $d = 0,54\text{mm}$ ), la variation relative est de -7% pour les essais à 293K contre -10% pour ceux à 77K. En se basant sur les résultats de L. Thilly dont une partie est répertoriée dans le tableau II.5, cette diminution de la conductivité électrique pourrait être attribuée à la conjugaison d'une augmentation du taux d'érouissage et d'un début d'effet de taille pour l'échantillon  $N = 85^2$ , et, principalement un effet de taille pour l'échantillon  $N = 85^3$ . En effet, pour les diamètres les plus fins ( $d \approx 0,3\text{mm}$ ), l'effet de taille peut être prononcé, le libre parcours moyen électronique étant globalement supérieur aux dimensions des canaux de Cu-0 de l'étage  $n = 85^2$ . Quant à l'étage

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

$n = 85^3$ , tous les canaux de Cu-0 ( $d \leq 2.064\text{mm}$ ) et certains du Cu-1 sont nettement inférieurs au libre parcours moyen électronique.



**Figure 2.18:** Evolution des propriétés électriques à 293K et 77K des conducteurs Cu/Nb-F en fonction du diamètre des fils de l'étage  $85^2$ .



**Figure 2.19:** Evolution des propriétés électriques à 293K et 77K des conducteurs Cu/Nb-F en fonction du diamètre des fils de l'étage  $85^3$ .

Sur la figure 2.20, les IACS à 77K des échantillons pour les deux étages ( $n = 85^2$  et  $n = 85^3$ ) sont présentés en vue d'une comparaison des propriétés électriques. Pour les diamètres supérieurs à environ 1 mm, l'échantillon  $N = 85^3$  présente des pourcentages IACS plus élevés que l'échantillon  $N = 85^2$ , ce qui se traduit par une meilleure conductivité électrique. En effet, l'échantillon  $N = 85^3$  contient un plus fort pourcentage volumique de cuivre que l'échantillon  $N = 85^2$  (65% contre 55%). Pour cette gamme de diamètres ( $d \geq 1\text{mm}$ ), la proportion de cuivre de  $85^3$  semble compenser l'effet (ou le début d'effet) de taille attendue. Cependant, le gain de conductivité dû à la proportion de cuivre plus élevée des  $85^3$  passe d'environ 10%

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

pour les diamètres supérieurs à 0,81 mm à moins de 2% pour les diamètres les plus fins. Etant donné que tous les canaux Cu-0 et certains Cu-1 de l'échantillon N = 85<sup>3</sup> ont des dimensions nettement inférieures au libre parcours moyen électronique ( $\ell = 264\text{nm}$  à 77K), cela peut s'expliquer par un effet de taille assez prononcé se traduisant par une baisse de la conductivité électrique.

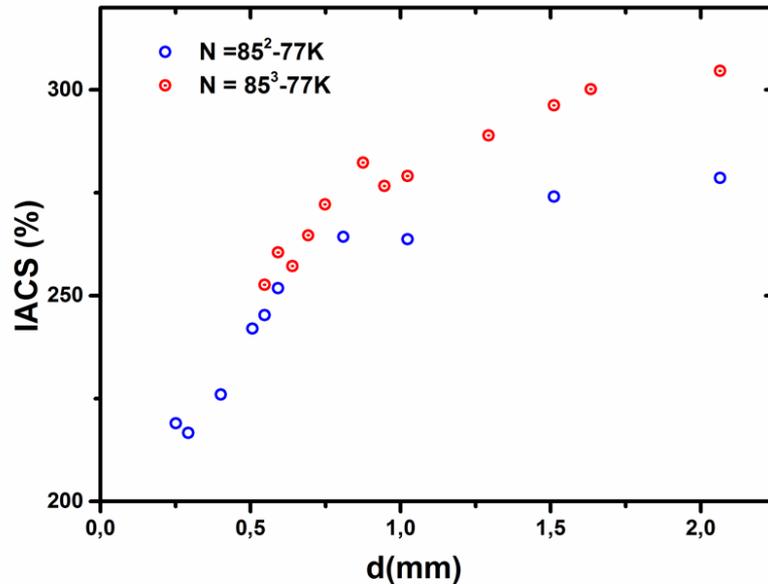


Figure 2.20 : Propriétés électriques à 77K des conducteurs composites Cu/Nb-F.

Pour rendre compte de l'effet de taille sur les conducteurs Cu/Nb filamenteux aux deux étages, on va s'intéresser à la conductivité totale du fil composite. Dans le cas de conducteurs en parallèle, ce qui a été vérifié par modélisation de la conductivité longitudinale des conducteurs Cu/Nb [15], la conductivité électrique longitudinale est donnée par la relation :

$$\sigma_{\text{CuNb}} = \sum_i X_i \sigma_i = \sum_j X_j \sigma_{\text{Cu}-j} + X_{\text{Nb}} \sigma_{\text{Nb}} \quad (33)$$

$i = (1,2)$  pour les deux phases et  $j$  est l'étage de cuivre considéré ; il varie ici de 0 à 2 et de 0 à 3 respectivement pour le 85<sup>2</sup> et le 85<sup>3</sup>.  $X$  est la fraction volumique.

En négligeant la contribution du niobium, très mauvais conducteur par rapport au cuivre à 77K<sup>10</sup>, dans la relation donnant la conductivité totale, on a :

$$\sigma_{\text{CuNb}} = \sum_j X_j \sigma_{\text{Cu}-j} \quad (34)$$

<sup>10</sup> Cette approximation entraîne une erreur sur la conductivité inférieure à 10% à la température ambiante.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

Ceci revient à ramener à 100% la fraction volumique du cuivre dans le calcul de la conductivité expérimentale :

$$\sigma(\text{CuNb} - 100\% \text{Cu})_{85^2} = \frac{\sigma(\text{exp})}{0,55} \quad (35)$$

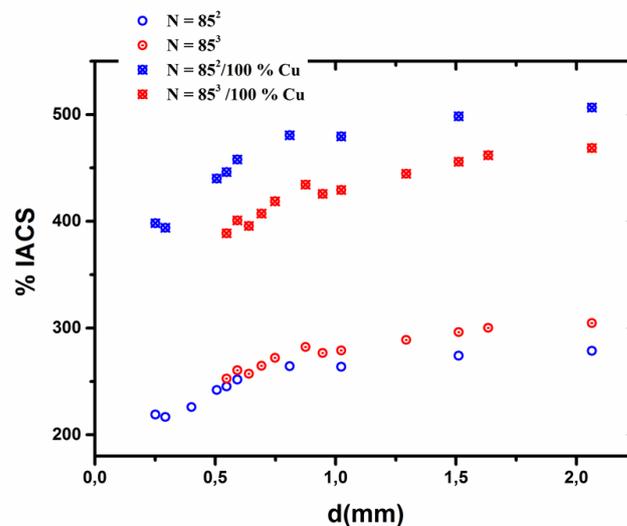
$$\sigma(\text{CuNb} - 100\% \text{Cu})_{85^3} = \frac{\sigma(\text{exp})}{0,65} \quad (36)$$

D'où les expressions de la résistivité aux deux étages :

$$\rho(\text{CuNb} - 100\% \text{Cu})_{85^2} = \rho(\text{exp}) \times 0,55 \quad (37)$$

$$\rho(\text{CuNb} - 100\% \text{Cu})_{85^3} = \rho(\text{exp}) \times 0,65 \quad (38)$$

Sur la figure 2.21, on a représenté les courbes correspondant aux données expérimentales brutes et celles où l'on a négligé la contribution du niobium dans l'expression de la conductivité électrique. On remarque que les IACS de l'échantillon de l'étage  $n = 85^3$  ramené à 100% de cuivre sont inférieurs à ceux de  $N = 85^2$  ramené à 100% de cuivre (diminution de la conductivité pour l'échantillon  $N = 85^3$  ramené à 100%Cu). En analysant les courbes par paire : ( $N = 85^2$ ,  $N = 85^3$ ) expérimentales et ( $N = 85^2$ ,  $N = 85^3$ ) ramenées à 100%, on constate une inversion de tendance. Sur le premier couple, on a une diminution progressive de la variation relative de l'IACS pour les petits diamètres : environ 10% pour les grands et 2% pour les plus fins. Pour le second couple, la variation relative est d'environ 7% pour les grands diamètres contre 11% pour les petits. Ces résultats confirment qu'il y a bien un effet de taille très prononcé à l'étage  $n = 85^3$  et seulement un début d'effet de taille pour l'étage  $n = 85^2$ .



**Figure 2.21 :** Comparaison des propriétés électriques à 77K des Cu/Nb-F :  $N = 85^2$ ,  $N = 85^3$  (données expérimentales) et  $N = 85^2$ ,  $N = 85^3$  (ramenés à 100% Cu).

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

---

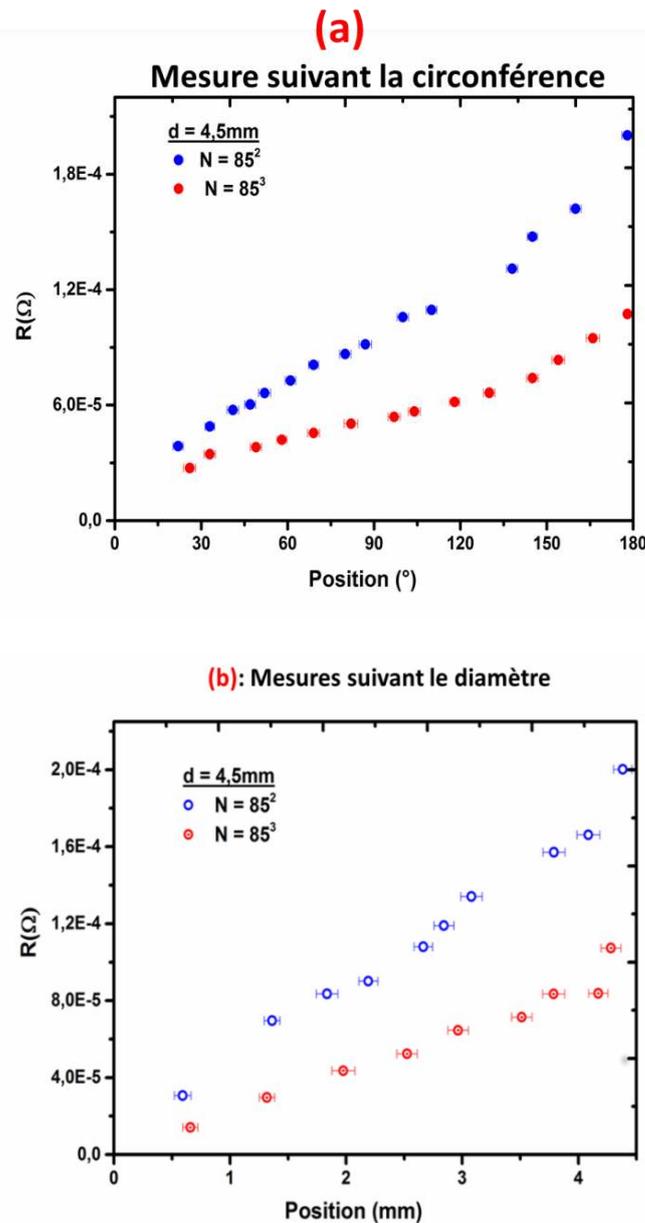
### II.11- Résultats des mesures transverses

Les résultats des mesures de conductivité (ou résistance) électrique transversale des composites Cu/Nb-F sont présentés comme suit :

- ❖ Les mesures suivant la circonférence sont données sous forme de courbes  $R = f(\alpha)$  ;  $R$  étant la résistance électrique en ohm ( $\Omega$ ) et  $\alpha$ , l'angle en degré ( $^\circ$ ) (voir figure 2.20b  $\rightarrow$  mesures sur circonférence). Notons que pour ces mesures, tous les contacts sont effectués sur du cuivre car les dimensions des canaux de cuivre extérieurs, pour tous les échantillons testés, sont supérieures au rayon de courbure des pointes.
- ❖ Les mesures suivant le diamètre sont données sous forme de courbes  $R = f(x)$  ;  $R$  étant la résistance électrique en ohm ( $\Omega$ ) et  $x$  représente la distance entre les points de mesure de la tension (voir figure 2.20b  $\rightarrow$  mesures suivant diamètre). Dans le cas de ces mesures, la pointe mobile n'a pas toujours été positionnée sur du cuivre en raison soit de la qualité des images (due à la résolution du microscope), soit des dimensions des canaux de cuivre qui sont inférieures au rayon de courbure de la pointe.

La détermination des angles  $\alpha$  et des distances  $x$  est réalisée à l'aide du logiciel de traitement d'image GIMP 2. Les erreurs sur les mesures de la résistance, très faibles, sont confondues avec les points de mesure. Les erreurs sur les positions autour de la circonférence n'excèdent pas les 5% (canaux de cuivre plus grand que le rayon de courbure de la pointe) ; cependant celles sur les positions suivant le diamètre sont estimées à environ 10% pour les raisons susmentionnées.

Les résultats obtenus sur les échantillons de diamètre 4,5mm des étages  $n = 85^2$  et  $n = 85^3$  sont présentés à la figure 2.22 pour les mesures suivant la circonférence et suivant le diamètre. L'échantillon  $N = 85^2$  (résistance moyenne de  $9 \times 10^{-5} \Omega$ ) est plus résistif que celui de l'étage  $N = 85^3$  (résistance moyenne de  $6 \times 10^{-5} \Omega$ ). Pour un même taux d'érouissage, la microstructure de l'échantillon  $N = 85^3$  étant plus fine que celle de l'échantillon  $N = 85^2$  (voir tableau II.6), on s'attendrait à une augmentation de la résistance électrique. Cependant, les proportions de cuivre ne sont pas identiques dans les deux échantillons (65% pour  $N = 85^3$  contre 55% pour  $N = 85^2$ ). Comme pour les résultats en conductivité longitudinale, il apparaît que pour ce diamètre, le surplus de cuivre l'emporte sur un éventuel effet (ou début d'effet) de taille. Notons que les valeurs de résistance électrique pour les mesures suivant le diamètre sont globalement plus élevées que celles suivant la circonférence. Ceci pourrait s'expliquer par le fait que les mesures suivant le diamètre sont effectuées dans des zones composites (Cu-Nb). Le niobium peut donc influencer les transferts de charge entre les contacts et la pointe et aussi par le fait que ces canaux de cuivre sont plus fins et n'ont pas la même histoire que les canaux de cuivre extérieur (cuivre périphérique entourant la zone composite : Cu-2 et Cu-3 respectivement pour  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ).

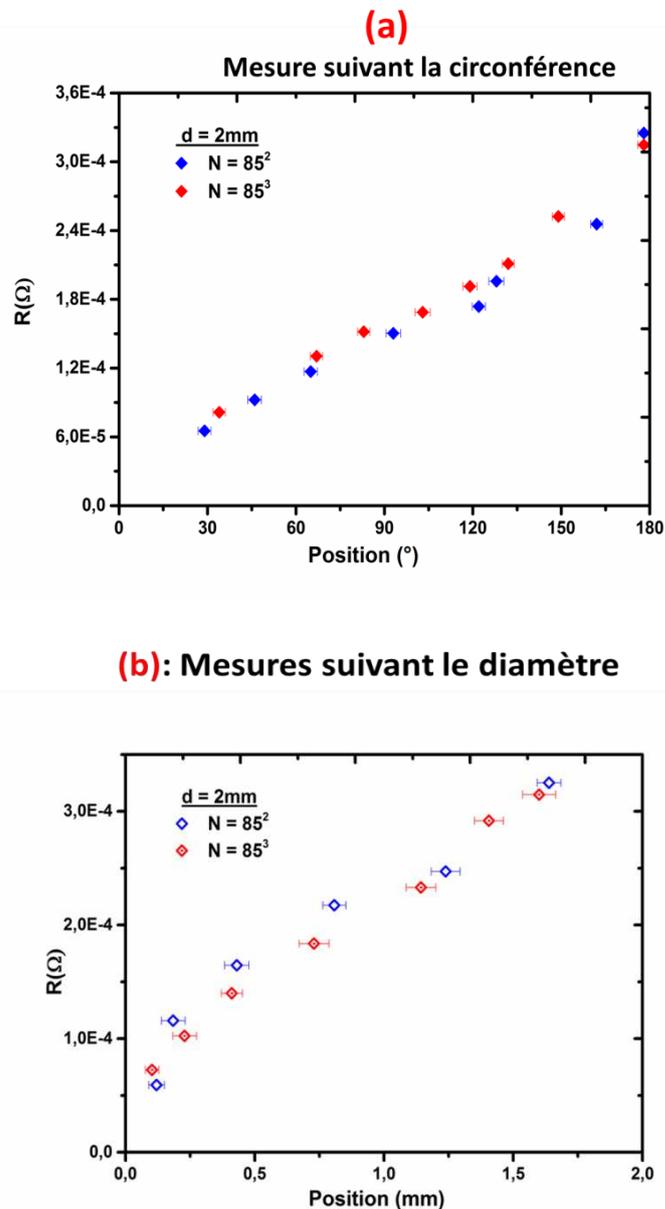


**Figure 2.22 :** Courbes de résistance électrique transversale des Cu/Nb-F-  $d = 4,5\text{mm}$  –  $e = 340\mu\text{m}$  ( $N = 85^2$ ) et  $e = 320\mu\text{m}$  ( $N = 85^3$ ) en fonction : **(a)** de l'angle (en degré) entre le point de mesure et l'axe de la surface **(b)** et de la position (en mm) du point de mesure le long du diamètre.

La figure 2.23 présente les résultats pour les échantillons de diamètre 2mm ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ). La résistance électrique mesurée suivant le diamètre est, pour les mêmes raisons mentionnées au paragraphe précédent, plus élevée que celle obtenue sur la circonférence. Pour les deux types de mesures (circonférence et diamètre) les deux courbes ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ) sont quasiment superposées avec une légère augmentation de la résistance pour  $N = 85^3$  (mesure suivant la circonférence). Or nous savons que l'échantillon  $N = 85^3$  a une plus forte fraction volumique de cuivre (65%) que l'échantillon  $N = 85^2$  (55%). Etant donné que les taux d'érouissages sont identiques pour les deux échantillons, l'augmentation de la résistance de l'échantillon  $N = 85^3$  pourrait donc être due à un début d'effet de taille. La contribution à la

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

conductivité que devrait apporter les 10% de cuivre en plus de l'échantillon  $N = 85^3$  serait alors compensée par l'affinement de la microstructure.



**Figure 2.23 :** Courbes de résistance électrique transversale des Cu/Nb-F-  $d = 2\text{mm}$  –  $e = 218\mu\text{m}$  ( $N = 85^2$ ) et  $e = 190\mu\text{m}$  ( $N = 85^3$ ) en fonction : (a) de l'angle (en degré) entre le point de mesure et l'axe de la surface (b) et de la position (en mm) du point de mesure le long du diamètre.

Pour rendre compte de l'effet (ou du début effet) de taille de l'échantillon  $N = 85^3$  de diamètre 2mm, la figure 2.24 présente les résultats des mesures suivant la circonférence pour les quatre échantillons de diamètres et/ou de microstructures différents : deux échantillons de diamètre 4,5mm obtenu après deux et trois cycles ADB ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ) et les deux autres, de diamètre 2mm obtenu après deux et trois cycles ADB ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ). Ainsi,

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

pour les échantillons de diamètre 4,5mm, l'affinement de la microstructure à l'étage  $n = 85^3$  ne semble pas avoir d'influence sur la conductivité électrique, les dimensions de tous les canaux de cuivre étant largement supérieures au libre parcours moyen électronique. En revanche, pour les échantillons de diamètre 2mm, il semble y avoir une combinaison de deux effets : le taux d'écroutissage et l'affinement de la microstructure seraient responsables de la diminution de la conductivité électrique par rapport aux échantillons de diamètre 4,5mm. La variation relative de la conductivité entre les échantillons de 4mm et 2mm étant plus élevée pour les échantillons de l'étage  $n = 85^3$  (de microstructure plus fine), on peut conclure que l'effet de taille est plus prononcé sur l'échantillon de diamètre 2mm de l'étage  $n = 85^3$ .

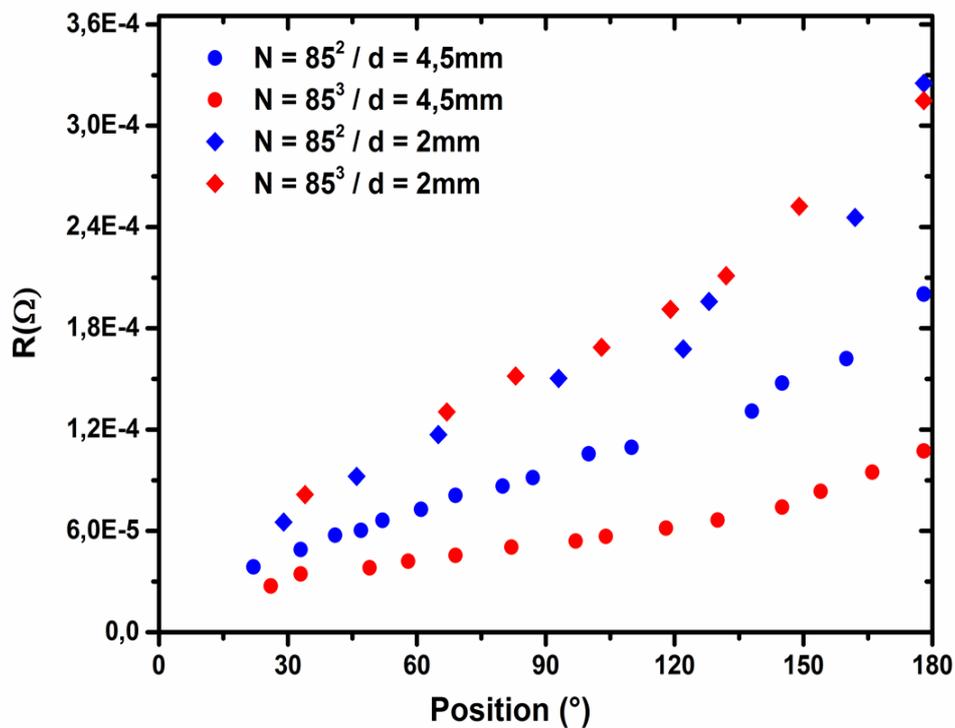


Figure 2.24 : Comparaison des propriétés électriques transverses en fonction du taux d'écroutissage et de l'affinement de la microstructure des conducteurs composites Cu/Nb-F.

### II.12- Bilan

**Les résultats présentés dans ce chapitre nous ont permis de mettre en évidence**

#### **1- A partir des essais de traction uni-axiale à 293K et 77K :**

- ❖ Un début d'effet de taille pour les échantillons de l'étage  $n = 85^2$  lorsque certains canaux de cuivre et/ou les filaments de niobium ont des dimensions submicrométriques. Cet effet de taille se manifeste par une augmentation progressive des valeurs de l'UTS.
- ❖ Un effet de taille très prononcé pour les échantillons de l'étage  $n = 85^3$  à partir de  $d = 1,5\text{mm}$  où tous les canaux de Cu-0 et certains du Cu-1 ont des dimensions submicrométriques, voire nanométriques, se traduisant par une augmentation brutale de l'UTS.
- ❖ Que le critère  $E/3$  permet une description plus complète de la transition élasto-plastique des conducteurs composites Cu/Nb-F. La limite d'élasticité obtenue par ce critère suit le même comportement que l'UTS.

#### **2- A partir des mesures de conductivité électrique à 293K et 77K**

- ❖ La conductivité longitudinale suit les résultats antérieurs :
  - diminution de la conductivité électrique due à un effet de taille et une augmentation du taux d'écroissage.
  - IACS à 77K vaut environ 200% de l'IACS du cuivre recuit.
- ❖ Pour les premiers essais de mesure de conductivité transverse :
  - différence entre circonférence et diamètre : diminution de la conductivité dans les zones composites (mesures suivant le diamètre) par rapport à celle mesurée sur le cuivre extérieur (mesure suivant la circonférence)
  - effets d'écroissage et de taille : diminution de la conductivité avec l'affinement de la microstructure.

## Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F

---

### Références

- [1] G.J. Fan et al., «Uniaxial tensile plastic deformation and grain growth of bulk nanocrystalline alloys,» *Acta Materialia*, vol. 54, p. 4781–4792, 2006.
- [2] Christophe de Sansal, Rapport thèse, «Plasticité et effet de taille dans les polycristaux à grains micrométriques : simulations mésoscopiques et modélisation,» École Centrale des Arts et Manufactures, Paris, 2007.
- [3] Thiebaud RICHETON, Rapport de thèse, «Dynamique et complexité de la déformation plastique : étude par émission acoustique,» Institut National Polytechnique de Grenoble, Grenoble, 2006.
- [4] Michel Colombié, *Matériaux Métalliques*, Paris: Dunod, 2008.
- [5] Daniel GORAN, Rapport de thèse, «Hétérogénéité de la déformation plastique des monocristaux de nickel déformés à froid par ECAE,» Université Paul Verlaine de Metz, METZ, 2007.
- [6] Jean-Baptiste DUBOIS, Rapport de thèse, «Conducteurs nanocomposites métalliques élaborés par déformation plastique sévère : formation et stabilité thermo-mécanique des nanostructures, propriétés induites,» Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées de l'université de Poitiers, Poitiers, 2010.
- [7] Amit Misra and Ludovic Thilly, «Structural metals at extremes,» *M R S Bulletin*, vol. 35, n° 112, 2010.
- [8] L. Thilly et al, «A new criterion for elasto-plastic transition in nanomaterials: Application to size and composite effects on Cu–Nb nanocomposite wires,» *Acta Materialia*, vol. 57, p. 3157–3169, 2009.
- [9] B. Viguier, «Plasticité : rappels de base et aspects microscopiques,» chez *PlastOx 2007*, Argelès-sur-Mer, 2007.
- [10] Gaël DAVEAU, Rapport de thèse, «Interaction dislocations – joints de grains en déformation plastique monotone : étude expérimentale et modélisations numériques,» École Centrale Paris, Paris, 2012.
- [11] E. Ma et al, «Tensile properties of in situ consolidated nanocrystalline Cu,» *Acta Materialia*, vol. 53, p. 1521–1533, 2005.
- [12] Ludovic Thilly, Rapport de thèse, «Exploration théorique et expérimentale de fils « nanocomposites continus » présentant des propriétés extrêmes de conductivité électrique et de limite élastique. Application future : coilin 100 T,» Institut National de Sciences Appliquées de

## **Chapitre II : : Caractérisation des propriétés mécaniques et électriques des Cu/Nb-F**

---

Toulouse, Toulouse, 2000.

- [13] David LALONDE, «Caractérisation électrique et thermique de matériaux en composite de carbone utilisés en aéronautique dans le cadre d'études de solutions de retour de courant.,» Ecole Polytechnique de Montréal, Montréal, 2011.
- [14] Hermane MBITSI, Rapport de thèse, «Synthèse de nanotubes de carbone pour l'obtention de vias d'interconnexions électriques et de drains thermiques,» Université d'Orléans, 2010.
- [15] Tang GU, Rapport de thèse, «Modélisation des propriétés mécaniques et électriques de composites Cu/Nb,» Mines, Paris, 2017.

**CHAPITRE III : CARACTERISATION  
MICROSTRUCTURALE DES CONDUCTEURS  
COMPOSITES CUIVRE/NIOBIUM  
FILAMENTAIRES (Cu/Nb-F)**

# Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

---

## Table des matières

<b>Chapitre III : caractérisation microstructurale des composites cuivre/niobium filamentaires (Cu/Nb-F) ..</b>	<b>79</b>
<b>III.1- Introduction .....</b>	<b>79</b>
<b>III.2- Caractérisations microstructurales.....</b>	<b>79</b>
III.3.1- Orientation cristalline.....	80
III.3.2- Analyse quantitative de texture cristallographique .....	81
<b>III.4- Etude de la texture globale des Cu/Nb-F par diffraction des rayons X.....</b>	<b>82</b>
III.4.1- Obtention des figures de pôles .....	82
III.4.2- Détermination de la FDOC .....	84
III.4.3- Résultats de l'échantillon N = 85 <sup>2</sup> .....	85
III.4.4- Résultats de l'échantillon N = 85 <sup>3</sup> .....	88
<b>III.5- Etude de la texture locale par Microscopie électronique à balayage.....</b>	<b>90</b>
III.5.1- Les électrons rétrodiffusés.....	91
III.5.2- Principe de la technique EBSD .....	92
III.5.3- Préparation des échantillons pour analyse EBSD.....	93
III.5.3.1- Protocole de préparation des conducteurs Cu/Nb-F .....	94
III.5.3.2- Contrôle de la planéité et de l'écrouissage des surfaces .....	96
III.5.4- Acquisition des diagrammes de diffraction EBSD .....	98
<b>III.5.5 – Présentation des résultats.....</b>	<b>101</b>
III.5.5.1- Résultats pour l'échantillon N = 85 <sup>1</sup> .....	101
III.5.5.2- Résultats pour l'échantillon N = 85 <sup>2</sup> .....	102
III.5.5.3- Résultats pour l'échantillon N = 85 <sup>3</sup> .....	106
III.5.5.4- Résumé des résultats EBSD .....	110
<b>III.6- Comparaison DRX/EBSD .....</b>	<b>111</b>
<b>III.7 – Bilan.....</b>	<b>112</b>
<b>Références.....</b>	<b>113</b>

### **Chapitre III : caractérisation microstructurale des composites cuivre/niobium filamentaires (Cu/Nb-F)**

#### **III.1- Introduction**

D'une manière générale, les techniques de mise en forme des matériaux induisent des modifications importantes de leur microstructure. Parmi ces modifications, celles concernant les cristallites (ou grains) constituant le matériau final jouent un rôle primordial au niveau de leurs propriétés macroscopiques. Par exemple, une modification de la forme, de la taille et/ou de l'orientation des grains, peut transformer des propriétés macroscopiques isotropes en anisotropes. Ainsi, la prise en compte de la géométrie des cristallites peut devenir, et c'est souvent le cas, prépondérante dans l'étude de la microstructure des matériaux cristallins. Si la distribution des cristallites n'est pas aléatoire au sein du matériau, c'est-à-dire qu'il existe une ou des orientations préférentielles de ces dernières, on dira que ce matériau est doté de texture cristallographique. Les précédentes études sur les composites Cu/Nb, comme on l'a vu aux chapitres I, ont mis en évidence une forte texture cristallographique dans les deux phases. Ces études sur la texture ont été réalisées essentiellement par la diffraction de rayons X qui donne une distribution moyenne de la texture globale dans les deux phases. Cependant, de par la technique de fabrication, la matrice de cuivre peut, à elle seule, être considérée comme étant multi-phases puisque n'ayant pas le même historique de fabrication, les canaux de cuivre pour un étage donné n'ont pas les mêmes caractéristiques. Une étude de la texture locale est d'une grande importance dans la compréhension et l'interprétation des propriétés exceptionnelles des conducteurs micro-et-nano-composites cuivre/niobium. Ce chapitre sera donc consacré exclusivement à la caractérisation de la microstructure des Cu/Nb-F à une échelle macroscopique par la technique de diffraction des rayons X et à une échelle locale grâce à la diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD).

#### **III.2- Caractérisations microstructurales**

La caractérisation de la microstructure d'un matériau cristallin peut être avantageusement complétée par l'utilisation des techniques de diffraction. Toutes ces techniques se basent sur le même principe : on envoie une sonde sur l'échantillon à analyser et après interaction de celle-ci avec l'échantillon on procède à l'analyse de la réponse obtenue. En physique de la matière condensée, les sondes utilisées pour la caractérisation des matériaux peuvent être de différentes natures : électromagnétiques, électriques, magnétiques, mécaniques, pour ne citer que celles-là. Les plus couramment utilisées sont associées aux rayonnements de nature électromagnétique (photons, électrons).

La diffraction des ondes (électromagnétiques) se base sur la notion d'interférence. En effet, après interaction avec l'échantillon, un rayonnement est détecté lorsqu'il y a interférence constructive et on dit que la diffusion est élastique. Dans le cas d'un cristal, compte tenu de la périodicité des éléments diffusants, la diffusion élastique est intense dans des directions discrètes : c'est le phénomène de diffraction. Il y a diffraction lorsque tous les nœuds du réseau cristallin diffusent un rayonnement en phase dans une direction donnée : c'est la condition de diffraction et cette condition est définie par la loi de Bragg :

# Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

$$n\lambda = 2d_{hkl}\sin\theta$$

Où  $\lambda$  est la longueur d'onde de la sonde ;  $d_{hkl}$  est la distance inter réticulaire ;  $\theta$  est l'angle de diffraction et  $n$  est l'ordre de diffraction.

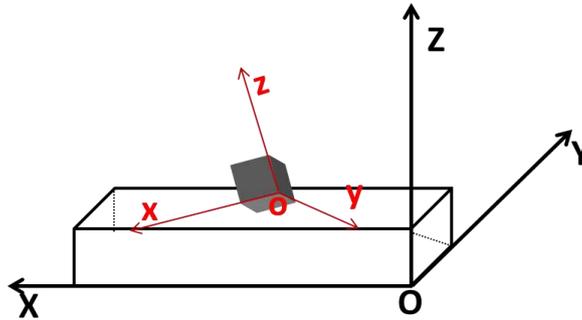
## III.3- Caractérisation de la texture globale par diffraction des rayons X.

Lorsqu'un matériau est doté d'une texture cristallographique, il y aura une modification des intensités des pics de diffraction par rapport à celles du matériau non texturé. La diffraction des rayons X permet alors de caractériser quantitativement la distribution moyenne des orientations des cristallites constituant le matériau massif. Caractériser quantitativement une texture cristallographique revient à déterminer la fonction de distribution des orientations cristallines (FDOC). Il existe cependant des représentations qualitatives de la texture cristallographique ; les plus courantes étant les figures de pôles directes et inverses.

### III.3.1- Orientation cristalline

Pour définir l'orientation  $g$  d'un cristal (ou du réseau cristallin) par rapport à l'échantillon, on définit les repères  $K_C$  (repère cristallin) lié à chaque cristallite et  $K_E$  liée à l'échantillon (voir figure 3.1). L'orientation du cristal est alors définie par la rotation  $g$  (à une translation près) qui amène en coïncidence le repère  $K_C$  avec le repère  $K_E$ , soit :

$$K_C = gK_E \quad (1)$$



**Figure 3. 1:** Définition des repères liés à l'échantillon et à la cristallite pour une maille cubique.  $K_C$  ( $xyz$ ) : repère lié à la cristallite et  $K_E$  ( $OXYZ$ ) : repère lié à l'échantillon.

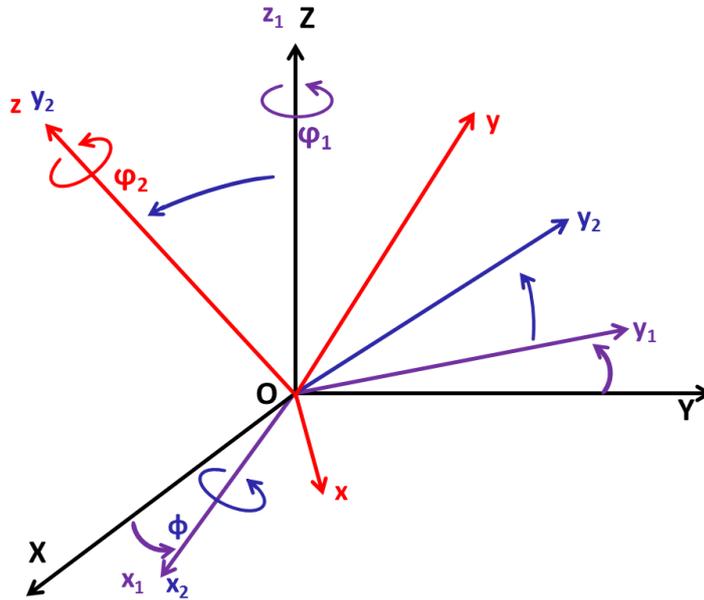
Il existe plusieurs méthodes de paramétrage de la rotation  $g$  qui amènent les deux repères en coïncidence. Par exemple au moyen d'une matrice de transformation des coordonnées, d'un axe et d'un angle de rotation, du vecteur de Rodrigues, des indices de Miller des plans ou directions cristallographiques dans deux plans ou directions de l'échantillon, des angles d'Euler...

Nous utilisons ici l'espace d'Euler défini par les angles  $\varphi_1$ ,  $\phi$  et  $\varphi_2$  (les angles d'Euler) pour la description de  $g$ .

La définition de l'orientation cristalline dans l'espace d'Euler consiste en trois rotations successives des angles  $\varphi_1$ ,  $\phi$  et  $\varphi_2$  (voir figure 3.2) :

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

- Une première rotation  $\varphi_1$  autour de l'axe Z transforme le repère  $K_E(OXYZ)$  en  $(Ox_1y_1z_1)$
- Une deuxième rotation  $\phi$  autour de  $x_1$  transforme le repère  $(Ox_1y_1z_1)$  en  $(Ox_2y_2z_2)$
- Une dernière rotation  $\varphi_2$  autour de  $z_2$  amène les deux repères en coïncidence.



**Figure 3. 2 :** Définition des angles d'Euler permettant d'amener en coïncidence le repère lié à la cristallite à celui lié à l'échantillon.

Si  $g_1$ ,  $g_2$  et  $g_3$  sont les rotations qui permettent de passer du repère lié à l'échantillon au repère lié à la cristallite, la relation 1 devient :

$$\mathbf{K}_C = \mathbf{g}_3 \cdot \mathbf{g}_2 \cdot \mathbf{g}_1 \mathbf{K}_E \quad (2)$$

Avec :

$$g_3 = \begin{pmatrix} \cos \varphi_1 & \sin \varphi_1 & 0 \\ -\sin \varphi_1 & \cos \varphi_1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}; g_2 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \phi & \sin \phi \\ 0 & -\sin \phi & \cos \phi \end{pmatrix}; g_1 = \begin{pmatrix} \cos \varphi_2 & \sin \varphi_2 & 0 \\ -\sin \varphi_2 & \cos \varphi_2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

avec  $0 \leq \varphi_1 \leq 2\pi$ ,  $0 \leq \phi \leq \pi$  et  $0 \leq \varphi_2 \leq 2\pi$

### III.3.2- Analyse quantitative de texture cristallographique

Les analyses quantitatives de texture se font à l'aide de la fonction de distribution des orientations cristallines (FDOC). La FDOC permet une description statistique de l'ensemble des orientations cristallographiques et son calcul se fait par l'acquisition de figures de pôles expérimentales selon la méthode décrite à la section III.4 (pour un matériau cubique, il faut au moins trois figures de pôle pour le calcul fiable de la FDOC).

Dans un échantillon où les cristallites occupent un volume total  $V$ , la FDOC  $f(g)$  est définie par la fraction de volume  $dV(g)$  des cristallites ayant une orientation comprise entre  $g$  et  $g+dg$ , soit :

$$\frac{dV(g)}{V} = \mathbf{K} \cdot f(g) \cdot dg \quad (3)$$

# Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

En intégrant sur tout le volume V, on a :

$$K \int f(g) d(g) = \frac{1}{V} \int dV = K \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} f(\varphi_1 \phi \varphi_2) \cdot \sin \phi \cdot d\varphi_1 d\phi d\varphi_2$$

Pour une distribution aléatoire des orientations cristallographique, f(g) est constante quelle que soit l'orientation g considérée ; en prenant cette constante égale à 1, on trouve  $K = 1/8\pi^2$ . La FDOC est une fonction positive et normalisée en multiple de la densité de distribution aléatoire ayant pour unité arbitraire m.r.d. (multiples of the random density).

## III.4- Etude de la texture globale des Cu/Nb-F par diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X permet d'estimer la texture globale de matériaux polycristallins à l'aide d'un goniomètre de texture en modes réflexion ou transmission. Dans cette section, nous allons nous intéresser uniquement à la mesure de texture en mode réflexion (voir figure 3.3).

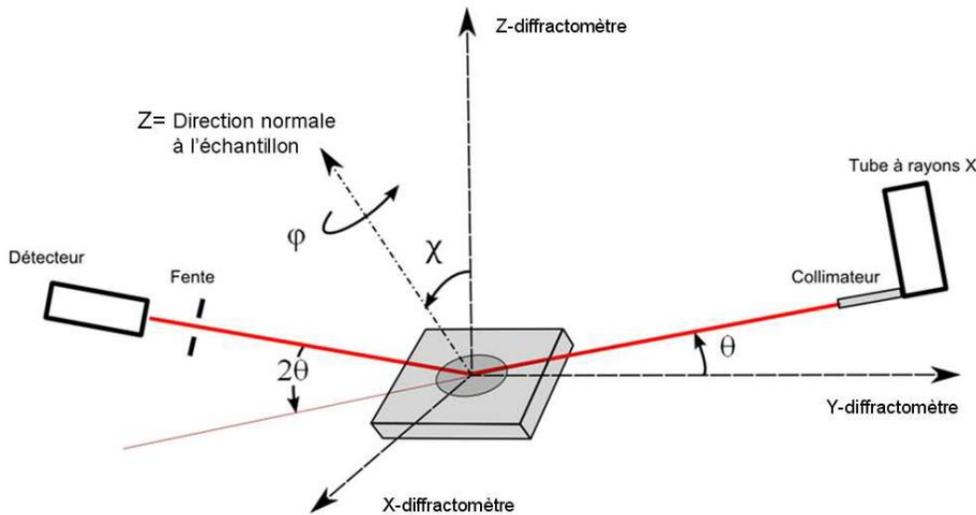


Figure 3. 3 : Schéma pour l'obtention de figure de pôle en DRX et définition des angles de rotation du goniomètre [1].

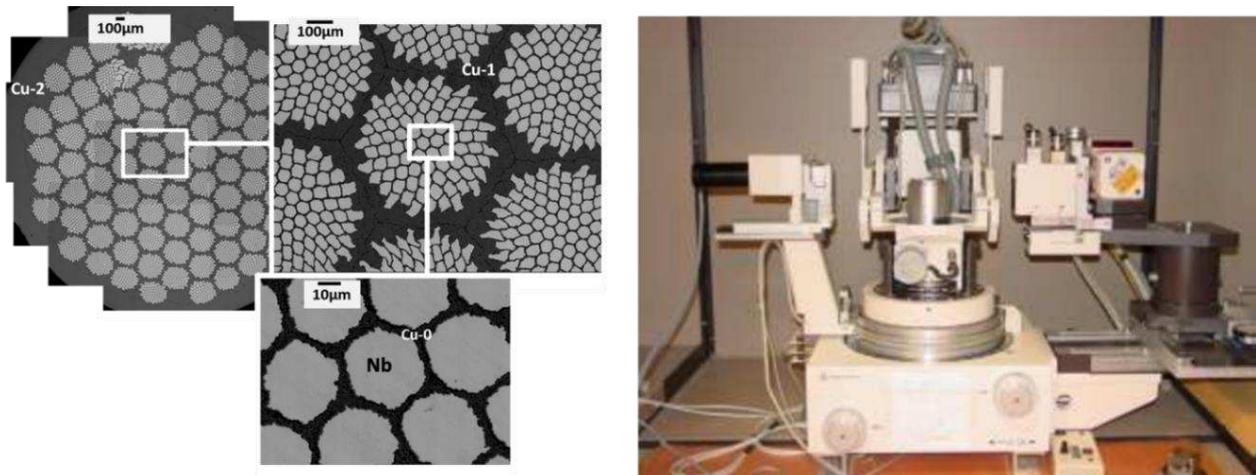
Pour toutes les mesures de figures de pôles, la condition de Bragg doit être remplie pour plusieurs plans (hkl). Dans la configuration de Bragg-Brentano [2], l'orientation de l'échantillon est définie par le couple ( $\varphi, \chi$ ) (cf. figure 3.3) ; l'angle  $\varphi$  correspond à l'angle de rotation autour de la direction normale à l'échantillon et  $\chi$  est l'angle d'inclinaison formé par la direction normale à l'échantillon et la direction normale Z au goniomètre. Ces angles correspondent aux coordonnées azimutale et radiale des figures de pôles [1].

### III.4.1- Obtention des figures de pôles

Les figures de pôles ont été obtenues en utilisant un goniomètre quatre cercles XRD 3000 Seifert) sur deux échantillons de diamètre 4,5mm dont l'un est obtenu après deux cycles ADB ( $N = 85^2$ ) et l'autre après trois cycles ADB ( $N = 85^3$ ). Ce goniomètre utilise un faisceau incident de rayons X monochromatique ( $\lambda=1,542\text{Å}$ ) délivré par un tube à anticathode de cuivre standard d'une puissance maximale de 1,6kW. Le détecteur lui, est constitué d'un compteur à scintillation NaI. Le collimateur ( $\phi = 1\text{mm}$ ) et les fentes sont placés devant le compteur. Des micrographies MEB des

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

échantillons et une photo du goniomètre sont données à la figure 3.4. Rappelons que les détails sur les microstructures de ces échantillons ont été présentés à la dernière section du chapitre I.



**Figure 3. 4 :** (a) Micrographie MEB-FEG en mode BSE d'un conducteur composite Cu/Nb-F  $_N = 85^2$ ,  $d = 4,5\text{mm}$ . (b) Photo du diffractomètre 4 cercles (XRD 3000 Seifert) utilisé pour l'obtention des figures de pôles expérimentales.

Les mesures des figures de pôles ont été réalisées avec faisceau ponctuel utilisant le rayonnement  $K\alpha$  du cuivre. Ce faisceau est canalisé par un collimateur de 1mm de diamètre, et le détecteur est placé à 220mm de l'échantillon, avec une ouverture des fentes verticales de 3mm. L'angle  $\chi$  varie de  $0,5^\circ$  à  $75^\circ$  avec un pas de  $1,25^\circ$  et  $\varphi$ , de  $0^\circ$  à  $355^\circ$  avec un pas de  $5^\circ$  et un temps de comptage de 4s par pas.

L'analyse quantitative de la texture cristallographique a été effectuée à l'aide de LaboTex 3.0. Cependant avant d'introduire les figures de pôles expérimentales dans le logiciel, nous avons procédé à la soustraction du fond continu et à la correction de la défocalisation (sortie du faisceau de la surface de l'échantillon).

### ❖ Soustraction du fond continu

Pour la correction du fond continu, on effectue des mesures des intensités en  $2\theta$  à gauche ( $I_G$  pour  $2\theta < 2\theta_{hkl}$ ) et à droite ( $I_D$  pour  $2\theta > 2\theta_{hkl}$ ) de chaque pic de Bragg. On effectue la moyenne de  $I_G$  et  $I_D$  pour ensuite soustraire cette moyenne de l'intensité mesurée ( $I_M$ ) sur le pic, soit :

$$I_{\text{corrigée}} = I_M - \frac{1}{2}(I_G + I_D)$$

### ❖ Correction de la défocalisation

La défocalisation est un phénomène qui se manifeste par une perte progressive de l'intensité d'un pic de diffraction avec le basculement de l'angle  $\chi$ . Ce phénomène s'accroît avec la diminution du diamètre des échantillons à analyser ; le faisceau peut, pour un diamètre trop petit, sortir complètement de la surface de l'échantillon. Durant ses travaux de thèse, J.-B. Dubois [1] a estimé l'effet de la défocalisation sur l'intensité diffractée à l'aide d'une poudre de cuivre polycristallin. Il a ensuite tracé les évolutions du paramètre de défocalisation  $\alpha$ , défini comme étant le rapport entre l'intensité mesurée à un  $\chi$  donné et celle à  $\chi = 0^\circ$  (voir figure 3.5). La correction de la défocalisation sur les mesures des figures de pôles (Cu et Nb), présentées

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

dans cette section, a été réalisée en utilisant une poudre de cuivre polycristallin. Idéalement, les pics du niobium devraient être corrigés à l'aide de poudre de niobium, n'ayant pas de poudre de niobium à notre disposition, ces pics ont donc été corrigés de la défocalisation à l'aide de la poudre de cuivre. La figure 3.6 présente un exemple de soustraction du fond continu et de correction de la défocalisation sur le pic (200) du cuivre. Comme on peut le remarquer sur la figure 3.6, le temps de comptage et la puissance du générateur ont été ajustés de façon à minimiser l'impact du fond continu sur l'intensité des pics. L'intensité  $I(\chi, \varphi)$  du pic corrigée du fond continu et de la défocalisation est donnée par :

$$I(\chi, \varphi) = \frac{1}{\alpha} [I_M - \frac{1}{2}(I_G + I_D)]$$

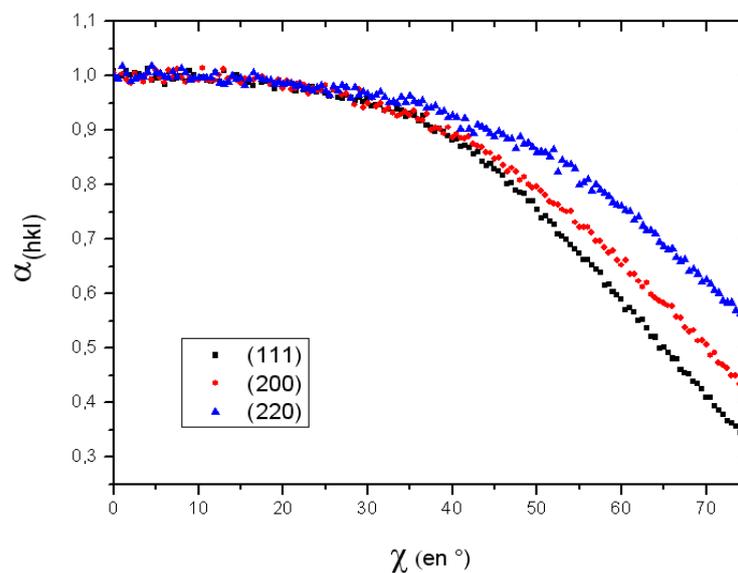


Figure 3.5 : Evolution du paramètre de défocalisation en fonction de l'angle  $\chi$  pour les pics  $(111)_{Cu}$ ,  $(200)_{Cu}$  et  $(220)_{Cu}$  [1].

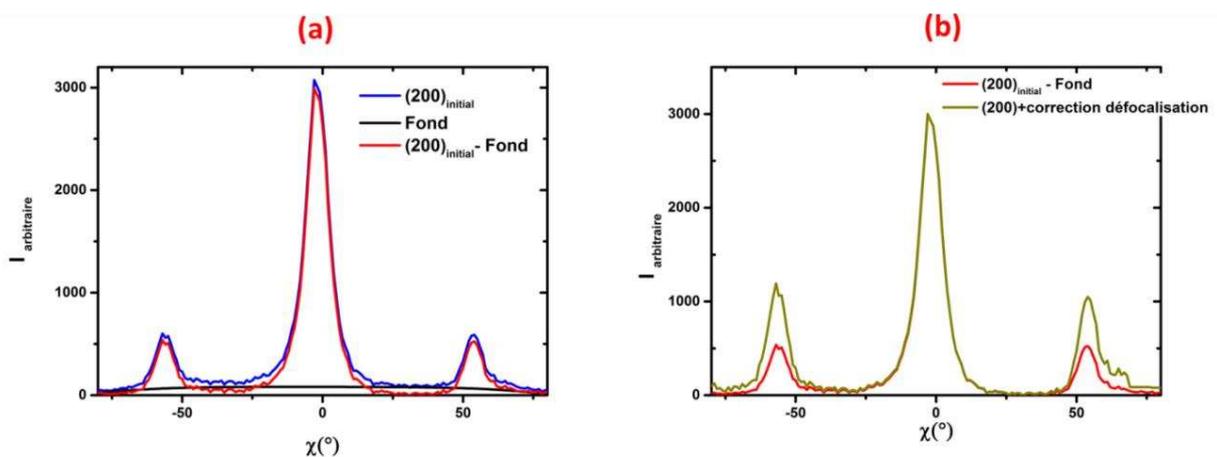


Figure 3.6 : Pics  $(200)_{Cu}$  avec (a) soustraction du fond continu et (b) correction de la défocalisation.

### III.4.2- Détermination de la FDOC

La FDOC est une fonction tridimensionnelle représentée dans l'espace d'Euler par des surfaces d'isodensité construites à partir des densités  $f(g)$  associées à chaque point ou orientation  $g$

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

( $\varphi_1$ ,  $\phi$ ,  $\varphi_2$ ). Cette fonction fournit une information statistique complète de la distribution des orientations cristallines [3]. Le calcul de la FDOC, à partir des figures de pôles expérimentales, a été effectué avec le logiciel LaboTex 3.0. Dans LaboTex, les figures de pôles expérimentales sont normalisées avant le calcul de la FDOC ; notons que cette normalisation est incomplète car les figures de pôles expérimentales sont elles-mêmes incomplètes. En raison du diamètre relativement petit ( $d = 4,5\text{mm}$ ) des échantillons et des résultats obtenus avec la poudre de cuivre (nette défocalisation au-dessus de  $\chi = 60^\circ$ ), nous avons choisi de limiter les figures de pôles à  $\chi = 60^\circ$  pour calculer les FDOC.

La FDOC est calculée, dans LaboTex, en utilisant la méthode discrète ADC (Arbitrarily Defined Cells) ; un des avantages de cette méthode est qu'elle utilise peu de figures de pôles pour le calcul de la FDOC (au moins trois). Deux paramètres sont utilisés pour évaluer les calculs dans LaboTex :

- a) L'indice de texture ( $I_d$ ) qui caractérise le niveau de texturation du matériau, plus  $I_d$  est élevé, plus la texture est prononcée. L'indice de texture est égal à l'unité pour un matériau non texturé. La relation donnant l'indice de texture est la suivante :

$$I_d = \frac{1}{8\pi^2} \int_G f^2(g) dg$$

Avec  $f(g)$ , la valeur de la FDOC et  $G$ , l'espace d'Euler.

- b) L'erreur relative sur le calcul de la FDOC, calculée à partir des facteurs de multiplicités RP, permet de contrôler si la représentation des figures de pôles est correcte ou non, RP est donné par la relation :

$$RP_{\{hkl\}} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left[ \frac{\{PF_{exp}\}_i - \{PF_{calc}\}_i}{\{PF_{exp}\}_i} \right] \times 100$$

Où  $\{PF_{exp}\}_i$  et  $\{PF_{calc}\}_i$  sont respectivement les densités de pôles expérimentales et celles recalculées au même point  $i$ ,  $N$  est le nombre de points mesurés pour chaque figure de pôles.

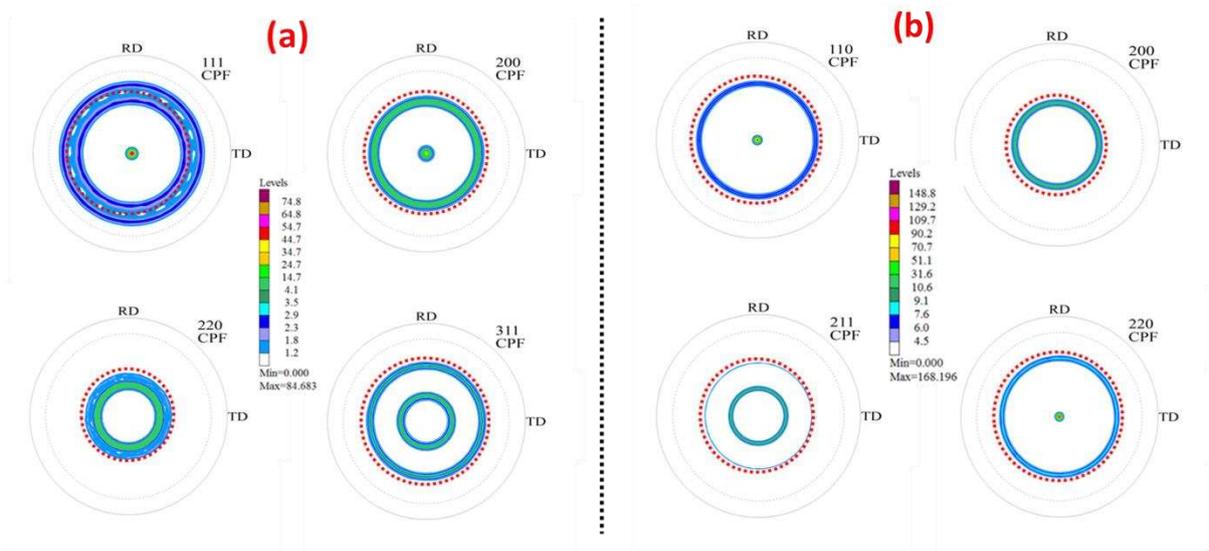
Les erreurs fournies par LaboTex sur nos calculs sont comprises entre 3% et 17% pour le cuivre et 1% et 20% pour le niobium.

### III.4.3- Résultats de l'échantillon N = 85<sup>2</sup>

#### a) Figures de pôles recalculées

Les résultats de l'échantillon obtenu après deux cycles ADB ( $N = 85^2$ ) sont présentés à la figure 3.7. Les deux phases (cuivre et niobium) se caractérisent par une texture de fibre. La figure de pôles (111) du cuivre met en évidence deux composantes : une composante  $\langle 111 \rangle$  au centre ( $\chi = 0^\circ$ ) et une composante  $\langle 100 \rangle$  (anneau à  $\chi = 54.7^\circ$ ). Les mêmes composantes se retrouvent sur la figure de pôles (200) du cuivre : la composante  $\langle 100 \rangle$  à  $\chi = 0^\circ$  et la composante  $\langle 111 \rangle$  sur la couronne à  $\chi = 54.7^\circ$ . Sur les figures de pôles du niobium, on peut visualiser une composante unique  $\langle 110 \rangle$  très prononcée : elle se retrouve au centre ( $\chi = 0^\circ$ ) et sur la couronne à  $\chi = 60^\circ$  sur la figure de pôles (110) et sur les couronnes à  $\chi = 45^\circ$  et  $\chi = 30^\circ$ ,  $\chi = 54,7^\circ$  respectivement sur les figures de pôles (200) et (211).

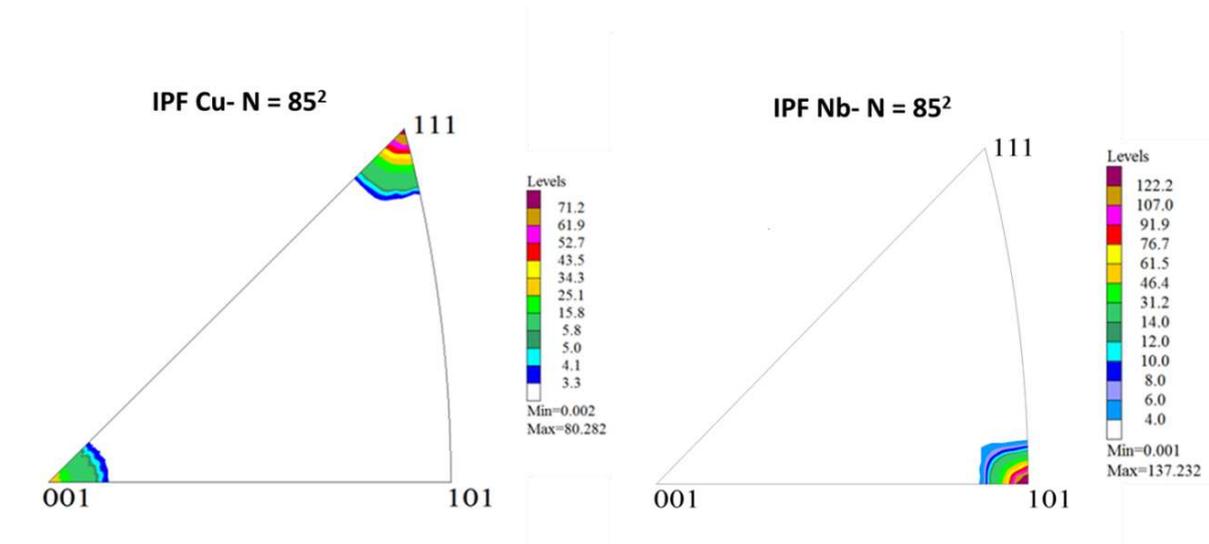
## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F



**Figure 3. 7 :** Figures de pôles corrigées dans LaboTex utilisées pour les calculs des FDOC : (a)  $(111)_{Cu}$ ,  $(200)_{Cu}$ ,  $(220)_{Cu}$ ,  $(311)_{Cu}$  (b)  $(110)_{Nb}$ ,  $(200)_{Nb}$ ,  $(211)_{Nb}$ ,  $(220)_{Nb}$ . Les figures de pôles expérimentales ont été obtenues perpendiculairement à la surface d'un échantillon de diamètre 4,5mm obtenu après 2 cycles ADB ( $N = 85^2$ ).

### b) Figures de pôles inverses

Les textures étant de fibre, seules les figures de pôles inverses selon la normale à la surface de l'échantillon seront représentées dans la suite du manuscrit. Ainsi, la figure 3.8 présente les figures de pôles inverses pour un échantillon  $N = 85^2$ . On visualise clairement les deux seules composantes  $\langle 111 \rangle$  très forte et  $\langle 100 \rangle$  plus modérée sur la figure de pôles inverse (001) du cuivre. Le niobium révèle une composante unique  $\langle 110 \rangle$  de texture très forte.



**Figure 3. 8 :** Figures de pôles inverses (obtenues selon l'axe du fil) du cuivre et du niobium d'un Cu/Nb-F de diamètre 4,5mm obtenu à l'étage  $N = 85^2$ . Ces IPF mettent en évidence deux composantes de texture pour le cuivre ( $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$ ) et une composante unique ( $\langle 110 \rangle$ ) pour le niobium.

### c) Fonction de distribution des orientations cristallines

Comme déjà indiqué à la section III.2, les analyses quantitatives de la texture se font via les FDOC. LaboTex utilise une approche itérative pour l'affinement de la FDOC : un maximum de trente itérations a été utilisé dans les calculs des FDOC présentées ci-après. Seules trois des figures de pôles présentées à la figure 3.7 ont été utilisées dans le calcul des FDOC. Plusieurs combinaisons

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

[(111), (200), (220) ; (111) (200), (311) ; ...] ont été testées ; les variations relatives des valeurs des FDOC, des fractions volumiques et des largeurs de texture n'ont pas excédé les 5%. Les résultats de cette section ont tous été obtenus à l'aide de trois figures de pôles recalculées (CPF) : (111) de  $\chi = 0^\circ$  à  $60^\circ$  ; (200) de  $\chi = 0^\circ$  à  $60^\circ$  ; (220) de  $\chi = 0^\circ$  à  $40^\circ$  et (110) de  $\chi = 0^\circ$  à  $64^\circ$  ; (200) de  $\chi = 0^\circ$  à  $46^\circ$  ; (211) de  $\chi = 0^\circ$  à  $54^\circ$  respectivement pour le cuivre et le niobium. Les fractions volumiques des composantes de texture et leurs largeurs ont été obtenues par intégration directe des FDOC sur des domaines angulaires  $\Delta\phi_1 \Delta\phi \Delta\phi_2$  ; les textures étant de fibre, le domaine d'intégration de  $\phi_1$  s'étend de  $0^\circ$  à  $360^\circ$ . La valeur minimum relevée pour l'ensemble des points de  $f(g)$  correspond au volume non orienté (par exemple une valeur de 0,25 m.r.d. minimum, indique que 25% du volume du matériau est aléatoirement orienté) ; rappelons que ceci est vrai uniquement pour la valeur de la FDOC. Comme nous l'avons mentionné, la FDOC est représentée par des surfaces d'isodensité dans l'espace d'Euler, une coupe à  $\phi_1$  constant par exemple contient pratiquement toute l'information. Pour une texture de fibre, nous avons donc choisi de présenter les FDOC par des sections à  $\phi_1 = 0^\circ$ . LaboTex offre aussi la possibilité, connaissant la structure et les composantes majoritaires de texture, de calculer des modèles. Toutes les FDOC, présentées dans cette section, sont donc comparées à un modèle calculé via le logiciel LaboTex. La figure 3.9 présente des sections à  $\phi_1 = 0^\circ$  des FDOC expérimentales et calculées des deux phases (cuivre et niobium) de l'échantillon N = 85<sup>2</sup>. Les FDOC expérimentales affichent des minima à zéro, ceci se traduisant par l'absence de grains non aléatoirement orientés dans le matériau. Les fractions volumiques des composantes de texture et leurs largeurs sont données dans le tableau III.1.

hkl	Proportion(%)	$\Delta\phi(^\circ)$	$\Delta\phi_2(^\circ)$	Min m.r.d. (%)		Max m.r.d.(%)	
				expérimentale	modèle	expérimentale	modèle
(111) <sub>Cu</sub>	72	5,7	6,9	0	0,17	83	77
(100) <sub>Cu</sub>	28	6,1	7.2	0	0,17	83	77
(110) <sub>Nb</sub>	98	4,4	5,4	0	0	154	150

**Tableau III. 1** : Fractions volumiques et largeurs des composantes de texture globale de l'échantillon N = 85<sup>2</sup> de diamètre 4,5mm.

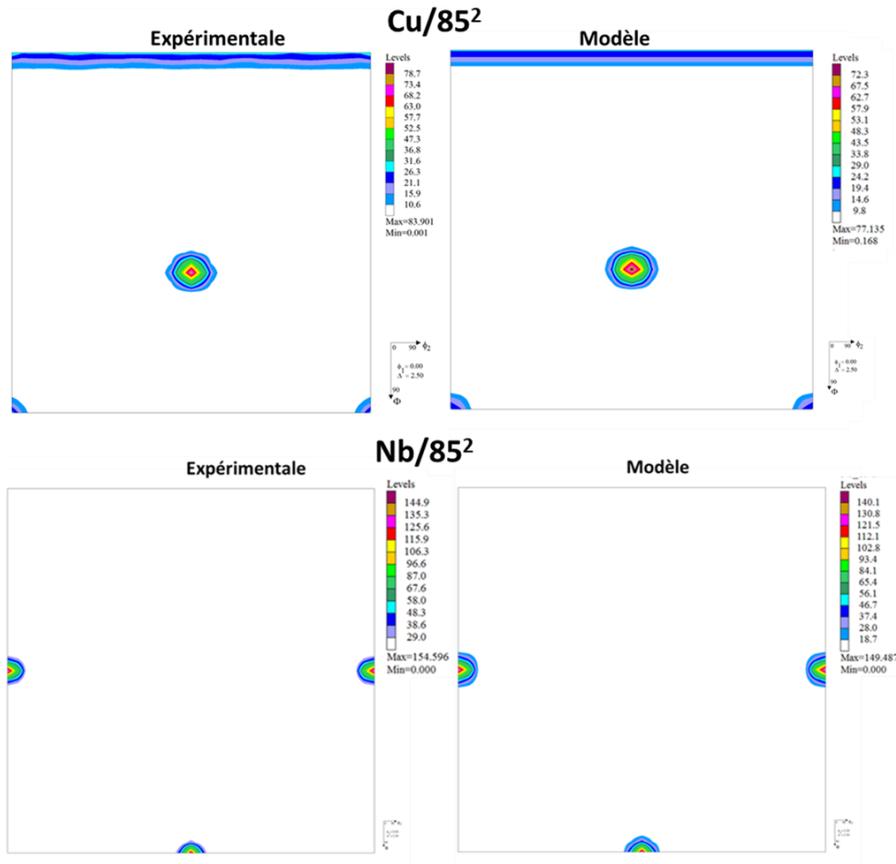


Figure 3. 9 : Sections à  $\phi_1 = 0^\circ$  des FDOC du cuivre et du niobium de l'échantillon  $N = 85^2$  de diamètre 4,5mm.

### III.4.4- Résultats de l'échantillon $N = 85^3$

La figure 3.10 présente des sections à  $\phi_1 = 0^\circ$  des FDOC de l'échantillon obtenu après trois cycles ADB ( $N = 85^3$ ). Les FDOC sont calculées, comme pour l'échantillon  $N = 85^2$  à l'aide de trois figures de pôles pour le cuivre et pour le niobium. Les FDOC expérimentales affichent des minima de 0 m.r.d. Pour le cuivre, le maximum m.r.d. est légèrement inférieur par rapport à l'échantillon  $N = 85^2$ . En revanche, on observe une faible augmentation de la proportion relative pour la composante  $\langle 100 \rangle$  par rapport à celle de l'échantillon  $N = 85^2$ . Les figures de pôles inverses correspondant aux deux phases sont données à la figure 3.11; les fractions volumiques, les dispersions et les maxima m.r.d. sont répertoriés dans le tableau III.2.

# Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

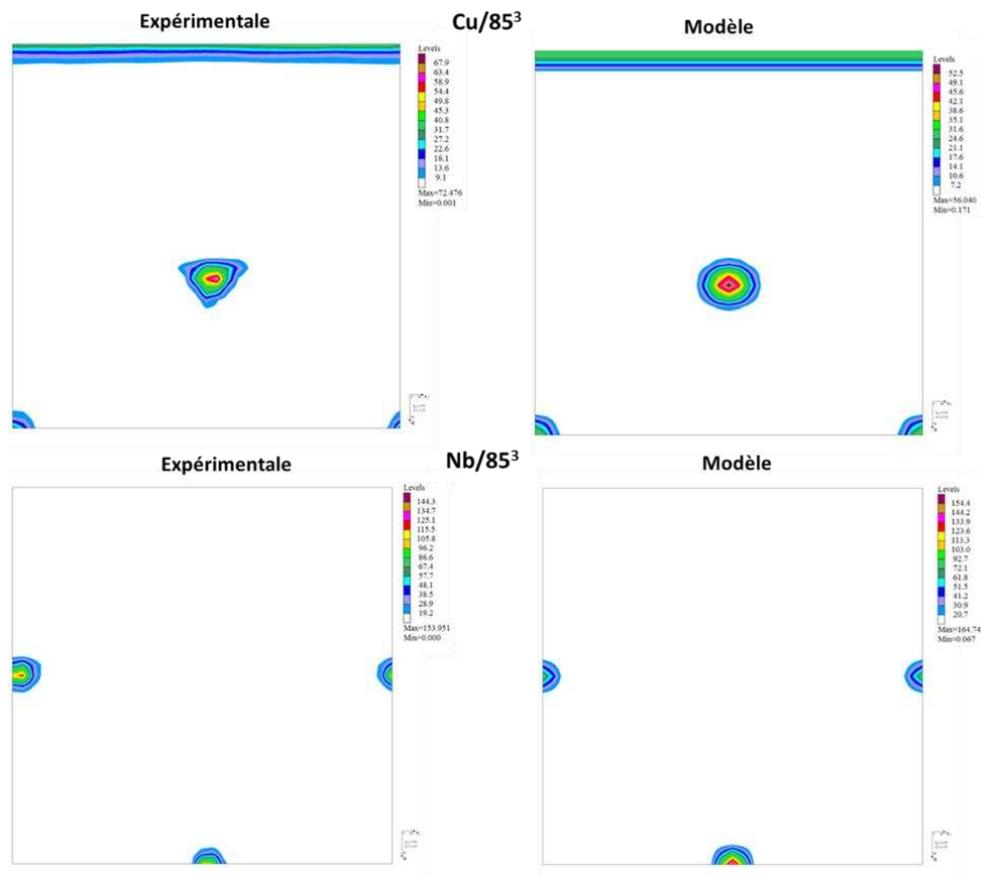


Figure 3. 10 : Sections à  $\phi_1 = 0^\circ$  des FDOC du cuivre et du niobium de l'échantillon N =  $85^3$  de diamètre 4,5mm.

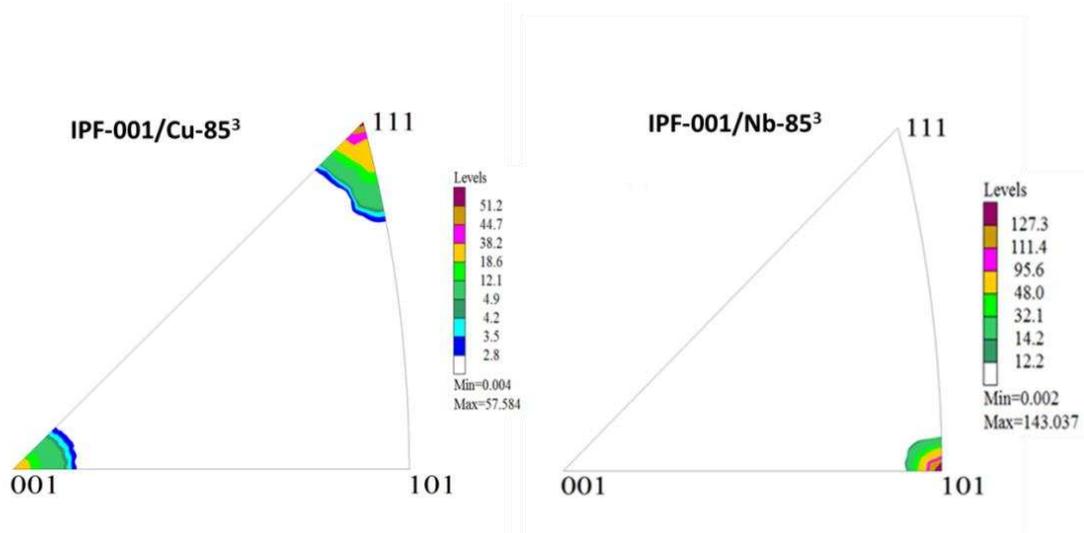


Figure 3. 11 : Figures de pôles inverses (obtenues selon l'axe du fil) du cuivre et du niobium d'un Cu/Nb-F de diamètre 4,5mm obtenu à l'étage N =  $85^3$ . Ces IPF mettent en évidence deux composantes de texture pour le cuivre ( $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$ ) et une composante unique ( $\langle 110 \rangle$ ) pour le niobium.

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

hkl	proportion	$\Delta\phi(^{\circ})$	$\Delta\phi_2(^{\circ})$	Min m.r.d. (%)		Max m.r.d.(%)	
				expérimentale	modèle	expérimentale	modèle
111	68	6,6	8,4	0	0,17	72	56
100	32	6,1	7,4	0	0,17	72	56
110	100	5,1	6	0	0	154	165

Tableau III. 2 : Fractions volumiques et largeurs des composantes de texture globale de l'échantillon N = 85<sup>3</sup> de diamètre 4,5mm.

La figure 3.12 propose une comparaison des figures de pôles inverses du cuivre pour les deux échantillons où l'on peut visualiser les différences de distribution et des indices de textures des échantillons N = 85<sup>2</sup> et N = 85<sup>3</sup>. En effet, pour passer de l'étage N = 85<sup>2</sup> à l'étage N = 85<sup>3</sup>, l'échantillon subit une étape d'extrusion à chaud qui favorise la formation de la composante <100> qui est une texture de recristallisation. Les étapes d'étirage à froid vont, elles, favoriser la composante <111>, texture de déformation [1]. Au cours de ces étapes, il y a donc une transformation de la composante de recristallisation en celle de déformation. La diminution du maximum m.r.d. (unité arbitraire) de la texture du cuivre de l'échantillon N = 85<sup>3</sup> par rapport à l'échantillon N = 85<sup>2</sup> pourrait s'expliquer par une transformation non complète de la composante <100> en la composante <111>.

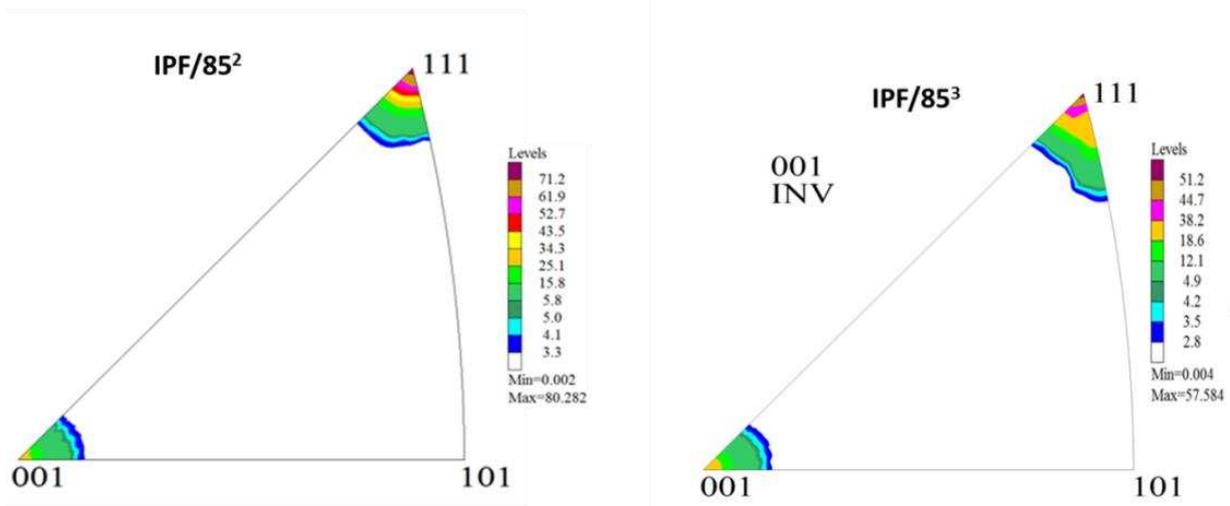


Figure 3. 12 : Comparaison des composantes de texture du cuivre des échantillons N = 85<sup>2</sup> et N = 85<sup>3</sup>.

### III.5- Etude de la texture locale par Microscopie électronique à balayage

La diffraction des électrons rétrodiffusés (Electron BackScattered Diffraction, EBSD) associée à un microscope électronique à balayage (MEB) est devenue un outil très répandu dans les laboratoires universitaires et industriels. Depuis les années 1990, il est possible d'obtenir des cartographies d'orientations (reconstruction de la microstructure à partir de la mesure des orientations cristallographiques) et des phases. Cette section sera consacrée à l'étude de la texture locale des conducteurs Cu/Nb-F par la technique d'EBSB. Les renforts de niobium et les différents canaux de cuivre ont été caractérisés pour trois échantillons prélevés respectivement après un, deux et trois cycles ADB (N= 85<sup>1</sup>, N = 85<sup>2</sup> et N = 85<sup>3</sup>).

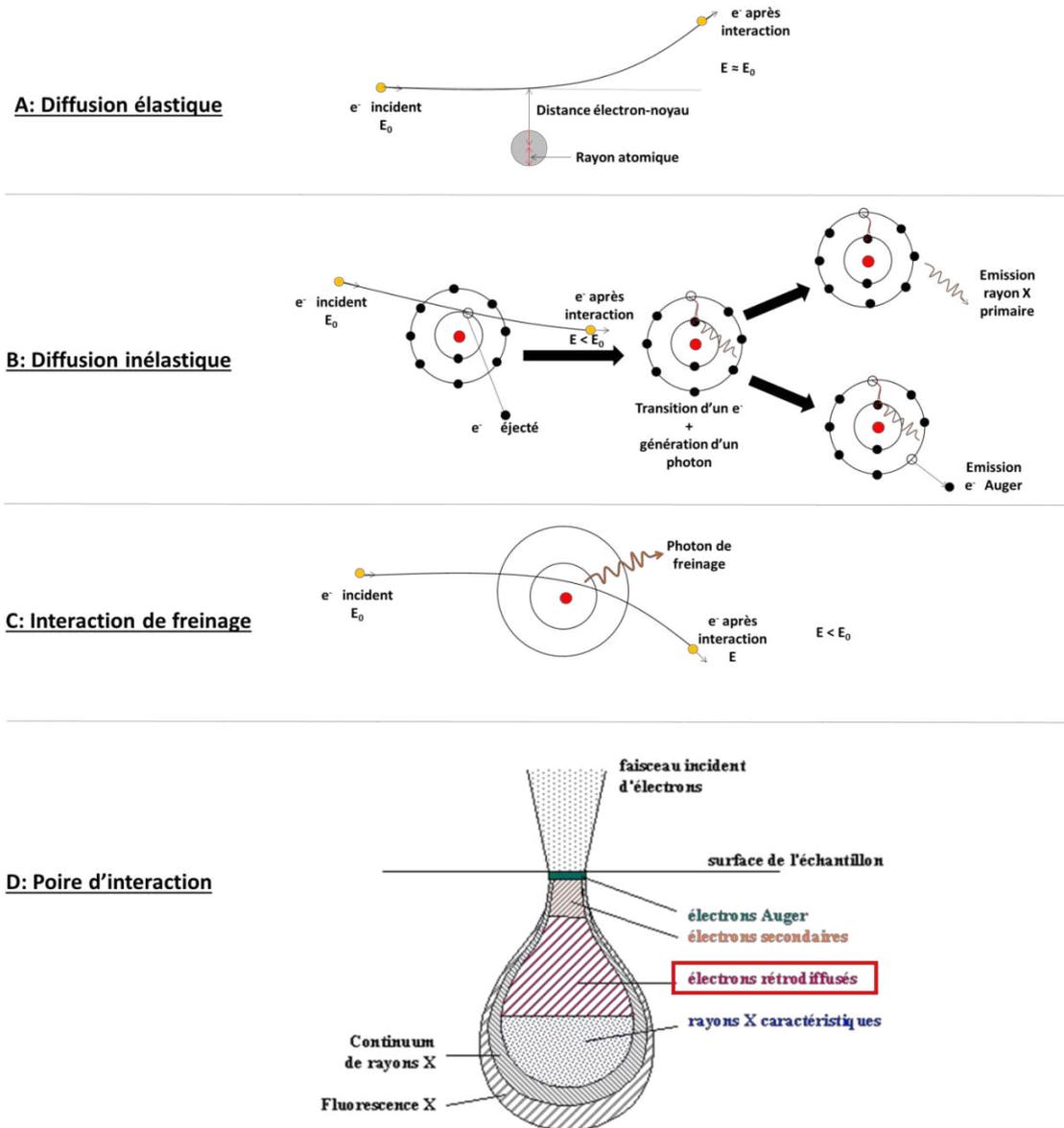
## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

---

### III.5.1- Les électrons rétrodiffusés

Lors de l'interaction d'un électron avec la matière, différents types de phénomènes peuvent se produire : diffusion élastique, diffusion inélastique et interaction de freinage. Au contact de la matière, lorsque l'électron incident passe à des distances supérieures au rayon atomique ( $> 1\text{nm}$ ), celui-ci ressent le potentiel électrostatique de l'atome. Du fait de la supériorité de la masse de l'atome par rapport à celle de l'électron, ce dernier est dévié avec un faible transfert d'énergie, mais non nul, avec l'atome. On dira que l'interaction a lieu sans perte d'énergie de l'électron incident et est alors qualifiée de diffusion élastique. Si au contraire, l'électron est à des distances de l'ordre du rayon atomique, il peut réagir directement avec le nuage électronique de l'atome. Et du fait que les masses sont similaires, l'électron incident est dévié en cédant une bonne partie de son énergie cinétique, la diffusion étant alors qualifiée de diffusion inélastique. L'interaction de freinage a lieu lorsque l'électron incident passe au voisinage de l'atome. L'électron incident ressent alors le potentiel électrique du noyau atomique du fait de la charge positive de ce dernier ; la perte d'énergie de l'électron incident n'est pas quantifiée mais peut être très grande et est intégralement émise sous forme de photon. Il faut aussi noter les émissions caractéristiques liées aux transitions radiatives après ionisation de l'atome. Les différents types d'émissions que l'on peut avoir au contact d'un faisceau d'électrons avec la matière sont définis par ce que les microscopistes appellent « la poire d'interaction ». Des schémas des différentes modes d'interactions et de la poire d'interaction sont présentés à la figure 3.13. Les électrons qui traversent la matière en conservant leur énergie cinétique diffusent de manière élastique et on les appelle électrons rétrodiffusés (Back-Scattered Electron, en anglais). Ces électrons, de par leur forte énergie, apportent une information en profondeur sur l'homogénéité chimique, la texture cristallographique, la forme des grains... La résolution des électrons rétrodiffusés dépend de l'échantillon est typiquement de l'ordre de quelques centaines de nanomètres.

# Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F



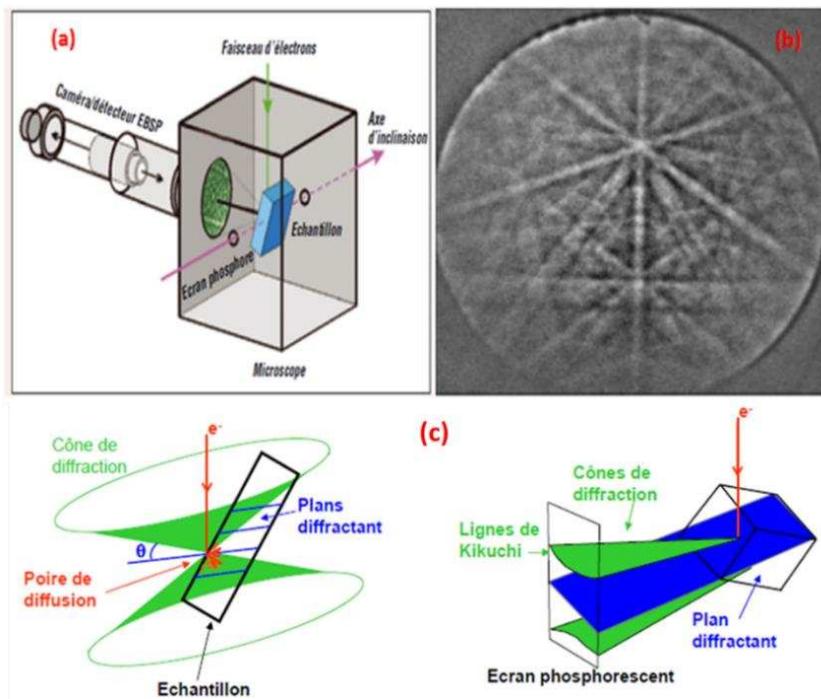
**Figure 3. 13 :** A-C: Les différents phénomènes pouvant se produire lors de l'interaction d'un électron (ou faisceau d'électrons) avec la matière et D : Poire d'interaction électronique mettant en évidence les différentes émissions [4].

## III.5.2- Principe de la technique EBSD

Le principe de l'EBS est le suivant : une faible partie des électrons rétrodiffusés par l'échantillon analysé subissent une réflexion de Bragg sur les plans réticulaires. Ces électrons sont réfractés suivant des cônes de diffraction dont le sommet se situe au point d'impact du faisceau d'électrons primaires avec l'échantillon. Ils sont détectés grâce à un capteur CCD placé derrière un écran phosphorescent. L'interception de ces cônes avec le détecteur va donner deux hyperboles que l'on assimilera à des droites, les lignes de « pseudo-Kikuchi », dont le nombre, la disposition (i.e. symétrie), l'intensité et la largeur sont caractéristiques du réseau cristallographique et de son orientation [5]. Les électrons rétrodiffusés ne sont pas en très grand nombre, pour augmenter leur gain, on incline fortement l'échantillon par rapport à la normale à sa surface (typiquement de 65-70°). Le cliché de diffraction obtenu est alors un ensemble de bandes de Kikuchi (cf. figure 3.14b).

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

Dans ce diagramme, chaque bande correspond à une famille de plans  $\{hkl\}$ , les intersections entre bandes correspondent aux intersections entre les plans et les positions des bandes sont liées aux orientations cristallines. Pour plus de détails sur le principe de la technique EBSD, le lecteur pourra se référer aux ouvrages de David Dingley [6], de Valerie Randle et Olaf Engler [7]. Ces diagrammes de « pseudo Kikuchi » sont alors comparés avec une base de données de diagrammes présente dans le logiciel de traitement et ainsi indexés. À partir de ces cartographies, une multitude de données, outre la texture cristallographique elle-même, est accessible, comme la taille et la forme des grains, la distribution des joints de grains, les gradients d'orientations intragranulaires.



**Figure 3. 14 :** Principe pour obtenir un digramme de diffraction en EBSD : (a) schéma de l'échantillon dans la chambre du microscope, (b) diagramme de diffraction avec les lignes de Kikuchi et (c) schéma de la formation des lignes de Kikuchi pour des électrons rétrodiffusés en condition de Bragg sur des plans cristallins [8].

### III.5.3- Préparation des échantillons pour analyse EBSD

La technique de l'EBSD est une technique de surface sensible, les échantillons à analyser sont donc soumis à certaines exigences du point de vue de la préparation avant leur introduction dans le microscope. Les spécialistes de l'EBSD s'accordent tous pour dire que l'acquisition des données EBSD fiables commence avec la préparation des échantillons. Premièrement, le fait que l'échantillon doive être basculé aux grands angles (typiquement  $70^\circ$ ), implique que la topographie/le relief de la surface soit maintenu à un minimum absolu afin d'éviter l'inconvénient des zones d'ombres. Deuxièmement, le signal de diffraction provenant des quelques nanomètres de la couche superficielle (5-50 nm) du réseau cristallin, il est essentiel que cette couche soit exempte de dommage et de toute contamination ou couches d'oxydation, ce qui rend la préparation de l'échantillon extrêmement critique, mais aussi essentielle pour l'obtention de données EBSD pertinentes. En résumé, les surfaces des échantillons à analyser par la technique de l'EBSD doivent

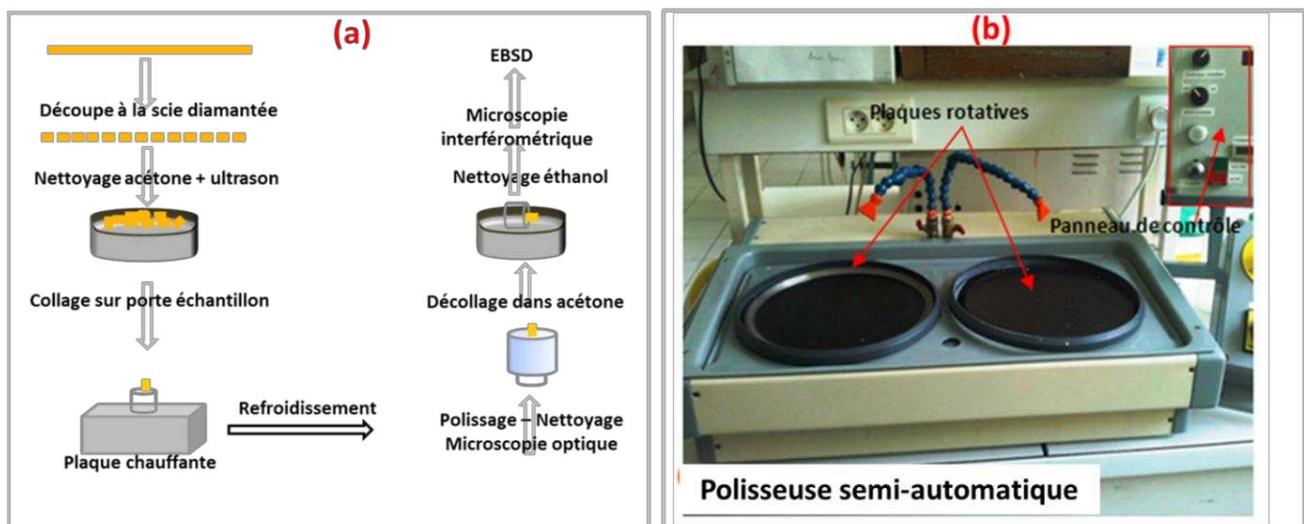
## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

être parfaitement planes et non écrouies [9 -14] ; ce qui fait de la préparation des échantillons une étape clé pour la technique EBSD.

### III.5.3.1- Protocole de préparation des conducteurs Cu/Nb-F

Les micro-et (nano)-composites cuivre/niobium, comme on l'a vu précédemment, sont constitués d'une matrice de cuivre multi-échelles avec des renforts continus de niobium. Obtenir une surface plane pour un matériau biphasé (Cu et Nb) n'est pas chose aisée. En effet, n'ayant pas les mêmes propriétés mécano-chimiques, à des charges et vitesses de rotation égales, les cinétiques d'arrachement de la matière des deux phases vont être différentes. La matrice multi-échelles de cuivre, à elle seule, peut être considérée comme étant multi-phasée, car n'ayant pas les mêmes historiques de fabrication, les différents canaux de cuivre n'ont pas les mêmes caractéristiques mécano-chimiques. Il faut noter qu'un temps considérable a été consacré à l'établissement du protocole de préparation des composites Cu/Nb présenté ci-après et à la préparation des échantillons.

Après plusieurs essais, la solution adoptée a été un polissage mécano-chimique avec une finition à l'alumine colloïdale neutre (OPAN). Les échantillons sont reçus sous forme de fils (de diamètre 4,5 mm pour les analyses EBSD), ils sont ensuite découpés à l'aide d'une scie diamantée d'épaisseur d'environ 200 $\mu$ m. Afin d'éviter toute contamination, les échantillons ne sont pas enrobés à l'aide de résine. Ils sont directement collés en utilisant une plaque chauffante (température de chauffe : maximum 100°C ; sans incidence sur les microstructures) sur un porte-échantillon en acier inoxydable de masse 62g. Ils sont ensuite introduits à l'intérieur d'un cylindre de support et polis à l'aide de la plateforme rotative de la figure 3.15b ; l'un des avantages de cette polisseuse est que l'on peut ajuster la vitesse de rotation (valeur et sens) de la plateforme. Le parcours suivi par l'échantillon de la réception à la fin de préparation pour l'EBSD et une photographie de la polisseuse utilisée sont présentés à la figure 3.15.



**Figure 3. 15 :** (a) Parcours suivi par l'échantillon de la réception à la préparation pour l'acquisition des données EBSD, (b) photographie de la polisseuse semi-automatique utilisée pour la préparation des surfaces.

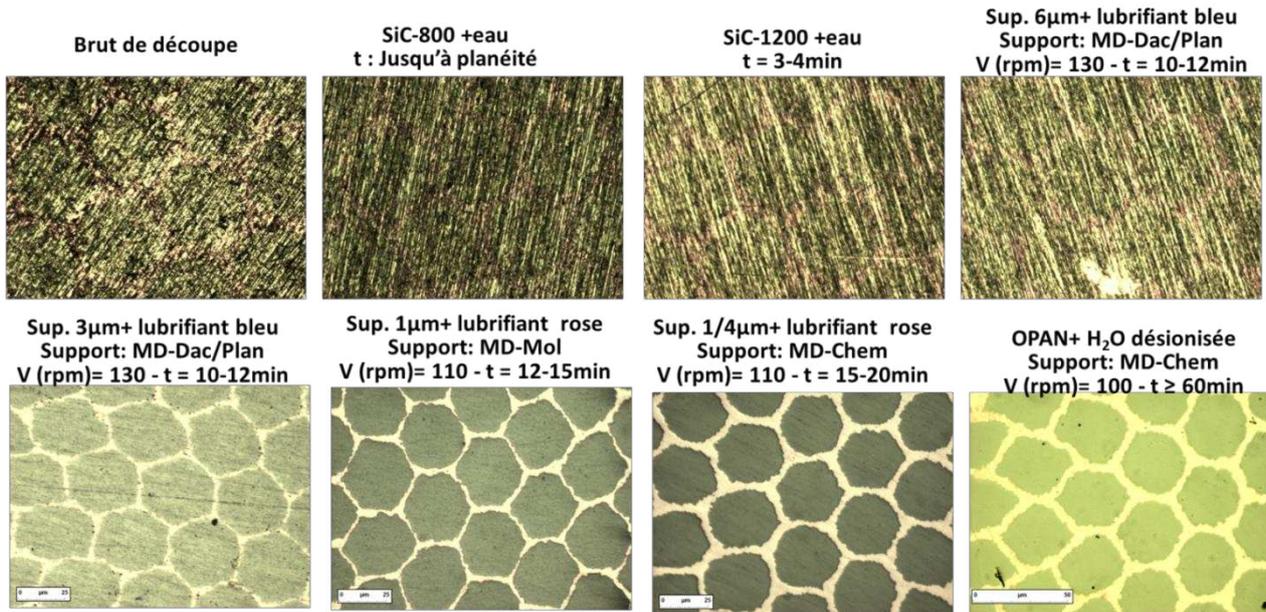
Le protocole utilisé pour la préparation des conducteurs Cu/Nb-F et l'évolution de l'état de la surface de l'échantillon avec les étapes de polissage sont présentés à la figure 3.16. Les deux

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

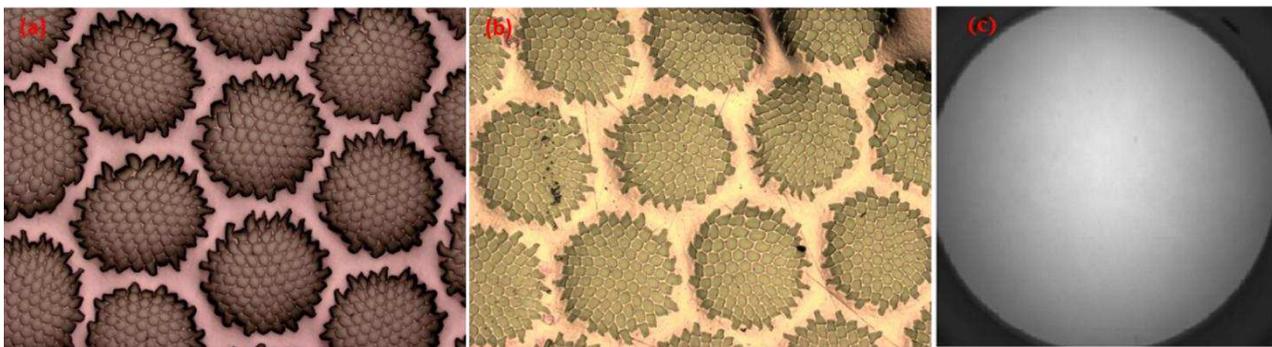
---

faces de l'échantillon sont polies à l'aide de papiers abrasifs SiC 800 et 1200 de façon à les avoir parfaitement parallèles. On continue ensuite sur la face à analyser avec des suspensions à base diamant de granulométries décroissantes (de  $6\mu\text{m}$  à  $\frac{1}{4}\mu\text{m}$ ). A chaque étape, on essaye d'enlever la couche écrouie induite par la précédente étape en enlevant au moins une quantité de matière équivalente à trois fois la taille de l'abrasif précédemment utilisé. Entre chaque étape, l'échantillon est nettoyé avec de l'eau désionisée et séché avec de la vapeur d'azote. Ces étapes de nettoyage ont pour but principal d'enlever tous les débris et particules abrasives de la surface avant l'utilisation du produit à granulométrie inférieure à l'étape suivante, car tout grain de l'abrasif antérieur laissé sur la surface va continuer à la rayer au cours des séquences suivantes. La finition à l'OPAN produit deux effets : 1- La suspension basique va attaquer chimiquement l'échantillon en formant une couche de réaction relativement friable à la surface ; 2- les colloïdes ont un rôle d'abrasion mécanique. Il faut noter que l'abrasion mécanique seule induit toujours de la déformation et un enlèvement exclusivement chimique produit un relief. Il faut donc trouver le bon compromis entre les deux pour avoir une surface polie parfaitement plane et non écrouie. Durant les étapes avec abrasifs SiC et pâtes diamantées, l'échantillon est maintenu à l'aide du cylindre de support et la charge appliquée correspond quasiment à celle du porte échantillon (environ 62g). Cependant, pour une meilleure combinaison des deux effets susmentionnés pour la finition à l'OPAN, on exerce une charge (non quantifiable) en appuyant sur le porte échantillon pendant toute la durée de la finition. Pour rendre compte des deux principales exigences de la préparation des surfaces pour l'analyse EBSD, la figure 3. 17 présente deux échantillons et leur diagramme de « non diffraction ». Le premier échantillon (figure 3.17a) est poli jusqu'au quart de micron sans finition à l'OPAN ; le deuxième, quant à lui, a subi toutes les étapes jusqu'à finition à l'OPAN. Le premier échantillon (figure 3.17a) présente une surface assez régulière mais ne diffracte pas car la couche écrouie induite par les étapes de polissage n'a pas été enlevée par la finition à l'OPAN. Le second échantillon pour lequel toutes les étapes de polissage ont été suivies n'a pas diffracté non plus, car les étapes n'ont pas été réalisées correctement (surface rayée, durée des étapes de polissage, nettoyage, vitesse de rotation, charge pour la finition...).

# Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F



**Figure 3. 16 :** Protocole de polissage des conducteurs Cu/Nb-F et évolution de l'état de la surface avec les différentes étapes (t correspond à la durée de polissage).



**Figure 3. 17 :** Mise en évidence des exigences de préparation des surfaces pour l'analyse par la technique EBSD. (a) Surface plane et lisse polie jusqu' au quart de micron mais trop écaillée pour diffracter ; (b) Surface polie jusqu'à finition à l'OPAN (1h) mais trop endommagée pour diffracter ; (c) diagramme de diffraction sans une ligne de Kikuchi correspondant aux échantillons (a) et (b).

## III.5.3.2- Contrôle de la planéité et de l'écaillage des surfaces

### a) Planéité des surfaces

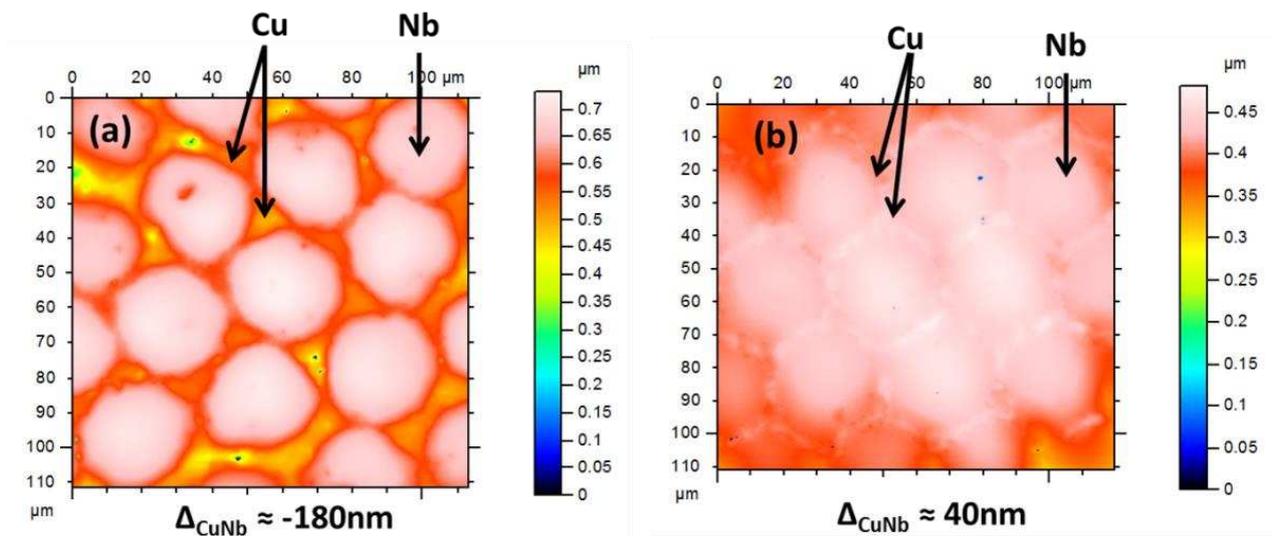
A l'aide d'un microscope optique, l'évolution de l'état de la surface avec les étapes de polissage a été suivie de manière qualitative. En effet, les deux phases ne diffractent pas la lumière avec la même intensité, on peut y observer les rayures, les débris, la différence de marche entre les deux phases et/ou les différents canaux de cuivre. Cependant, l'observation d'une différence de marche entre le niobium et le cuivre, par exemple, au microscope optique ne nous permet pas de dire lequel est au-dessus (ou en dessous). Pour estimer de manière quantitative la hauteur de marche entre les deux phases et les différents canaux de cuivre, un microscope interférométrique a été utilisé.

### b) Degré d'écaillage et planéité de la surface

Après l'étape de finition à l'OPAN, seule l'acquisition de diagramme de diffraction (à l'aide d'un MEB) peut renseigner sur le niveau d'écaillage de l'échantillon. Ainsi différentes durées de finition ont été testées. Comme on peut le voir à la figure 3.18a, le polissage mécanique à la pâte diamantée crée une hauteur de marche  $\Delta_{CuNb} < 0$  due à une vitesse de polissage plus rapide pour le

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

cuivre que pour le niobium. En revanche, la cinétique d'arrachement de matière lors de la finition à l'OPAN est plus rapide pour le niobium que pour le cuivre (voir figure 3.18b). L'idéal serait d'optimiser la durée de la finition afin de mettre les deux phases au même niveau (annuler le relief). Cependant, une telle durée se situe aux environs d'une vingtaine de minutes et les tests de diffraction ont révélé que cette durée était bien trop faible pour enlever la couche écrouie induite par les étapes de polissage mécanique.



**Figure 3. 18 :** Images de microscopie interférométrique montrant deux cinétiques différentes de polissage des pâtes à base diamant et de l'OPAN pour le cuivre et le niobium. (a) : Echantillon poli à la pâte diamantée jusqu'à 1µm ; (b) Echantillon poli à la pâte diamantée plus finition à l'OPAN pendant 30min.

Nous avons donc opté pour une finition à l'OPAN de soixante minutes, car c'est à partir de cette durée que les diagrammes de diffractions sont de qualité à assurer l'acquisition de données EBSD fiables. Il faut noter la difficulté concernant les problèmes d'arrondi au niveau des bords extérieurs des échantillons, rencontrés avec les abrasifs SiC, ce qui a dans un premier temps rendu impossible l'acquisition des données pour les canaux de cuivres extérieurs (Cu-2 et Cu-3, respectivement pour les échantillons  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ). Pour pallier à cette difficulté, les échantillons ont été introduits dans des gaines en cuivre polycristallin. L'effet d'arrondi a donc été transféré à la gaine et on a pu obtenir des échantillons polis avec des bords parfaitement plans. Des images de microscopie interférométrique d'une zone composite et du cuivre périphérique sont présentées à la figure 3.19. Sur ces images, on peut remarquer qu'avec ce protocole de préparation, on arrive à obtenir des surfaces avec un relief quasi nul.

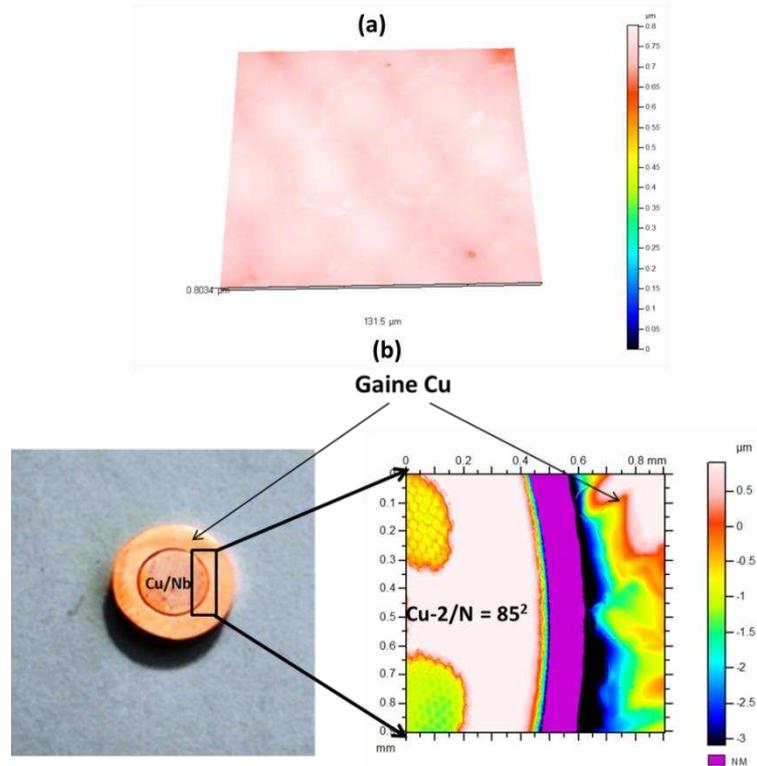


Figure 3. 19 : Enrobage d'un conducteur Cu/Nb permettant d'éliminer les effets de bord.

### III.5.4- Acquisition des diagrammes de diffraction EBSD

Les expériences EBSD ont été réalisées à l'institut Pprime par Patrick Villechaise en utilisant deux microscopes de types JEOL : un MEB-FEG 7000F pour l'échantillon  $N = 85^3$  et un MEB conventionnel 6100 pour les échantillons  $N = 85^1$  et  $N = 85^2$ . Après l'étape critique de préparation des échantillons, différentes étapes non moins importantes sont nécessaires pour garantir l'acquisition de données EBSD fiables et pertinentes. Notons que la microstructure des échantillons en termes de densité de dislocations dépend fortement des étapes de fabrication (cf. §II.3.1 chapitre II). Les étapes de préparation des surfaces ont donc été limitées par l'écrouissage intrinsèque des échantillons. Pour les échantillons présentés ci-après, nous avons été limités à un nombre restreint de diagrammes indexés par seconde, soit entre 15 et 50. Rappelons que ce nombre est très faible (mais indispensable pour la fiabilité des données EBSD) par rapport au nombre de diagrammes indexés à la seconde dans le cas d'autres matériaux. Dans des alliages de titane, par exemple, on arrive à indexer plusieurs centaines de diagrammes par seconde. Dans cette section, nous allons passer en revue succinctement certaines de ces étapes à suivre pour l'acquisition des données EBSD.

#### a) Fixation de l'échantillon

La fixation de l'échantillon se fait de manière classique en utilisant une laque d'argent afin de le connecter électriquement au porte-échantillon qui est lui-même à la masse. On le laisse sécher à l'air pendant quelques heures pour améliorer le contact mécanique et éviter ainsi les dérives lors de l'acquisition. Après son insertion dans la chambre du MEB, l'étape suivante est le réglage du MEB.

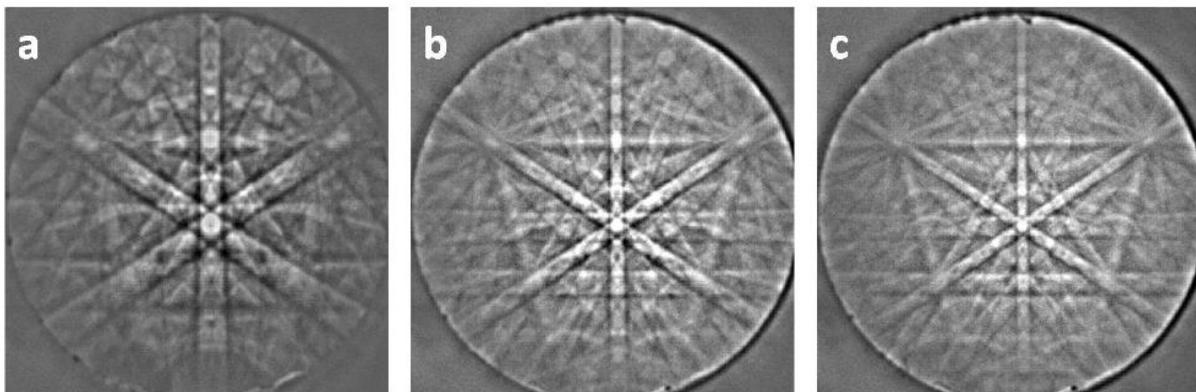
## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

### b) Réglage du microscope

Le microscope électronique utilisé est un MEB conventionnel équipé d'un détecteur d'électrons rétrodiffusés (FDS) accroché au détecteur (écran de phosphore) EBSD dans une position pour avoir les meilleures images à tilt  $70^\circ$ . Il faut ensuite placer l'échantillon à une distance de travail (WD) adéquate. Plus cette distance est petite, meilleure sera la focalisation de la sonde sur l'échantillon. Cependant, compte tenu de la forte inclinaison de l'échantillon, il faut régler cette distance de manière à minimiser les risques de collision entre le porte-échantillon et la colonne électronique.

### c) Choix de la tension d'accélération

Il est nécessaire d'appliquer une forte tension d'accélération à cause de la faible sensibilité des détecteurs (typiquement 20-25kV). La haute tension permet aussi de faciliter l'indexation des diagrammes. Plus la tension est élevée, plus la valeur de l'angle de Bragg diminue et donc, plus la largeur des bandes de Kikuchi diminue, ce qui facilitera leur détection lors de l'indexation [15]. Il ne faut pas non plus que la tension soit trop importante, car l'augmentation de la tension entraîne une augmentation du diamètre du faisceau limitant ainsi la taille des plus petits objets que l'on peut caractériser (dans notre cas, des grains de taille submicrométrique, voir nanométrique). La figure 11 met en évidence l'effet de la tension d'accélération sur la largeur des bandes de Kikuchi. Il faut aussi choisir avec soin le diaphragme car c'est ce dernier qui va déterminer le courant de la sonde interagissant avec l'échantillon. On doit donc trouver un compromis entre une ouverture de diaphragme qui permettra d'avoir un petit diamètre de sonde mais qui donnera peu de signal sur le détecteur et une ouverture plus grande qui donnera beaucoup de signal mais qui va détériorer la résolution.



**Figure 3. 20 :** Effet de la tension d'accélération sur les diagrammes de diffraction pour du silicium. (a) (b) et (c) pour 5, 15 et 25kV respectivement. On peut aussi remarquer une augmentation du contraste avec la tension d'accélération [15].

### d) Réglage de la caméra

Cette étape consiste, d'une part, à optimiser la qualité des clichés de diffraction en optimisant les paramètres de la caméra et, d'autre part, à ce que le logiciel connaisse les paramètres géométriques (type de structure) et les paramètres d'acquisition (tension d'accélération, distance de travail, position du centre du diagramme sur le détecteur...). Les deux principaux paramètres de la caméra sont le temps d'exposition et le gain. Dans l'absolu, on minimise le temps d'exposition par un gain élevé ce qui va permettre un temps minimum pour l'acquisition. Cependant, lorsque l'échantillon ne donne pas un très bon contraste, il faut trouver un compromis sur le temps

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

---

d'exposition pour avoir un contraste suffisant (l'augmentation du temps d'exposition va améliorer le rapport signal sur bruit) tout en gardant un temps d'acquisition raisonnable. On ajuste ensuite le gain en fonction de ce temps d'exposition. Il faut aussi noter qu'une bonne partie des électrons arrivant sur le détecteur ne participe pas à la formation du diagramme mais à la formation du fond continu. Des algorithmes de soustraction de fond continu ont été développés permettant ainsi d'améliorer de façon significative le contraste.

### e) Exploitation des diagrammes de diffraction

L'analyse des diagrammes de diffraction a été effectuée à l'aide du logiciel « Orientation Imaging (OIM) Analysis ». Un système automatisé identifie les bandes de Kikuchi présentes dans le diagramme par l'intermédiaire de la transformée de Hough et procède à l'indexation du diagramme. Le paramètre représentatif de la qualité de diffraction est l'indice de qualité (IQ). C'est un scalaire dont la valeur dépend du matériau, de ses défauts intrinsèques (précipités, dislocations, joints et sous-joints de grains, macles,...), de la qualité de préparation de la surface. Il dépend aussi des conditions d'obtention des diagrammes (tension d'accélération, courant de sonde, ...) et de la caméra (bruit de fond, temps d'acquisition, ...). Pour un pixel donné, plus IQ est élevé, plus le pixel est codé vers le blanc, plus la qualité cristalline locale est bonne. Le deuxième paramètre qui concerne l'indexation de l'ensemble des bandes de Kikuchi est l'indice de confiance. L'orientation cristalline de la zone analysée, connaissant la structure cristalline du matériau, est déterminée par comparaison entre le diagramme obtenu et des diagrammes théoriques. L'indice de confiance (IC) révèle la confiance que donne le logiciel à l'orientation qu'il a déterminée. La détermination se fait à l'aide de triplets des bandes identifiées. En général, on sélectionne tous les plans cristallographiques de la phase considérée et tous les angles possibles entre ces plans sont tabulés pour comparaison avec les mesures. En fonction du nombre de bandes, on obtient un nombre de triplets possibles. La comparaison des mesures avec les données tabulées conduit souvent à plusieurs solutions possibles d'indexations. A la fin de l'indexation, à chaque solution est associée une valeur, que l'on appellera le vote, correspondant au nombre de fois que cette solution est apparue. La solution choisie pour l'indexation sera alors celle qui présente la meilleure valeur de IC. Le calcul de IC est donné par l'équation suivante et correspond à la différence de votes entre les deux solutions les plus représentées divisée par le nombre de votes total.

$$IC = \frac{V_1 - V_2}{V_{total}}$$

Par ailleurs, pour limiter les erreurs d'indexation, il est d'usage d'augmenter le nombre de bandes utilisées pour la recherche de la solution. En revanche, le nombre de points non-indexés augmente avec le nombre de bandes et le nettoyage des données brutes d'acquisition devient incontournable.

Lors des étapes de nettoyage, tous les points n'ayant aucune signification physique seront considérés comme des artefacts de mesure et seront donc supprimés et remplacés par un pixel voisin.

### f) Définition du grain et de sa taille

Dans une cartographie EBSD, le grain est constitué d'un ensemble de pixels voisins et sa définition repose sur un critère de désorientation angulaire. En effet, on définit une désorientation

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

seuil entre deux pixels voisins en dessous de laquelle ces pixels sont considérés appartenir au même grain. Dans le cas des résultats présentés dans ce manuscrit, cette désorientation varie selon la phase étudiée et est de  $5^\circ$  ou  $10^\circ$ . Pour calculer la taille d'un grain, connaissant le nombre de pixels le constituant et la taille d'un pixel, on calcul l'aire du grain. La taille du grain est alors donnée par le diamètre d'un cercle d'aire équivalente à l'aire du grain.

### III.5.5 – Présentation des résultats

Les résultats présentés ci-après concernent trois conducteurs Cu/Nb-F de diamètre 4,5mm obtenus après un, deux et trois cycles ADB ( $N = 85^1$ ,  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ) respectivement. Les dimensions théoriques, les fractions volumiques de niobium et des différents canaux de cuivre ainsi que les taux de déformations cumulées<sup>11</sup> des trois échantillons sont répertoriées dans le tableau III.3.

Afin d'éviter toute éventuelle confusion, nous rappelons que l'échantillon  $N = 85^1$  est constitué de 85 filaments continus de niobium séparés par des canaux de cuivre notés Cu-0/85<sup>1</sup> et l'ensemble (Cu-0 et Nb) est entouré par le cuivre extérieur noté Cu-1/85<sup>1</sup>. L'échantillon  $N = 85^2$ , lui, est constitué de 85<sup>2</sup> filaments continus de niobium et trois échelles de canaux de cuivre notées Cu-0/85<sup>2</sup>, Cu-1/85<sup>2</sup> et Cu-2/85<sup>2</sup>. De la même façon, l'échantillon  $N = 85^3$  contient 85<sup>3</sup> filaments de niobium et quatre échelles de cuivre (Cu-0/85<sup>3</sup>, Cu-1/85<sup>3</sup>, Cu-2/85<sup>3</sup>, Cu-3/85<sup>3</sup>). Nous rappelons que les canaux de cuivre sont différents d'un échantillon à un autre ; par exemple les Cu-0/85<sup>1</sup>, Cu-0/85<sup>2</sup>, Cu-0/85<sup>3</sup> sont tous différents puisqu'ayant subi des histoires thermomécaniques différentes.

Echantillon	$d_{Nb}$ ( $\mu m$ )	% Nb	$d_{Cu-0}$ ( $\mu m$ )	% Cu-0	$d_{Cu-1}$ ( $\mu m$ )	% Cu-1	$d_{Cu-2}$ ( $\mu m$ )	% Cu-2	$d_{Cu-3}$ ( $\mu m$ )	% Cu-3	$\eta$
$N=85^1$	343	57	54	20	272	23	-	-	-	-	9,4
$N=85^2$	30	45	4,8	15	48	17	272	23	-	-	14,3
$N=85^3$	2,7	35	0,42	12	4,2	13	48	17	272	23	19,1

**Tableau III. 3 :** Dimensions théoriques, fractions volumiques des phases et taux de déformations cumulées des échantillons de diamètre 4,5mm utilisés pour les analyses EBSD.

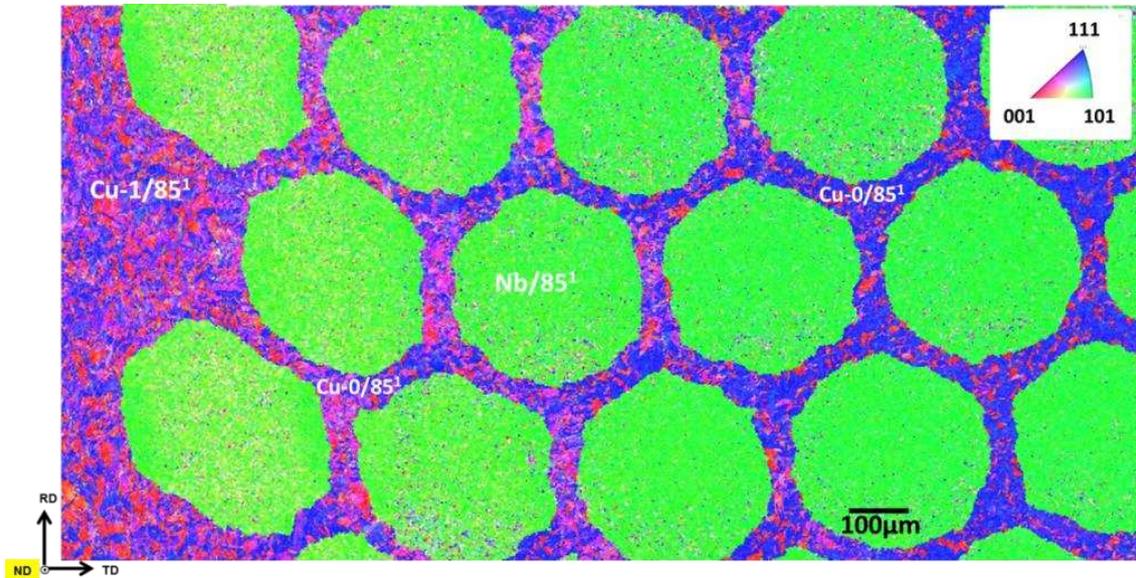
#### III.5.5.1- Résultats pour l'échantillon $N = 85^1$

La figure 3.21 présente la cartographie EBSD obtenue sur un échantillon de diamètre 4,5mm obtenu après un cycle ADB ( $N = 85^1$ ). Les différentes orientations sont visualisées par le triangle standard (identique pour toutes les cartographies de cette section) où les grains de couleurs rouge, bleue et verte correspondent respectivement à des orientations  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 110 \rangle$  ; les orientations intermédiaires sont représentées par des gradients de couleurs. Les scans ont été réalisés avec un pas de  $1\mu m$ . Cette cartographie présente trois couleurs prédominantes : bleu, rouge et vert faisant référence aux trois composantes de texture majoritaires des Cu/Nb (cf. paragraphe III.4.3); c'est-à-dire  $\langle 111 \rangle_{Cu}$ ,  $\langle 100 \rangle_{Cu}$  et  $\langle 110 \rangle_{Nb}$ . Les petites zones dans le niobium qui ne sont pas orientées  $\langle 110 \rangle$  sont probablement dues à des artefacts ou ont été mal indexées et ne sont pas prises en compte dans les analyses. Les joints de grains ont été définis suivant le critère de désorientation supérieur ou égal à  $5^\circ$ . Le niobium est quasiment texturé à 100% avec une taille moyenne de grains d'environ  $4,5\mu m$ . Le Cu-0/85<sup>1</sup> présente deux composantes de texture :  $\langle 111 \rangle$  et

<sup>11</sup> Le taux de déformations cumulées est défini par :  $\eta = \ln(S_0/S_f)$  où  $S_0$  et  $S_f$  sont respectivement les sections du matériau au début de l'élaboration (assemblage  $n = 0$ ) et au stade de l'élaboration considéré.

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

$\langle 100 \rangle$  dans des proportions relatives d'environ 78% et 22% respectivement. La taille distribution de taille de grains du Cu-0/85<sup>1</sup> est extrêmement large et couvre un domaine allant de 3 $\mu\text{m}$  à 18 $\mu\text{m}$ . Il est alors difficile de calculer une taille moyenne ayant un sens physique. Pour la gaine extérieure (Cu-1/85<sup>1</sup>), on retrouve les deux composantes  $\langle 111 \rangle_{\text{Cu}}$  et  $\langle 100 \rangle_{\text{Cu}}$  dans des proportions relatives de 62% et 38% respectivement. Les cartographies des deux phases, les figures de pôles et les distributions des tailles de grains sont données dans l'annexe III.A.

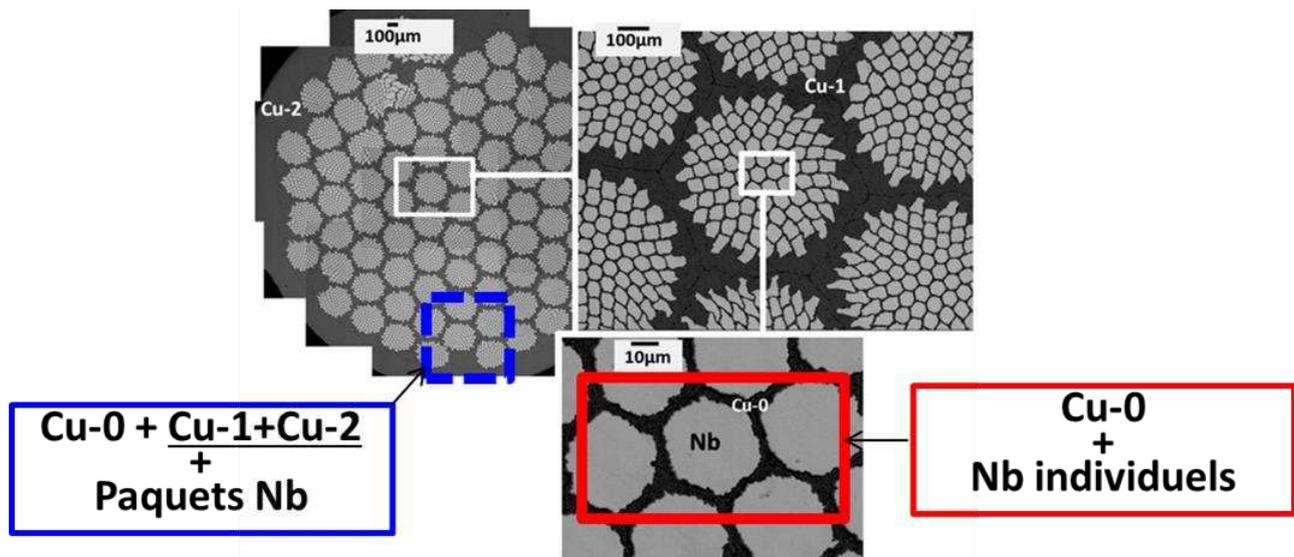


**Figure 3. 21** : Cartographie suivant la direction normale (ND) de l'échantillon N = 85<sup>1</sup>. Le code couleur (triangle standard) permet de visualiser les composantes de texture.

### III.5.5.2- Résultats pour l'échantillon N = 85<sup>2</sup>

Les cartographies EBSD de l'échantillon N = 85<sup>2</sup> ont été réalisées en utilisant le MEB conventionnel JEOL 6100. En raison des difficultés liées à la préparation des surfaces et des caractéristiques intrinsèques de la microstructure (densité de dislocations relativement élevée dans certains canaux de cuivre), les cartographies ont été obtenues séparément comme illustré à la figure 3.22. Afin de garantir la fiabilité des résultats, on a travaillé à forte tension (25kV) afin d'augmenter le volume local diffractant et à fort courant de sonde avec un temps d'acquisition long pour chaque diagramme. Pour optimiser la durée déjà longue des scans, les pas ont été aussi adaptés suivant la taille de grains de la zone à cartographier. Les scans effectués dans la zone composite (Cu-0+Nb) ont été obtenus avec un pas de 70nm alors que ceux des zones de Cu-1 et Cu-2 ont été réalisés avec un pas de 1 $\mu\text{m}$ .

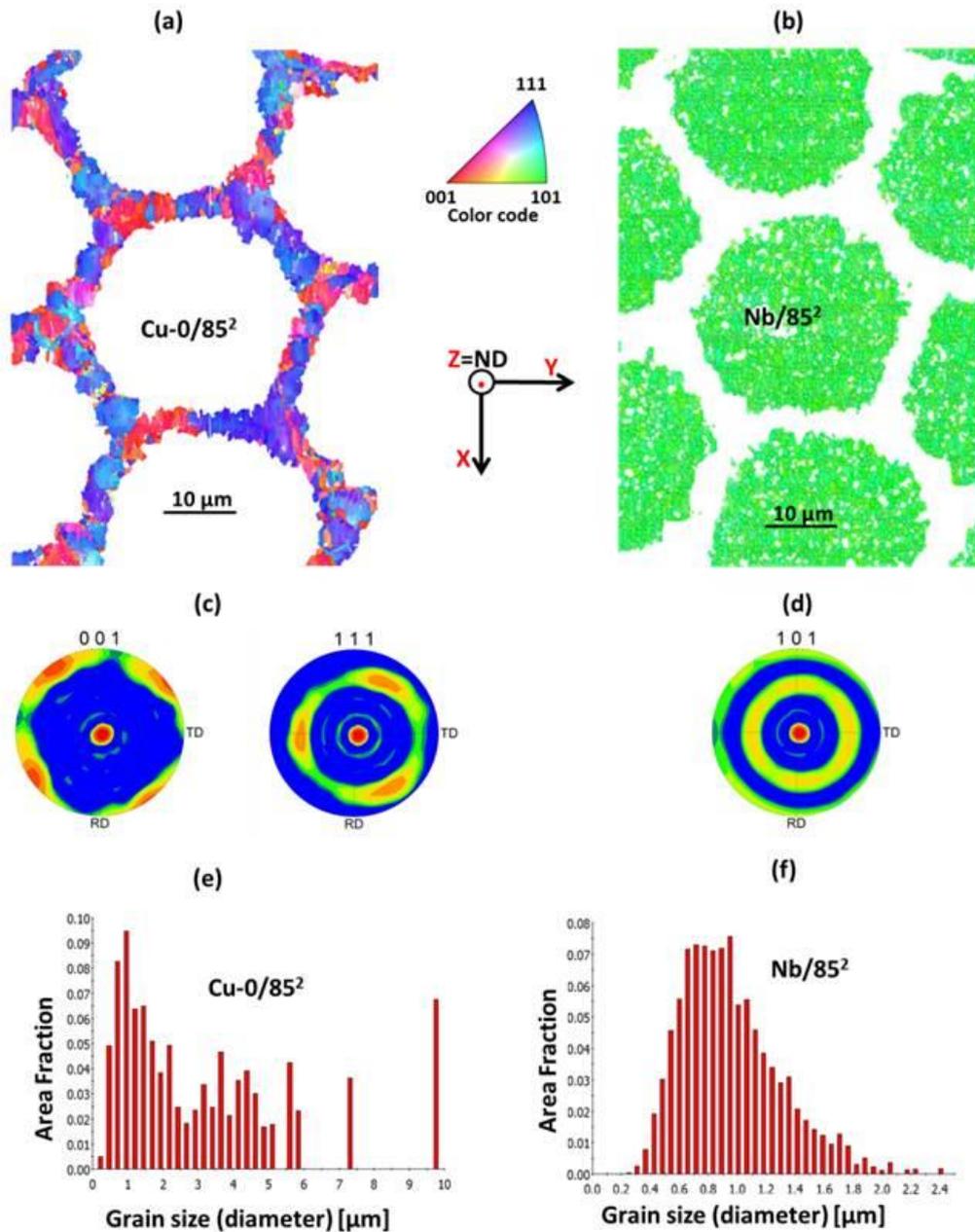
## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F



**Figure 3. 22 :** Image MEB-FEG en mode BSE de l'échantillon N = 85<sup>2</sup> de diamètre 4,5mm. La zone délimitée par le rectangle en trait continu correspond à une zone constituée de Cu-0 et de renforts individuels de Nb et celle délimitée par le rectangle en traits discontinus correspond à une zone de Cu-0, Cu-1, Cu-2 et Nb (les scans réalisés sur cette zone visent les canaux de Cu-1 et Cu-2).

Les résultats EBSD correspondant aux scans réalisés dans la zone composée du Cu-0 et de renforts individuels de Nb (délimitée par le rectangle rouge en trait continu) sont présentés à la figure 3.23. Les cartographies d'orientations (cf. figures a et b) ont été obtenues suivant la normale à la section transverse du fil (ND). Les joints de grains sont définis suivant un critère [5°-180°], c'est-à-dire que toute désorientation comprise dans cet intervalle est considérée comme étant un joint de grain. Sur la cartographie du Cu-0, on retrouve deux couleurs prédominantes : bleu et rouge. Le Cu-0 présente donc deux composantes majoritaires de texture  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$  pour des proportions relatives  $\langle 111 \rangle / \langle 100 \rangle$  de 70%/30%. Le niobium, texturé à 100%, présente une composante unique de texture  $\langle 110 \rangle$ . Les figures de pôles (figures c et d) des deux phases mettent en évidence des textures de fibre. Les distributions des tailles de grains sont données aux figures 3.23 (e) et (f) respectivement pour le Cu-0 et le Nb. La taille moyenne des grains du Cu-0 est d'environ 3µm alors que la taille moyenne des grains du niobium est de 1µm environ. On remarque une distribution bimodale (voire multimodale) pour le cuivre et une distribution monomodale pour le niobium.

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

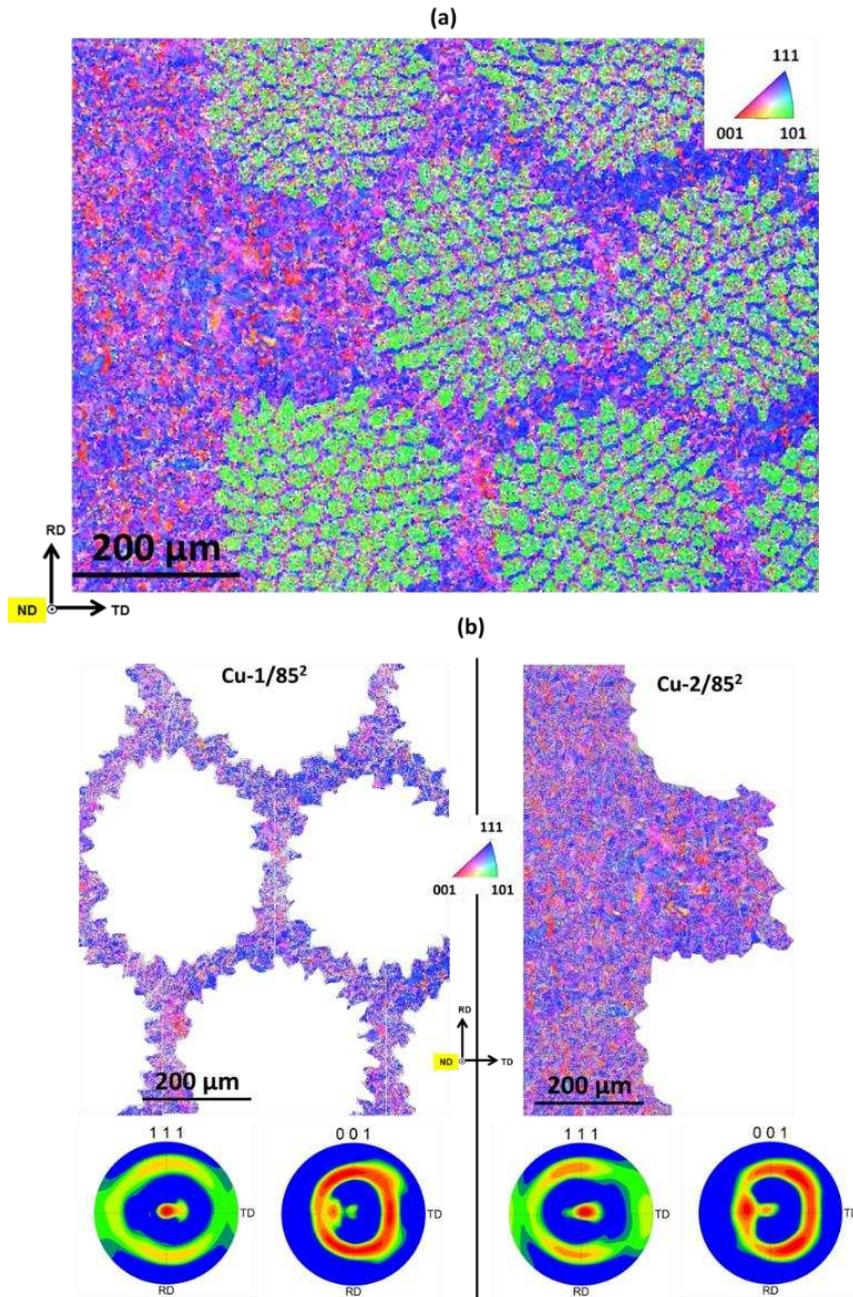


**Figure 3. 23 :** Résultats EBSD de la zone composite composée de Cu-0 et de renforts individuels Nb : cartographies d'orientation du Cu-0 (a) et de Nb(b) ; figures de pôles  $\langle 100 \rangle$ Cu,  $\langle 111 \rangle$ Cu (c) et  $\langle 110 \rangle$ Nb (d) ; distributions des tailles de grains de Cu-0 (e) et Nb (f).

L'analyse de la texture locale des canaux de cuivre Cu-1 (ceux entourant les paquets de 85 filaments de Nb et les Cu-0) et de Cu-2 (la gaine de cuivre extérieur) a été effectuée sur la zone délimitée par le rectangle (bleu) en traits discontinus dans la figure 3.22. La cartographie EBSD de cette zone, incluant les renforts de Nb et des canaux de Cu-0, est présentée à la figure 3.24a. Les Cu-1 et Cu-2 étant les zones d'intérêt (les scans sur Cu-0 et Nb ont été obtenus précédemment avec un pas de 70nm), les scans ont été réalisés avec un pas de 1μm ; ce qui nous a permis de gagner du temps sur la durée déjà assez longue de l'obtention des diagrammes de diffraction. La figure 3.24b présente les cartographies (extraites de la figure 3.24a) et les figures de pôles des canaux de Cu-

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

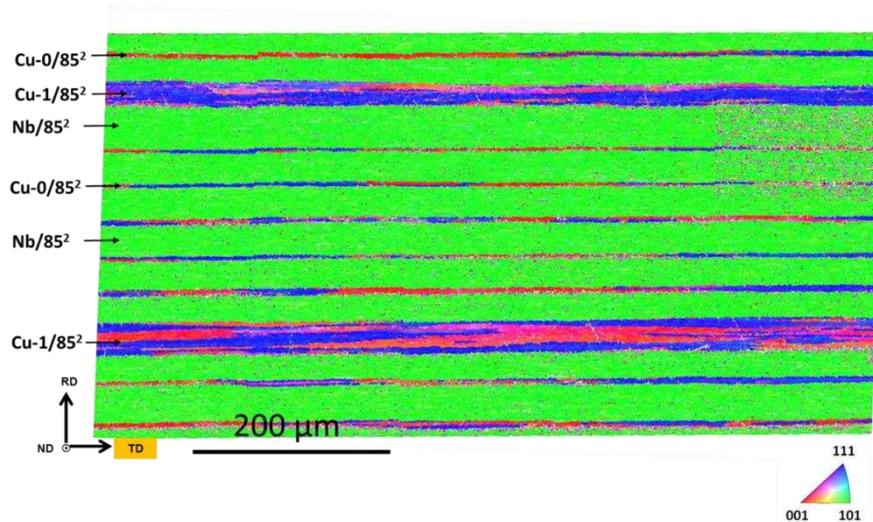
1/85<sup>2</sup> et Cu-2/85<sup>2</sup>. On y retrouve les deux mêmes composantes de texture de fibre mais dans des proportions différentes : pour le Cu-1/85<sup>2</sup>, les proportions relatives sont de 90% <111> et 10% <100> ; pour le Cu-2/85<sup>2</sup> (cuivre extérieur) les proportions sont 81% <111> et 19% <100>.



**Figure 3. 24 :** (a) cartographies d'orientation suivant ND effectuées avec un pas de 1μm dans la zone incluant les canaux Cu-1 et Cu-2 extérieur de l'échantillon N = 85<sup>2</sup> ; (b) cartographies et figures de pôles correspondant aux Cu-1/85<sup>2</sup> et Cu-2/85<sup>2</sup>.

La figure 3.25 présente une cartographie d'orientation obtenue sur une coupe longitudinale de l'échantillon N = 85<sup>2</sup> dans une zone composée de Nb, Cu-0 et Cu-1 ; cette cartographie est effectuée avec un pas de 0,5μm, suivant l'axe du fil, c'est-à-dire, suivant la direction TD. On retrouve les mêmes composantes de texture : la composante unique <110> du niobium et les deux composantes <111> et <100> du cuivre dans quasiment les mêmes proportions relatives que celles des cartographies obtenues en coupe transverse.

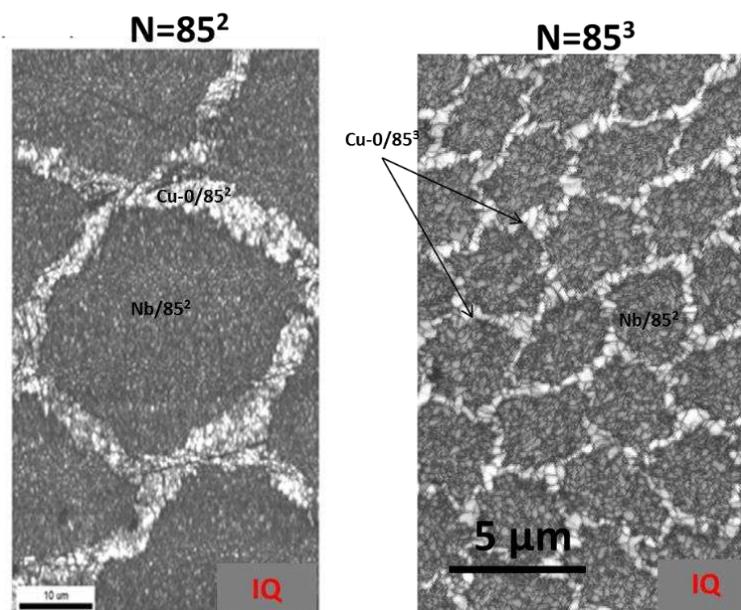
## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F



**Figure 3. 25 :** Cartographie d'orientation suivant TD d'une coupe longitudinale de l'échantillon  $N = 85^2$  de diamètre 4,5mm. Cette cartographie inclue des canaux Cu-0, Cu-1 et des filaments de niobium.

### III.5.5.3- Résultats pour l'échantillon $N = 85^3$

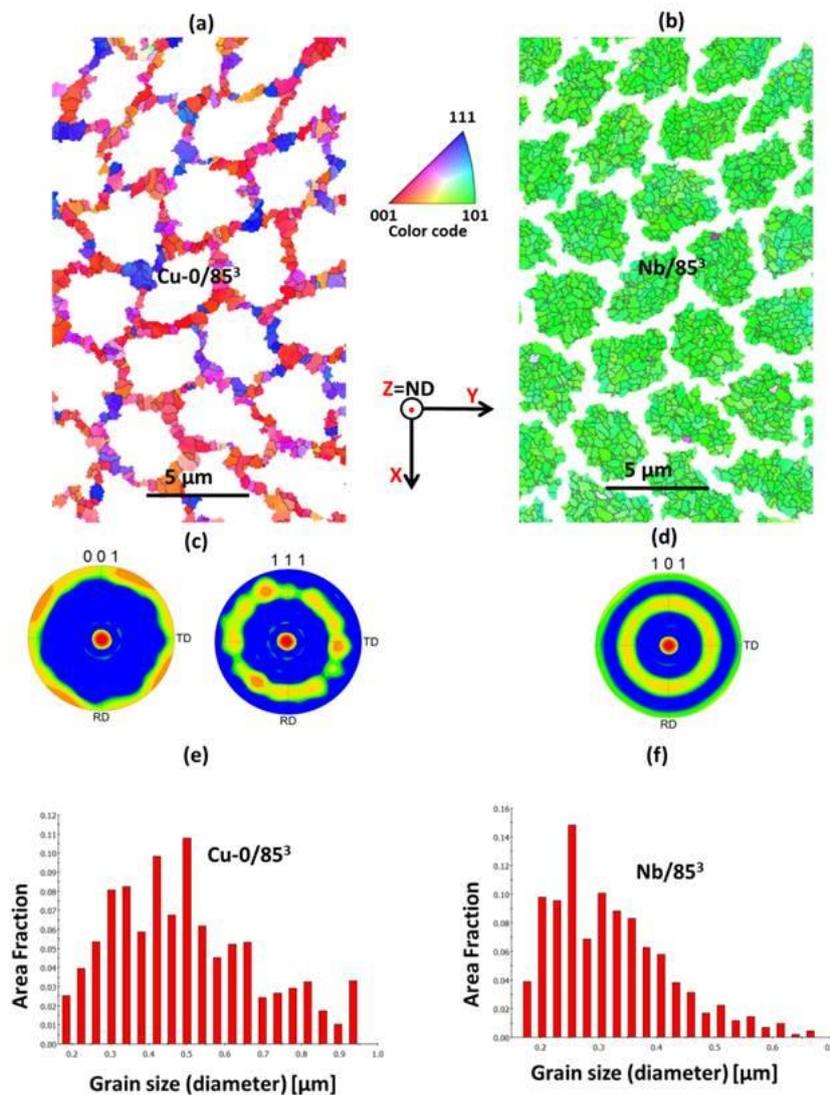
Nous tenons à noter que pour l'échantillon  $N = 85^3$ , la préparation a été moins compliquée du fait de la diminution (ou l'absence) des dislocations à l'intérieur des grains des canaux de cuivre les plus fins. En effet, pour cet échantillon, le taux de déformation cumulée est d'environ 2000% et comme on l'a vu au chapitre I, à ces taux de déformations la microstructure est caractérisée par de cellules de dislocations enchevêtrées, stables et très bien organisées avec très peu de dislocations dans les grains. Ceci se manifeste donc par une meilleure qualité de diffraction de l'échantillon  $N = 85^3$  par rapport à l'échantillon  $N = 85^2$ ; en témoignent les images d'indice de qualité obtenues pour ces deux échantillons (voir figure 3.26). Nous rappelons que ces deux échantillons ont été préparés suivant un même protocole.



**Figure 3. 26 :** Images IQ des échantillons  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ , préparés suivant le même protocole, mettant en évidence une meilleure qualité de diffraction pour l'échantillon  $N = 85^3$ .

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

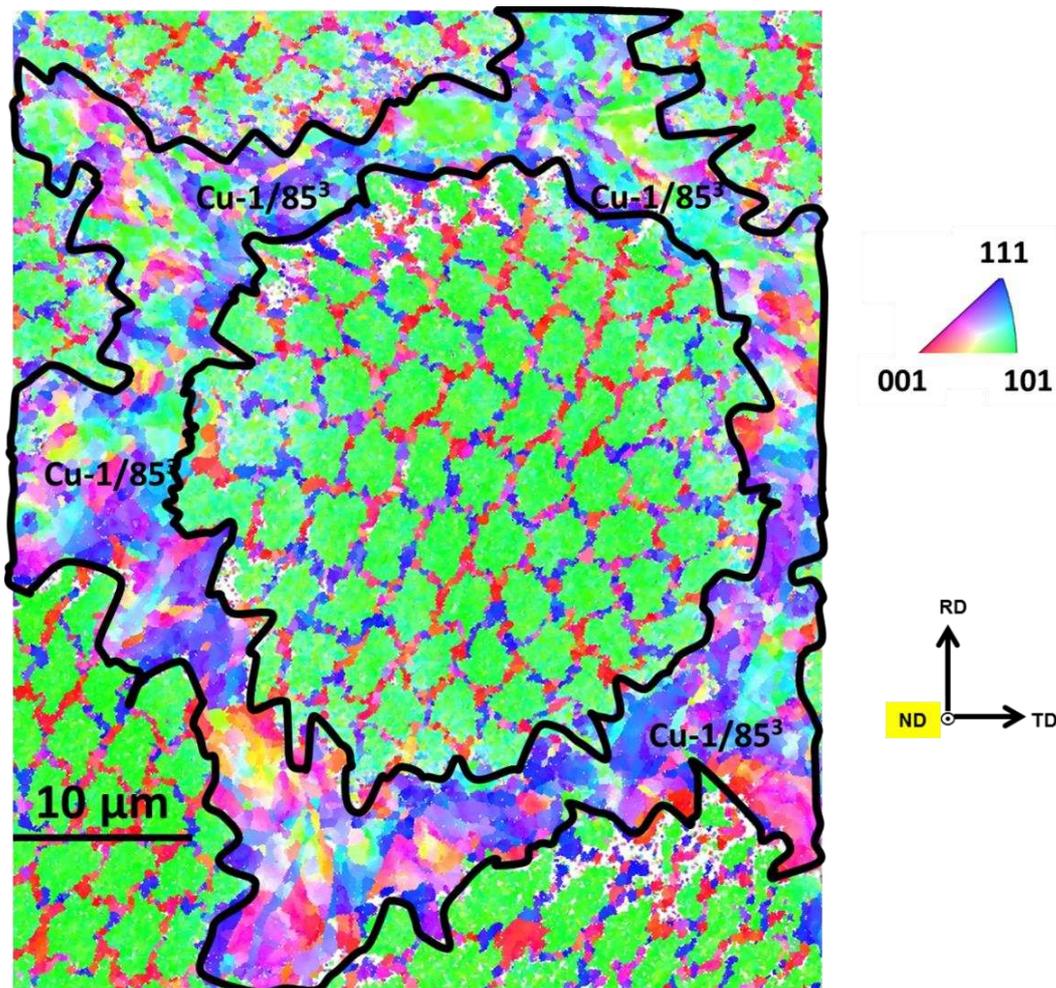
Les analyses EBSD sur une zone composée de Cu-0 et de renforts individuels de Nb sont regroupées à la figure 3.27. Le niobium (Nb/85<sup>3</sup>), texturé à 100%, présente une composante unique de texture de fibre <110> (cf. figures 3.27 b et d) pour une taille moyenne de grains d'environ 0,3µm (figure 3.27f). Les canaux de cuivre Cu-0/85<sup>3</sup> ont les mêmes composantes de texture de fibre les Cu-0/85<sup>1</sup> et Cu-0/85<sup>2</sup>, c'est-à-dire <111> et <100>. En revanche, on observe une complète inversion de tendance en ce qui concerne les proportions relatives des deux composantes de texture. Pour rappel, les proportions relatives <111>/<100> sont de 72% / 28% pour le Cu-0/85<sup>1</sup> et 70% / 30% pour le Cu-0/85<sup>2</sup>. Pour le Cu-0/85<sup>3</sup>, elles sont de 28% <111> et 72% <100>. La supériorité de la fraction volumique de la composante <100> par rapport à la composante <111> peut être visualisée sur la cartographie du Cu-0/85<sup>3</sup> de la figure 3.27a où l'on voit que la majorité des grains sont de couleur rouge. La figure 3.26(e) présente la distribution de la taille des grains du Cu-0/85<sup>3</sup> où la taille moyenne des grains Cu-0 passe de 16µm pour l'échantillon N = 85<sup>1</sup> à 3µm pour l'échantillon N = 85<sup>2</sup> pour atteindre 0,5µm pour l'échantillon N = 85<sup>3</sup>.



**Figure 3. 27 :** Résultats EBSD de la zone composite composée de Cu-0 et de renforts individuels Nb : cartographies d'orientation du Cu-0 (a) et de Nb(b) ; figures de pôles <100>Cu, <111>Cu (c) et <110>Nb (d) ; distributions des tailles de grains de Cu-0 (e) et Nb (f).

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

Les résultats des trois autres canaux de cuivre (Cu-1, Cu-2, Cu-3) de l'échantillon N = 85<sup>3</sup> sont présentés à la figure 3.29. Le Cu-1/85<sup>3</sup> a été extrait de la cartographie de la figure 3.28, cette cartographie ayant été obtenue dans une zone composée de filaments Nb/85<sup>3</sup>, de Cu-0/85<sup>3</sup> et de Cu-1/85<sup>3</sup> avec un pas de 70nm. Les canaux de Cu-2/85<sup>3</sup> et la couronne extérieure Cu-3/85<sup>3</sup> ont été obtenus par des scans d'un pas de 1µm sur une zone similaire à celle délimitée par les traits discontinus de la figure 3.22, mais sur un échantillon N = 85<sup>3</sup>. Les trois canaux de cuivre de l'échantillon présentent les deux composantes majoritaires de texture :  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$  avec des proportions relatives similaires de 80%  $\langle 111 \rangle$  et 20%  $\langle 100 \rangle$ . Cependant le Cu-1/85<sup>3</sup> présente une distribution globale de texture très complexe avec la présence de composantes intermédiaires de types  $\langle 101 \rangle$  et  $\langle 211 \rangle$ .



**Figure 3. 28** : Cartographie EBSD obtenue sur l'échantillon N = 85<sup>3</sup> visant à caractériser la texture des canaux Cu-1/85<sup>3</sup> (délimité par les contours en noir). Pas des scans : 70nm.

# Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

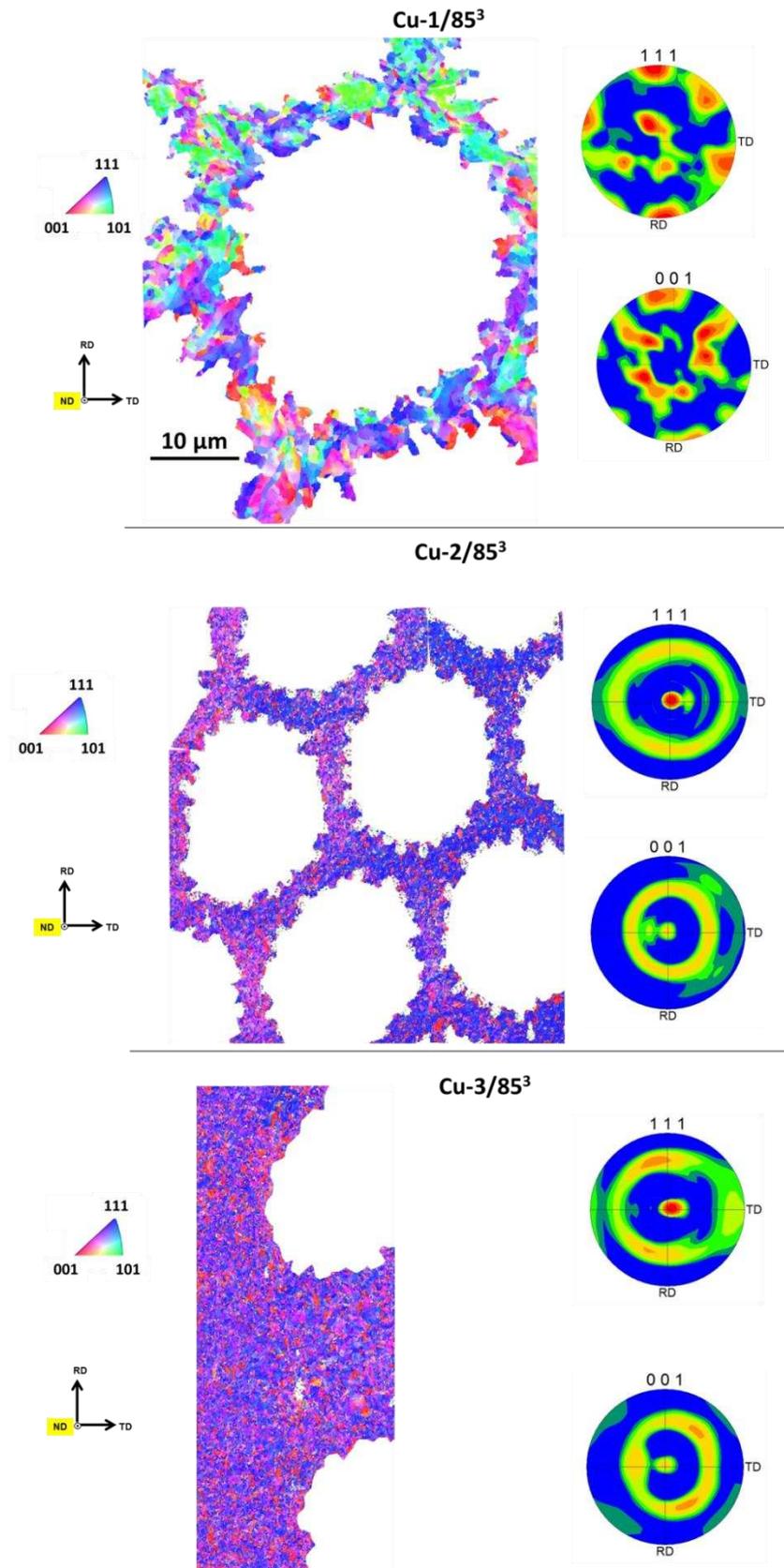
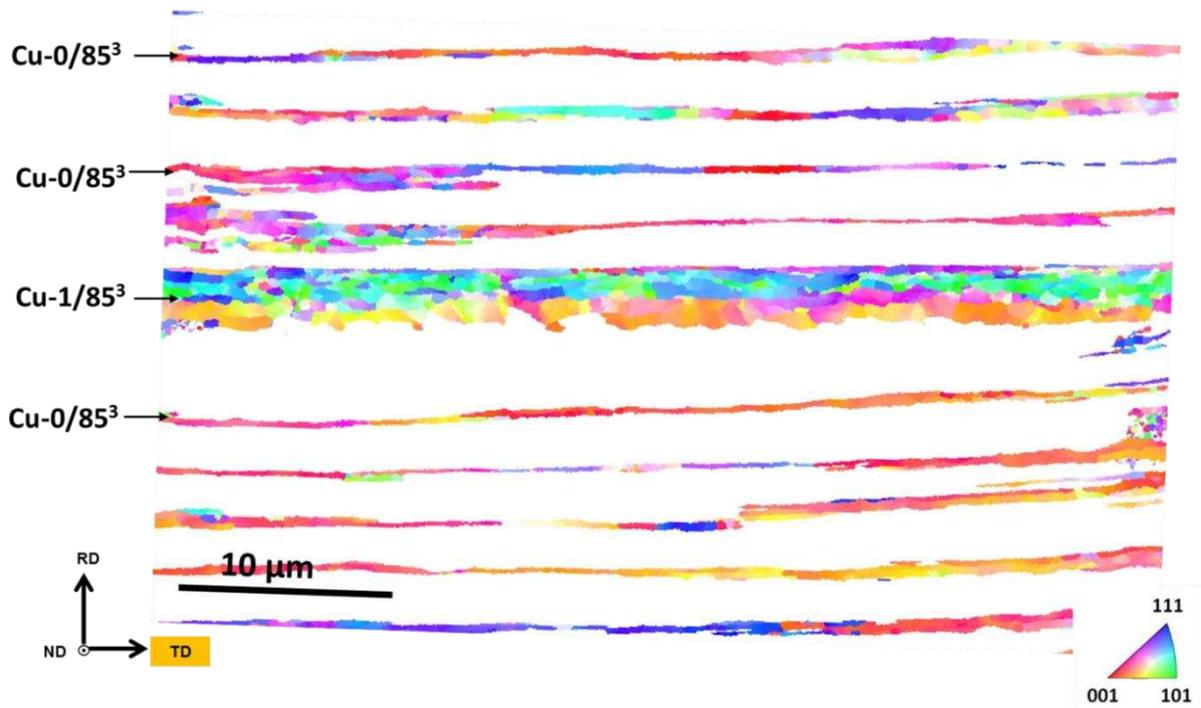


Figure 3. 29 : Cartographies EBSD et figures de pôles des canaux de Cu-1/85<sup>3</sup>, Cu-2/85<sup>3</sup>, Cu-3/85<sup>3</sup>.

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

Une cartographie d'orientation obtenue avec un pas de 70nm des canaux Cu-0 et Cu-1 sur une coupe longitudinale de l'échantillon N = 85<sup>3</sup> est présentée à la figure 3.30. Les canaux Cu-0/85<sup>3</sup> présentent les mêmes composantes de texture et dans des proportions relatives similaires à celles obtenues sur les coupes transverses, c'est-à-dire, 71% <100> et 29% <111>. Le Cu-1/85<sup>3</sup> présente lui aussi les composantes habituelles <111> et <100> mais celle-ci semblent localisées au voisinage avec les filaments de Nb, tandis que l'intérieur du canal Cu-1/85<sup>3</sup> semble plus disparate, avec des orientations intermédiaires de type <110> et <211>. Cette stratification pourrait avoir à faire avec la présence des interfaces Cu-Nb, stables : des composites lamellaires Cu/Nb obtenus par laminage intensif (ARB) ont montré que des relations d'orientation spécifiques apparaissent avec le cumul de déformation [14, 16 - 22]. Nous reviendrons à ces aspects plus loin.

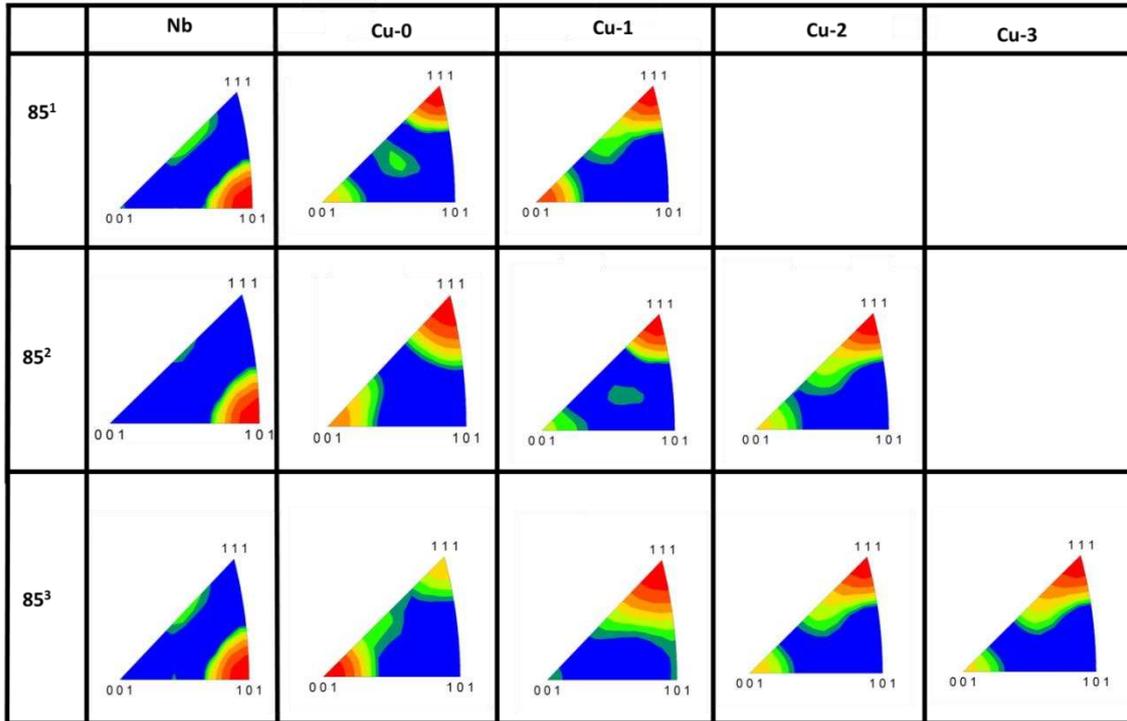


**Figure 3. 30 :** Cartographie d'orientation suivant TD des canaux Cu-0/85<sup>3</sup> et Cu-1/85<sup>3</sup> obtenue avec un pas de 70nm sur une coupe longitudinale de l'échantillon N = 85<sup>3</sup>.

### III.5.5.4- Résumé des résultats EBSD

Le tableau III.6 présente les figures de pôles inverses obtenues par EBSD sur les trois échantillons où l'on peut observer qualitativement les variations des proportions des composantes locales de texture du cuivre avec les cycles ADB.

# Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F



**Tableau III. 1 :** Tableau récapitulatif montrant les variations des composantes de texture locale du cuivre avec le nombre de cycles ADB.

## III.6- Comparaison DRX/EBSD

La texture du niobium n'évolue pas avec l'affinement de la microstructure, car dès l'échantillon N = 85<sup>1</sup>, il présente une composante unique <110> avec une fraction quasiment égale à 100%. En revanche, les fractions des composantes de texture du cuivre varient localement en fonction du nombre de cycles ADB. Connaissant les fractions volumiques des différents canaux de cuivre et les proportions des composantes de texture de ces canaux, nous avons calculé la texture globale à partir des proportions locales par la relation :

$$\% \langle \mathbf{hkl} \rangle_{\text{Cu}} = \sum_i^n \% \langle \mathbf{hkl} \rangle_{\text{Cu-i}} \times f_{\text{Cu-i}}$$

Où  $i = 0, 1, 2$  pour l'échantillon N = 85<sup>2</sup> et  $0, 1, 2, 3$  pour l'échantillon N = 85<sup>3</sup>;  $f_{\text{Cu}}$  étant la fraction volumique des canaux de cuivre considérés et  $\langle \mathbf{hkl} \rangle$  est égal à <111> ou <100>.

Les résultats des calculs, en assez bon accord avec les proportions de texture globale obtenue par DRX, sont répertoriés dans le tableau III.7.

Echantillon	Cu-0	Cu-1	Cu-2	Cu-3	Total EBSD	DRX
<b>Composante</b>	<111> / <100>	<111> / <100>	<111> / <100>	<111> / <100>	<111> / <100>	<111> / <100>
<b>N= 85<sup>2</sup></b>	70% / 30%	90% / 10%	81% / 19%	-	<b>81% / 19%</b>	<b>72% / 28%</b>
<b>N = 85<sup>3</sup></b>	28% / 72%	80% / 20%	79% / 21%	80% / 20%	<b>70% / 30%</b>	<b>68% / 32%</b>

**Tableau III. 7 :** Comparaison de la texture globale DRX avec le calcul de la texture totale à partir de la texture locale.

### III.7 – Bilan

- 1- Les études sur la texture globale par DRX ont mis en évidence trois composantes majoritaires de texture dans les composites cuivre/niobium filamentaires : deux composantes  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$  pour le cuivre et une composante unique  $\langle 110 \rangle$  pour le niobium. Une légère variation des proportions des composantes du cuivre est observée entre les deux échantillons étudiés :  $\langle 111 \rangle / \langle 100 \rangle$  : 72%/28% pour  $N = 85^2$  contre 68%/32% pour l'échantillon  $N = 85^3$ .
- 2- Les études de la texture locale par EBSD révèlent les mêmes composantes de texture. Le calcul des proportions globales, en tenant compte des fractions volumiques des différents canaux de cuivre, à partir des textures locales concordent avec les résultats de la texture globale par DRX.
- 3- Cependant, les analyses de texture locale par EBSD ont permis de révéler l'inhomogénéité de texture cristallographique de la matrice de cuivre propre à l'architecture particulière des composites et de la quantifier. Ainsi :
  - ❖ Les proportions des composantes de texture locale des canaux de cuivre les plus fins varient en fonction du nombre de cycles ADB :  
Pour les canaux de cuivre séparant les filaments individuels de niobium (les Cu-0) les fractions relatives des composantes  $\langle 111 \rangle / \langle 100 \rangle$  passent de 72%/28% à 70%/30% de l'échantillon  $N = 85^1$  à l'échantillon  $N = 85^2$  pour une complète inversion 28%/72% pour l'échantillon  $N = 85^3$ .
  - ❖ Sur les coupes longitudinales de l'échantillon  $N = 85^3$ , au niveau du Cu-1, les grains de cuivre (un ou deux au maximum) en contact avec les filaments de Nb sont orientés soit  $\langle 111 \rangle$ , soit  $\langle 100 \rangle$ . Ces grains sont séparés par d'autres grains Cu-1 dont certains ont des orientations intermédiaires de type  $\langle 110 \rangle$  et  $\langle 211 \rangle$ .

Ces grains avec les textures classiques ( $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$ ) au contact du niobium pourraient être une signature de la construction d'interfaces spécifiques dans les Cu/Nb-F, de la même façon que cela a été observé dans des composites Cu/Nb lamellaires.

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

---

### Références

- [1] Jean-Baptiste DUBOIS, Rapport de thèse, «Conducteurs nanocomposites métalliques élaborés par déformation plastique sévère : formation et stabilité thermo-mécanique des nanostructures, propriétés induites,» Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées de l'université de Poitiers, Poitiers, 2010.
- [2] Hans Joachim BUNGE, Claude ESLING, *Texture et anisotropie des matériaux*, Paris: Techniques de l'Ingénieur, 1997.
- [3] M.-H. Mathon, «Caractérisation des textures par diffraction neutronique,» *Collection SFN* , vol. 9, p. 49–64, 2008.
- [4] Nicolas Menguy, cours, *Interaction rayonnement - Matière*, Paris: Université Paris Diderot.
- [5] D. BARBIER, ArcelorMittal, «Apport de la technique EBSD en mécanique des matériaux,» chez *MECAMAT 13*, 2010.
- [6] David Dingley, *Atlas of backscattering Kikuchi diffraction patterns*, Institute of physics publishing, 1995.
- [7] Valerie Randle & Olaf Engler, *Introduction to Texture Analysis: Macrotecture, microtexture & Orientation Mapping*, Boca Raton, FL: CRC PRESS, 2000.
- [8] Anne Guesnier, "Préparation des métaux ferreux pour l'analyse par diffraction des électrons rétrodiffusé (EBSD)", Danemark: Struers A/S Copenhague.
- [9] J. Tiley, C.A. Crouse, A. Shiveley, G.B. Viswanathan, K. Shiveley II, «Novel automatic electrochemical–mechanical polishing (ECMP) of metals for scanning electron microscopy,» *Micron* , vol. 41, p. 615–621, 2010.
- [10] Tao-Chi Liu, Jui-Chao Kuo, Kuo-Jung Chiu, «Novel EBSD preparation method for Cu/Sn microbumps using a focused ion beam,» *Materials Characterization* , vol. 74, p. 42–48, 2012 .
- [11] CHEN Yong-jun, Jarle HJELEN, Hans J. ROVEN, «Application of EBSD technique to ultrafine grained and nanostructured materials processed by severe plastic deformation: Sample preparation, parameters optimization and analysis,» *Trans. Nonferrous Met. Soc. China*, vol. 22, pp. 1801-1809, (2012) .
- [12] Aurélie GODON, Rapport de thèse, «Relations Structure/Composition/Propriétés de revêtements électrodéposés de nickel de taille de grain nanométrique,» Université de La Rochelle, La Rochelle, 2010.
- [13] Chao Voon S. Lim, «Length Scale Effect on the Microstructural Evolution of Cu layers in a Roll-bonded CuNb Composite,» Carnegie Mellon University, 2008.
- [14] Jonathan E. LeDonne, Rapport de thèse, «Characterization of Bulk Lamellar Accumulative Roll Bonded

## Chapitre III : Caractérisation microstructurale des Cu/Nb-F

---

(ARB) Cu-Nb Composites across the Length Scale,» Carnegie Mellon University, 2012.

- [15] Romain Galand, Rapport de thèse, «Caractérisation physique de la microstructure des interconnexions avancées Cu/Low-K pour l'étude des défaillances par électromigration,» Université de Grenoble, Grenoble, 2011.
- [16] J. Zhou, R.S. Averback, P. Bellon, «Stability and amorphization of Cu–Nb interfaces during severe plastic deformation: Molecular dynamics simulations of simple shear,» *Acta Materialia* , vol. 73 , p. 116–127, 2014.
- [17] P. Bellon et al., «Microstructural evolution of nanolayered Cu–Nb composites subjected to high-pressure torsion,» *Acta Materialia* , vol. 72, p. 178–191, 2014.
- [18] HAYRIYE ELVAN EKIZ, Rapport de thèse, «Microstructural Evolution and phase stability of Cu/Nb nanolaminates subjected to severe plastic deformation by high pressure torsion,» University of Illinois at Urbana-Champaign, Urbana, Illinois, 2014.
- [19] Jason R. Mayeur, Irene J. Beyerlein, Curt A. Bronkhorst and Hashem M. Mourad, «The Influence of Grain Interactions on the Plastic Stability of Heterophase Interfaces,» *Materials* , vol. 7, pp. 302-322, 2014.
- [20] Nathan A. Mara, Irene J. Beyerlein , «Interface-dominant multilayers fabricated by severe plastic deformation: Stability under extreme conditions,» *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.* , 2015.
- [21] Irene J. Beyerlein, Jason R. Mayeur, Shijian Zheng, Nathan A. Mara, Jian Wang and Amit Misra, «Emergence of stable interfaces under extreme plastic deformation,» *PNAS*, vol. 111, p. 4386–4390, 2014 .
- [22] S.J. Zheng et al., «Plastic instability mechanisms in bimetallic nanolayered composites,» *Acta Materialia* , vol. 79, p. 282–291, 2014.

**CHAPITRE IV : DEFORMATION IN-SITU  
COUPLEE A LA DIFFRACTION DES**

### Table des matières

<b>Chapitre IV : déformation in-situ des composites cuivre/niobium filamenteux (Cu/Nb-F) couplée à la diffraction des neutrons et des rayons X.</b> .....	<b>116</b>
<b>IV.1- Introduction</b> .....	<b>116</b>
<b>IV.2- Le neutron : caractéristiques et propriétés</b> .....	<b>116</b>
IV.2.1- Interaction neutron-matière.....	116
<b>IV.3- Production et classification des neutrons</b> .....	<b>117</b>
<b>IV.4- Quelques applications des neutrons</b> .....	<b>118</b>
<b>IV-5 : Essais de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons</b> .....	<b>119</b>
IV-5.1 : Dispositif expérimental .....	120
IV-5.1.1- Le diffractomètre .....	121
IV-5.1.2- La machine de traction .....	123
IV-5.1.3- Les détecteurs bidimensionnel et ponctuel.....	124
IV-5.1.4- Déroulement des essais .....	125
IV-5.2- Comportement mécanique des familles de grains .....	126
IV-5.3- Exploitation des données de diffraction .....	127
IV-5.4- Calcul de la déformation locale.....	129
<b>IV.6- Résultats</b> .....	<b>130</b>
IV.6.1- Résultats de l'échantillon $N = 85^2$ / Essai réalisé avec le détecteur 2D .....	132
IV.6.2- Résultats des échantillons $N = 85^2$ et $N = 85^3$ / Essais réalisés avec le détecteur ponctuel. ....	133
<b>IV.7- Essai de déformation in-situ couplés à la diffraction des rayons X</b> .....	<b>136</b>
IV.7.1- Le rayonnement synchrotron .....	136
IV.7.2- Dispositif expérimental .....	137
<b>IV.7.3- Traitement des données</b> .....	<b>138</b>
<b>IV.7.4- Résultats</b> .....	<b>139</b>
<b>IV.8- Bilan</b> .....	<b>144</b>
<b>Références</b> .....	<b>145</b>

### Chapitre IV : déformation in-situ des composites cuivre/niobium filamentaires (Cu/Nb-F) couplée à la diffraction des neutrons et des rayons X.

#### IV.1- Introduction

Les propriétés mécaniques à l'échelle macroscopique des matériaux polycristallins dépendent, dans une large mesure, de leur microstructure. Une connaissance des phénomènes de déformation à l'échelle granulaire est donc indispensable à la compréhension des propriétés mécaniques macroscopiques du matériau. En effet, la réponse d'un matériau polycristallin soumis à une sollicitation extérieure est fonction des contraintes et des déformations qui se développent au sein des cristallites le constituant. Un grain se déforme non seulement en fonction de son orientation cristallographique (selon par exemple la loi de Schmid) mais aussi de celles de ses voisins (par effet de compatibilité de déformation entre grains). Ainsi, la connaissance de la déformation des grains en fonction de leurs orientations se révèle très importante à la compréhension du comportement macroscopique. Et ces données expérimentales deviennent indispensables lorsque l'on veut développer des modèles mécaniques prédictifs. Les rayonnements neutronique et synchrotron (rayons X de forte énergie), grâce à leur pénétration, peuvent traverser la matière et fournir des informations locales sur la structure et les propriétés de cette dernière. Ce chapitre est donc consacré à l'étude de la déformation des familles de grains des conducteurs micro-et nano-composites Cu/Nb-F par des expériences de déformation in-situ couplées à la diffraction des neutrons et du rayonnement synchrotron.

Après une présentation succincte de la production et l'utilisation des neutrons en diffraction, le chapitre se poursuit par l'analyse de deux essais de déformations uni-axiales sur deux composites Cu-Nb de même diamètre (2 mm) mais à différentes étapes du procédé ADB ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ). Ensuite, l'analyse d'un essai de déformation uni-axiale réalisé in situ en diffraction X sur un échantillon  $N = 85^3$  mais de diamètre beaucoup plus faible (0,3 mm) est présentée.

#### IV.2- Le neutron : caractéristiques et propriétés

Les neutrons sont des particules neutres, il n'existe donc pas d'interaction de nature coulombienne entre eux et les particules chargées. Ils n'interagissent (interaction forte) qu'avec les noyaux atomiques via des forces nucléaires. De section efficace faible, ils sont très pénétrants. Le neutron possède aussi un moment magnétique dipolaire négatif qui est sensible à des champs magnétiques intenses. A un neutron de vitesse  $v$ , on associe une onde plane de longueur d'onde  $\lambda$ . Le neutron (comme le photon et l'électron) peut donc être considéré, à la fois, soit comme une onde, soit comme une particule en fonction du formalisme utilisé. Une description détaillée des caractéristiques du neutron est donnée dans [1, 2].

##### IV.2.1- Interaction neutron-matière

L'interaction du neutron (ou d'un faisceau de neutrons), que l'on qualifie d'interaction forte, peut prendre deux formes en fonction des réactions qui s'y produisent : on parlera d'absorption lorsque qu'il cède toute son énergie au milieu et de diffusion lorsqu'il garde une partie ou la totalité de son énergie après avoir traversé la matière. La diffusion est inélastique s'il cède une partie de son énergie au milieu, elle est élastique lorsqu'il traverse le milieu en conservant toute son énergie ;

dans ce dernier cas, un phénomène de diffraction, régit par la loi de Bragg évoquée au chapitre précédent, peut avoir lieu.

### IV.3- Production et classification des neutrons

En plus de l'énergie libérée lors des réactions nucléaires, la fission (ou la fusion) peut produire un ou plusieurs neutrons. La fission de l' $^{235}\text{U}$  par exemple peut libérer deux ou 3 neutrons. Et, lorsque l'on est en présence d'un nombre important de noyaux d'uranium 235, les neutrons libérés ayant subi une diminution de vitesse (par chocs successifs avec d'autres noyaux) peuvent à leur tour provoquer la fission d'autres noyaux et ainsi de suite. Il en résulte une réaction en chaîne (cf. figure 4.1) où le nombre de fissions augmente rapidement avec le temps.

Les 2,5 neutrons produits en moyenne par la réaction de fission de l' $^{235}\text{U}$  ont une énergie de l'ordre de 2MeV (deux millions d'électronvolt) [3]. Cette énergie est bien trop élevée pour pouvoir être utilisée en physique de la matière condensée. En effet, l'utilisation d'une telle énergie risque d'endommager l'échantillon à analyser. Les neutrons utilisés doivent aussi avoir une longueur d'onde du même ordre de grandeur que les distances interatomiques ( $0,5\text{\AA} < \lambda < 10\text{\AA}$ ) ; ce qui correspond à une gamme d'énergie de 0,82meV à 328meV (comparable aux excitations élémentaires de la matière). Il est donc nécessaire de ralentir les neutrons produits par la fission. Pour ce faire, on utilise un modérateur constitué d'un matériau à atome léger (eau, graphite, béryllium...). Les neutrons de fission sont alors ralentis par chocs successifs avec les atomes du modérateur et terminent avec une énergie comparable à celle des atomes de ce dernier, soit 0,025eV pour un modérateur à 300K. Des canaux sont plongés dans le modérateur pour récupérer les flux de neutrons.

Les sections efficaces d'interaction du neutron varient très rapidement avec leur énergie et ce dernier va interagir, selon son énergie, différemment avec la matière. Pour certaines expériences par exemple, des neutrons de plus faible ou de plus forte énergie sont requis. On utilise donc des modérateurs secondaires tels que l'hydrogène liquide à 20K pour les ramener à une énergie d'environ 0,001 eV ou un bloc de graphite chauffé à 1400K pour obtenir des neutrons avec une énergie d'environ 1 eV.

Les neutrons sont classés en plusieurs catégories, pour des considérations d'ordre pratique, selon leur énergie. Un classement non exhaustif de ces derniers en fonction des énergies est donné dans le tableau IV.1.

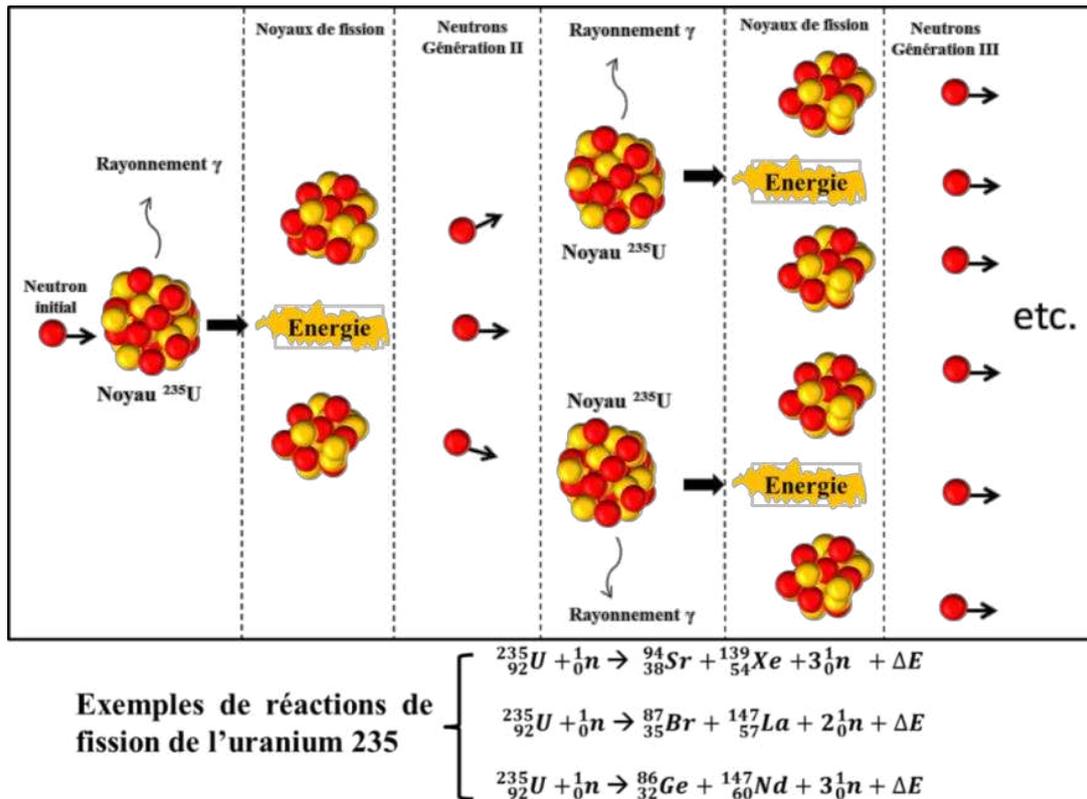


Figure 4. 1 : Schéma de la réaction de fission en chaîne de l'uranium 235.

Catégorie	Energie
Ultra froids	< 100 neV
Froids	100neV - 25 meV
Thermiques	≈ 25 meV
Epithermiques	0,5 eV – 50 keV
Intermédiaires	50 keV – 1MeV
Rapides	1MeV – 20MeV
Relativistes	> 20MeV

Tableau IV. 1 : Classification des neutrons selon leur énergie cinétique [4]

#### IV.4- Quelques applications des neutrons

Quelques années après la découverte du neutron par James Chadwick (1932), Frédéric Joliot et al (1939) montrent la possibilité d'une réaction en chaîne avec les neutrons produits lors d'une réaction de fission. Dès lors, l'idée d'exploiter l'énergie de fission pour la production d'électricité a été admise. Cependant, dans le contexte de la deuxième guerre mondiale, la crainte d'une utilisation à des fins militaires de la fission en chaîne par l'Allemagne d'Hitler, a mis fin aux recherches sur l'électronucléaire, en France notamment. L'eau lourde récupérée en Norvège par la France a même été cachée en Angleterre et l'uranium au Maroc à la suite de l'invasion allemande de la France en mai-juin 1940. Il a fallu attendre les années 1948 pour voir naître, en France, le premier réacteur nucléaire Zoé. Selon le rapport Elecnucl-2014 du Commissariat à l'Energie Atomique et aux

## **Chapitre IV : Déformation in-situ couplée à la diffraction des neutrons et des RX**

---

Energies Alternatives (CEA), il y a actuellement près de 440 réacteurs électronucléaires en fonction dans le monde dont une centaine au Etats-Unis et 58 en France.

Cependant, entre les années 1943 et 1945, la réaction de fission en chaîne, via le projet « Manhattan » a malheureusement abouti à la bombe A aux Etats-Unis et ses conséquences dramatiques sur Hiroshima et Nagasaki respectivement les 6 et 9 août 1945. A la fin de la deuxième guerre mondiale, malgré l'horreur provoquée à Hiroshima et Nagasaki, la course à l'arme nucléaire s'est poursuivie. Ainsi l'Union Soviétique conçoit et teste sa bombe A en 1949, suivi par le Royaume-Uni en 1952, la France en 1960 et la Chine en 1964.

En médecine nucléaire, les neutrons sont très utilisés, notamment en scintigraphie. Le principe consiste à administrer au patient un radio-traceur (association d'une molécule vectrice et d'un élément radioactif de courte durée de vie) et à imager la fixation de celui-ci sur certaines cellules [5]. On utilise, par exemple, la scintigraphie pour étudier le flux sanguin qui arrive dans le muscle cardiaque, dans l'exploration des maladies coronaires, dans les diagnostics d'embolies pulmonaires et de fractures, fissures ou inflammations du squelette, pour étudier la perfusion du cerveau ou même dans l'étude des maladies dégénératives ou épileptiques. Les neutrons rapides sont aussi employés dans le traitement des tumeurs des glandes salivaires inopérables [6].

Les neutrons sont aussi « largement » utilisés dans le domaine de la recherche scientifique et de la formation. Des années 1945 à nos jours, plus de 600 réacteurs expérimentaux de recherche ou assemblages critiques ont été construits dans le monde [7] dont une cinquantaine avec une puissance supérieure à cinq mégawatts. Les principales applications de ces installations portent sur la recherche en : chimie et matériaux – sciences de l'ingénieur – magnétisme et électronique – liquide et matière molle – physique fondamentale – biologie.

### **IV-5 : Essais de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons**

La diffraction des neutrons au cours de la déformation se révèle un outil parfait pour l'analyse du comportement mécanique de chaque phase des conducteurs composites Cu/Nb-F. La technique de diffraction des neutrons repose sur le même principe de la diffraction des rayons X présentée à la section 2 du troisième chapitre. Cependant, grâce au pouvoir de pénétration des neutrons, lors d'un essai de traction in-situ couplé à la diffraction des neutrons, on a la possibilité de sonder tout le volume de l'échantillon et donc, d'étudier le comportement mécanique de chaque famille de grains pour différentes orientations de l'échantillon. Les essais ont été effectués au Laboratoire Léon Brillouin du site CEA de Saclay. Les microstructures et dimensions théoriques des échantillons testés sont présentées à la figure 4.2 et dans le tableau IV.2 respectivement. A noter que les échantillons caractérisés par EBSD, de diamètre 4,5mm ne pouvant pas être déformés en traction (diamètre trop élevé), les essais in-situ ont été réalisés sur des diamètres de 2mm.

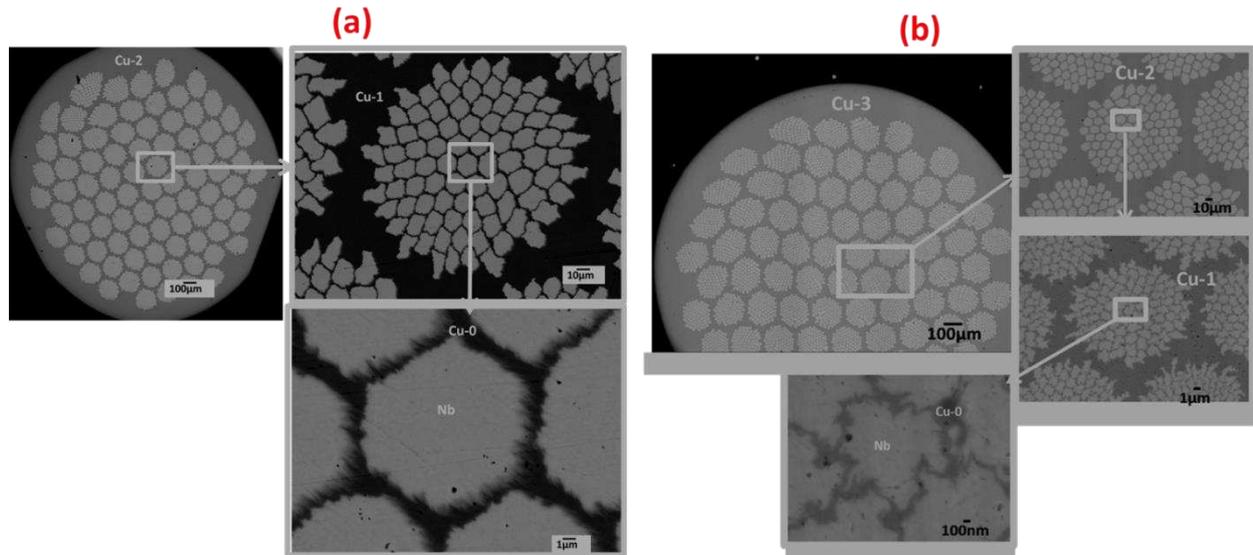


Figure 4. 2 Micrographies MEB-FEG, mode BSE des conducteurs Cu/Nb-F-d = 2mm/coupes transverses : (a)  $N = 85^2$  et (b)  $N = 85^3$ .

Echantillon	$d_{Nb}$ ( $\mu m$ )	$d_{Cu-0}$ ( $\mu m$ )	$d_{Cu-1}$ ( $\mu m$ )	$d_{Cu-2}$ ( $\mu m$ )	$d_{Cu-3}$ ( $\mu m$ )	%Nb	%Cu
$N = 85^2/d=2mm$	14	2,2	22	124,5		45	55
$N = 85^3/d=2mm$	1,22	0,192	1,93	22	124,5	35	65
$N = 85^3/d=0.3mm$	<u>0,172</u>	<u>0,017</u>	<u>0,272</u>	<u>3,09</u>	<u>17,65</u>	<u>35</u>	<u>65</u>

Tableau IV.2: Dimensions théoriques des échantillons pour les tests de traction in-situ couplés à la diffraction des neutrons et des RX.

#### IV-5.1 : Dispositif expérimental

Le LLB dispose d'un réacteur nucléaire (Orphée) d'une puissance de 14 mégawatts dédié exclusivement à fournir des faisceaux de neutrons pour la recherche fondamentale. Orphée est un réacteur de type piscine à réflecteur eau lourde délivrant un flux thermique maximal de neutrons de  $3 \times 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ . Le réacteur contient 9 canaux horizontaux, tangentiels au cœur, dont le « nez » est situé dans le modérateur à proximité du cœur, ils permettent l'utilisation de 20 faisceaux de neutrons (chauds, thermiques et froids) pour alimenter, à travers des guides de neutrons, les 27 spectromètres des aires expérimentales. La figure 4.3 présente le schéma d'une coupe verticale du bloc réacteur.

1. Cœur
2. Réflecteur eau lourde
3. Piscine et canal de transfert
4. Circuit primaire
5. Circuit secondaire
6. Circuit d'eau lourde
7. Mécanisme de commande des barres de contrôle
8. Echangeur
9. Pompe
10. Bâche de vidange
11. Source froide
12. Source chaude
13. Canal tangentiel
14. Hall des expérimentateurs
15. Guide à neutrons
16. Hall pile
17. Protection primaire fixe
18. Monochromateur
19. Protection du monochromateur
20. Spectromètre

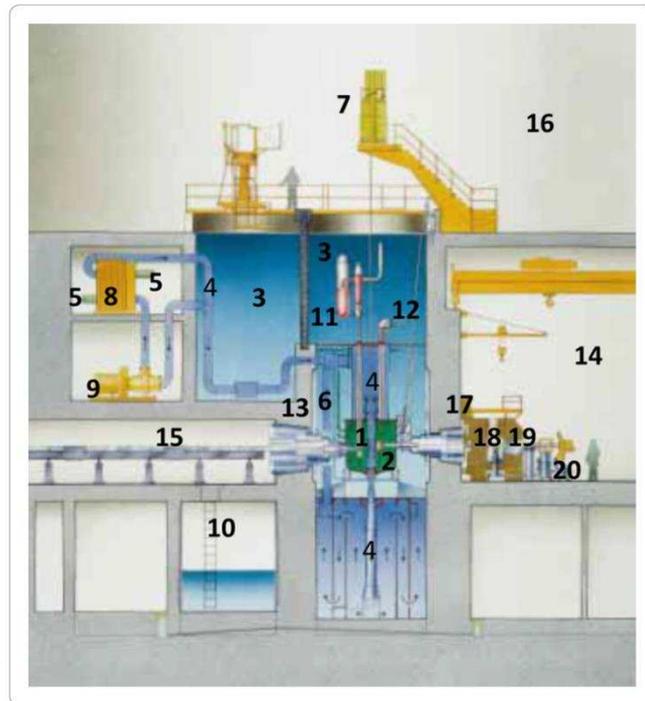


Figure 4. 3: Schéma du bloc réacteur Orphée- coupe verticale.

### IV-5.1.1- Le diffractomètre

Les essais de déformation uni-axiale ont été réalisés sur un diffractomètre 4 cercles, nommé super 6T1, utilisant un faisceau de neutrons thermiques de longueur d'onde  $1,159 \text{ \AA}$  sélectionné par un monochromateur de type Cu (111) pour un angle « take-off » de  $32^\circ$ . En effet, le faisceau incident est souvent très large, le monochromateur permet de concentrer le faisceau et d'augmenter ainsi le flux, de valeur maximale  $10^7 \text{ n. cm}^2. \text{ s}^{-1}$ , sur l'échantillon ; ce flux maximal a une géométrie ajustable par des fenêtres jusqu'à une taille maximale de  $2 \times 2 \text{ cm}^2$ . Le diffractomètre (cf. figure 4.4) comprend un berceau d'Euler (Frank Heydrich  $\text{\O} 400 \text{ mm}$ ), décentré volontairement par rapport au centre du goniomètre, pour faciliter l'installation d'environnements encombrants sur l'axe de l'échantillon. Les déplacements en  $\chi$  et  $\phi$  sont compris respectivement entre  $0$  et  $180^\circ$  et  $0$  et  $360^\circ$  avec une précision de  $0,01^\circ$ . Deux moteurs sont utilisés, selon le poids de l'environnement échantillon, pour la rotation  $\phi$ . Il comprend aussi un monocompteur de type  $^3\text{He}$  pour un domaine angulaire compris entre  $0$  et  $80^\circ$  avec un pas minimum de  $0,02^\circ$  ; et un jeu de collimateurs de divergence comprise entre  $10'$  et  $1^\circ$  est placé devant le détecteur.

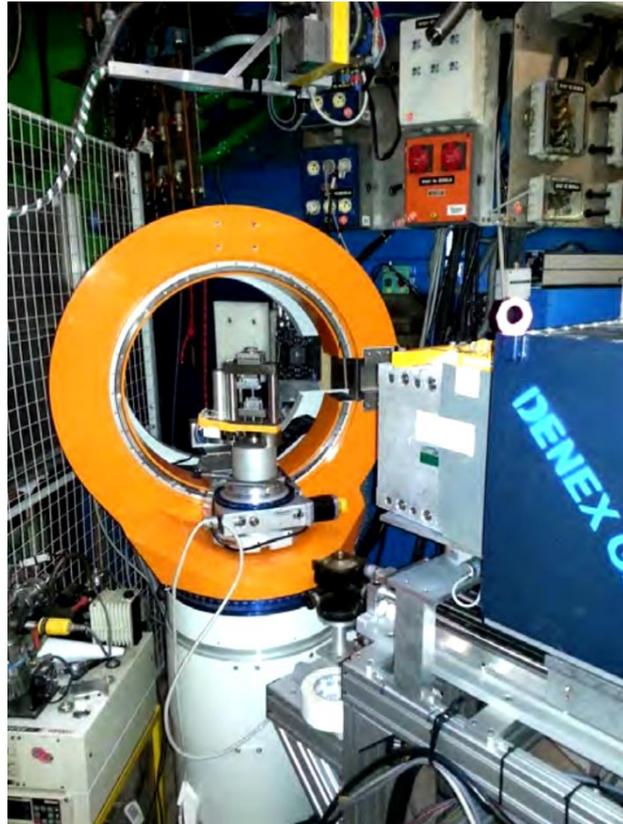


Figure 4. 4: Photo du diffractomètre 4 cercles 6T1 avec la machine de traction.

Le principe de diffraction, avec la définition des angles, est schématisé à la figure 4.5 : les trois cercles portés par  $\omega$ ,  $\chi$  et  $\phi$  permettent d'orienter l'échantillon et le cercle  $2\theta$ , dans le plan vertical, porte le détecteur (figure 4.5a). Les différentes étapes, autour du vecteur de diffusion  $K$ , permettent de ramener le cristal en condition de diffraction (voir figure 4.5b). En effet, une première rotation de l'angle  $\phi$  ( $1 \rightarrow 2$ ) permet d'amener le vecteur d'onde dans un plan tangent à la sphère d'Ewald ; la rotation de  $\chi$  ( $2 \rightarrow 3$ ) permet de ramener le vecteur d'onde dans le plan équatorial tout en restant dans le plan tangent à la sphère d'Ewald ; et la rotation de  $\omega$  ( $3 \rightarrow 4$ ) permet de ramener le cristal en condition de diffraction (en condition de Bragg où  $\omega = \theta$ ).

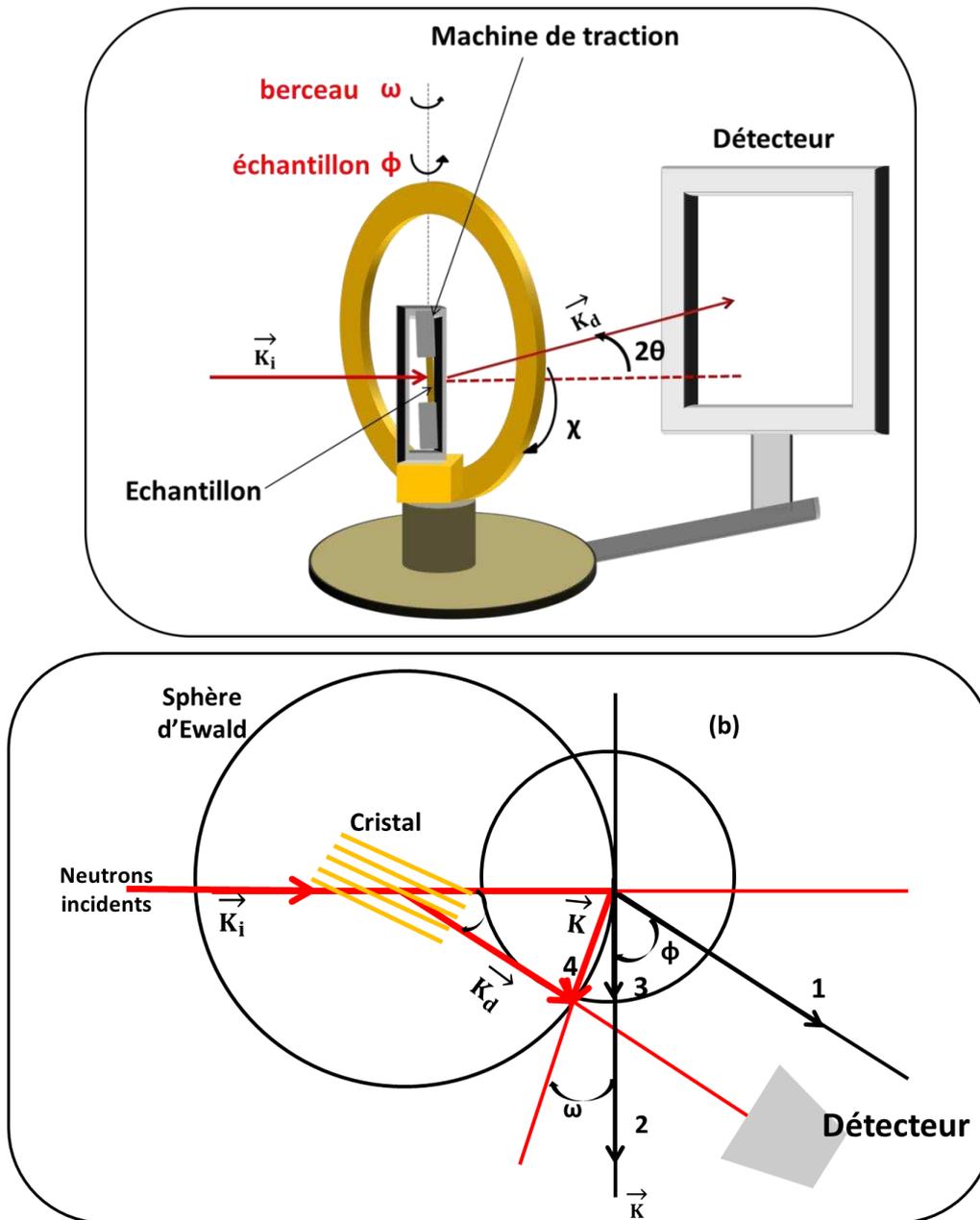
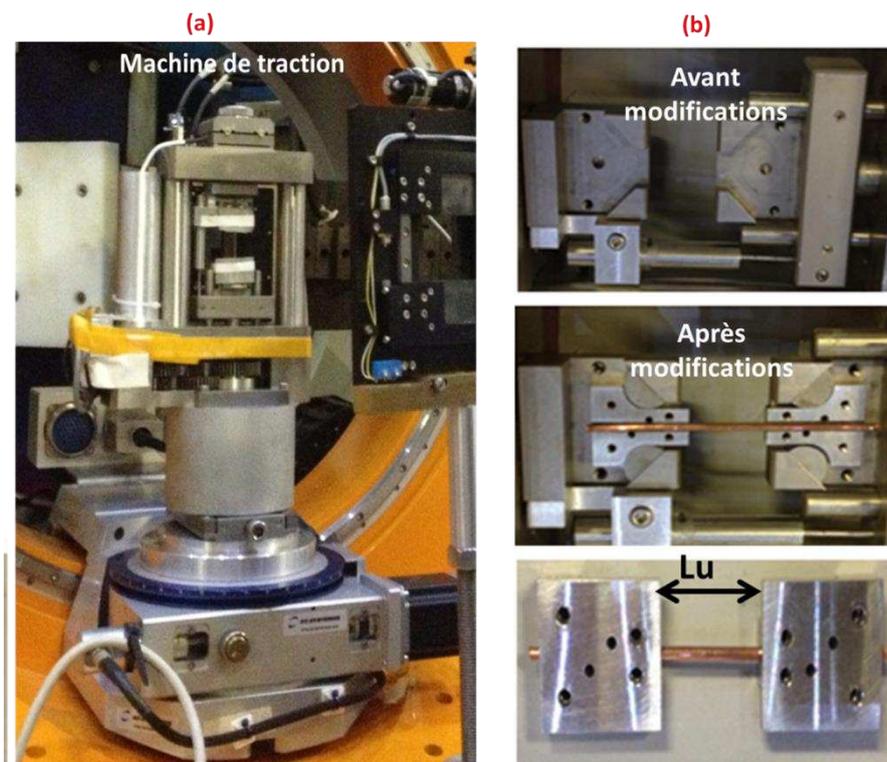


Figure 4. 5: (a) Schéma de principe d'un diffractomètre 4 cercles et (b) Les différentes étapes autour du vecteur de diffusion permettant de ramener le cristal en condition de diffraction.

#### IV-5.1.2- La machine de traction

Les tests de déformation in-situ ont été réalisés à l'aide d'une petite machine de traction uniaxiale, adaptable sur le berceau d'Euler et d'une charge maximale de 30kN. Initialement, la machine a été conçue avec un système de mors adapté aux éprouvettes plates. V. Klosek et son équipe du LLB ont dû modifier le système des mors afin de garantir le non-glissement des fils en cour d'essai. La figure 4.6 regroupe des photos de la machine de traction montée sur le berceau d'Euler (a) et du système de mors avant et après modifications (b). Les modifications apportées (demi-lunes, vis de serrage, goujons de blocage...) permettent d'effectuer des tests uniquement sur des échantillons cylindriques de diamètres 2mm. Les tests ont donc été réalisés à température

ambiante sur deux échantillons dont les caractéristiques sont données dans le tableau IV.2:  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$  obtenus après deux et trois cycles ADB respectivement.



**Figure 4. 6:** (a)Photos de la machine de traction uni-axiale montée sur le berceau du diffractomètre via le berceau d'Euler et (b) du système des mors avant et après modifications. Un échantillon de diamètre 2mm donne une idée des dimensions ( $Lu =$  longueur utile  $\approx 20$ mm).

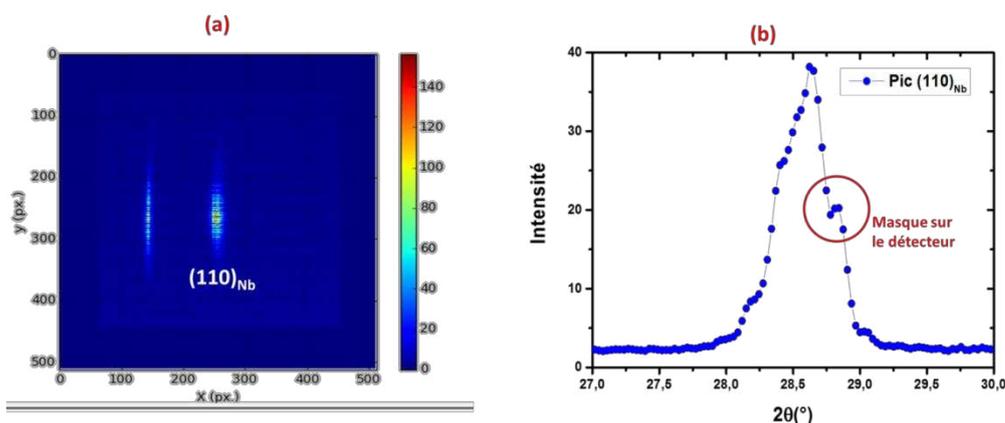
### IV.5.1.3- Les détecteurs bidimensionnel et ponctuel

Après interaction avec les constituants (noyau et/ou spins électroniques) de l'échantillon, certaines caractéristiques (énergie, direction de propagation) du neutron incident varient. Les informations sur l'échantillon sondé sont fournies par l'amplitude de ces changements et par la proportion de neutrons les ayant subis. A la sortie de l'échantillon, la détection du neutron est réalisée à l'aide d'un détecteur de neutrons par la mise en jeu d'une réaction nucléaire, puisque le neutron ne crée pas d'ion sur son passage. Les détecteurs de neutrons fonctionnent, presque tous, suivant le même principe : une chambre remplie d'un gaz absorbe les neutrons « thermiques » en réémettant une particule chargée ; un champ électrique va alors accélérer cette charge qui, en heurtant d'autres atomes du gaz, va les ioniser en produisant des électrons secondaires ; une cathode récolte ces électrons en émettant une impulsion électrique que l'on détecte.

Les essais de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons ont été effectués avec, dans un premier temps, un détecteur 2D à hélium ( $^3\text{He}$ ) fourni par DENEX faisant une surface de  $200 \times 200 \text{ mm}^2$  avec une résolution horizontale de 1 mm et verticale de 2mm. Il est codé en  $256 \times 256$  canaux électroniques (chaque canal fait environ 1mm). Il a un pouvoir de comptage maximal global de  $10^6 \text{ s}^{-1}$  et local de  $10^5 \text{ s}^{-1}$ . Le détecteur est placé à une distance de travail d'environ 90cm par rapport au centre du cercle d'Euler permettant ainsi une couverture angulaire approximative de  $12^\circ$  suivant les directions X et Y : différentes orientations du vecteur de diffraction par rapport au système d'axe de l'échantillon peuvent donc être enregistrées simultanément, comme par exemple des profils complets de pics diffraction avec une résolution d'environ  $0,06^\circ$ . La partie électronique

du détecteur a été développée conjointement par DENEX (Filtres, amplificateurs, discriminateur) et par le LLB (cartes d'acquisition) [8]. Le pilotage et l'acquisition se font par l'intermédiaire d'un environnement linux (Pingouin). L'un des avantages du détecteur 2D, est l'augmentation du volume d'information obtenu en fonction du temps, on peut par exemple mesurer simultanément la déformation d'un échantillon polycristallin pour plusieurs directions de l'échantillon. Ceci se traduit par un gain en termes de temps de comptage d'informations contenues dans les diagrammes de diffraction.

Lors de la première campagne de déformation in-situ réalisée en mai 2014, on a observé un problème de masque au niveau du détecteur 2D. Pour pallier à ce problème, deux mesures, décalées de  $\Delta 2\theta = 0,1^\circ$  ont été faites pour chaque pic de Bragg. Ces pics sont ensuite fusionnés en utilisant la fonction « merging » du programme d'exploitation des données présenté à la section IV.5.3. Une autre campagne a été réalisée en mars 2015 avec, cette fois, quatre mesures décalées de  $\Delta 2\theta = 0,05^\circ$  pour améliorer la correction des problèmes de masquage sur le détecteur 2D sans altérer la forme des pics de Bragg. Un cliché de diffraction de la réflexion  $(110)_{\text{Nb}}$  perpendiculaire à l'axe de traction obtenu avec le détecteur 2D et l'effet de masquage sur les pics de Bragg sont présentés à la figure 4.7. Suite à des problèmes supplémentaires du système électronique, deux campagnes (juin et septembre 2015) ont été réalisées en utilisant un détecteur ponctuel (une seule cellule) à hélium ( $^3\text{He}$ ).



**Figure 4. 7:** (a) Cliché 2D de diffraction centré sur la réflexion  $(110)$  du niobium; (b) pic de diffraction mettant en évidence le problème de masque sur le détecteur 2D.

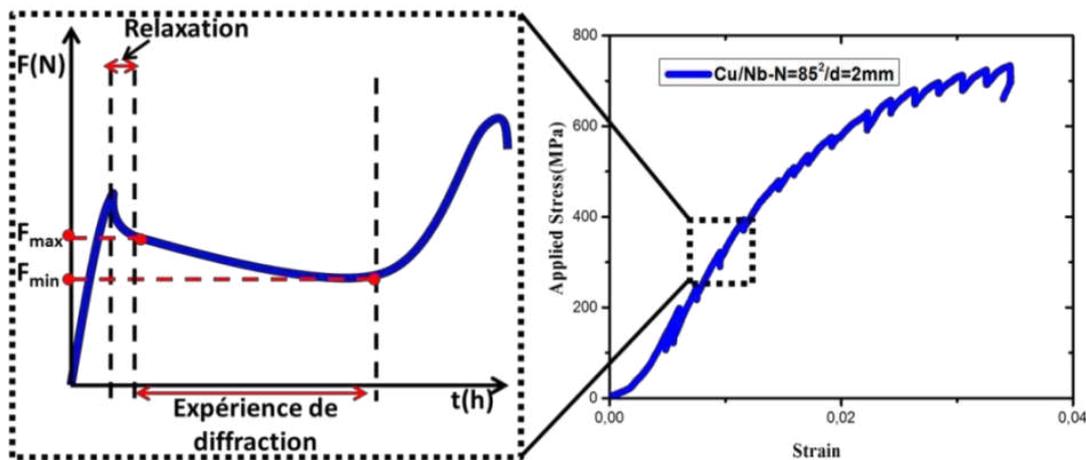
### IV.5.1.4- Déroulement des essais

Les tests de traction sont réalisés par chargements successifs (traction interrompue). La première étape consiste en l'installation de l'échantillon sur la machine de traction avant de la monter sur le cercle d'Euler. Les échantillons font une longueur totale de 60mm pour une longueur calibrée de 20mm environ. L'étape suivante est l'alignement faisceau-échantillon-détecteur. Avant le premier chargement, on lance l'état initial à 10N (environ 3MPa) qui servira de référence pour le calcul de la déformation élastique des différentes familles de plans cristallographiques. La machine de traction est pilotée en déformation (déformation constante pour un état de charge), c'est-à-dire que l'on incrémente des déformations jusqu'à la charge souhaitée ; la vitesse de déplacement des mors est de  $1\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  ce qui correspond à une vitesse de déformation  $\dot{\epsilon}$  d'environ  $5 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ . Après 15 à 20mn de relaxation, on ouvre le faisceau de neutrons pour les expériences de diffraction. Les différentes familles de plans diffractant ainsi que les orientations sont répertoriées dans le tableau

IV.3 et la figure 4.8 schématise l'essai pour un état de chargement. Comme, on peut le remarquer sur la figure, la charge décroît durant la collecte de neutrons, on a donc utilisé la force moyenne pour toutes les courbes charge appliquée - déformation locale présentées dans ce chapitre. Il faut noter que l'on a eu, durant les premiers essais de 2014, des problèmes de glissement des fils dans les mors en cours d'essai. Le système des mors a été retouché avec succès, notamment en les sablant pour augmenter la rugosité, et on a pu effectuer les essais présentés dans ce chapitre sans glissement des fils dans les mors.

Famille de plan	$2\theta$ (°)	$\chi$ (°)		
$(110)_{Nb}$	29	0	60	90
$(111)_{Cu}$	32	0	54,7	70,5
$(200)_{Cu}$	37	0	54,7	
$(211)_{Nb}$	51	30		
$(220)_{Cu}$	54	35,3	90	

**Tableau IV.3:** Familles de plans diffractant présentant des intensités exploitables en fonction des orientations

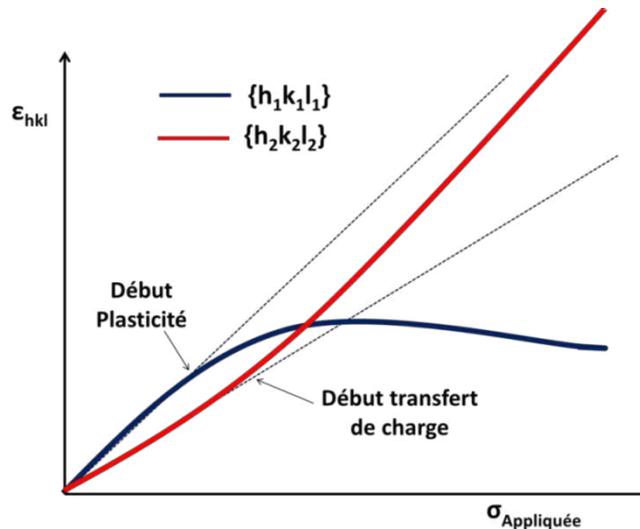


**Figure 4. 8:** Schéma du déroulement de l'essai de déformation in-situ pour un état de chargement (à droite, la courbe macroscopique avec tous les états de charge obtenue sur l'échantillon  $N = 85^2/d=2mm$ ).

### IV.5.2- Comportement mécanique des familles de grains

Un essai de traction in-situ sous faisceau de neutrons ou de rayons X permet, entre autres, d'analyser le comportement mécanique individuel des différentes familles de grains ayant satisfait la loi de Bragg. Nous rappelons que, par ces techniques, seules les déformations élastiques sont mesurables ; les informations sur le régime plastique sont contenues essentiellement dans la forme des pics de Bragg (moments d'ordre II et III). En effet, sous l'action de la charge appliquée, les familles de grains vont réagir différemment. Pour un matériau monophasé par exemple, les familles de grains plastifient en fonction, notamment, de leur facteur de Schmid et leur module d'élasticité (en iso-déformation, les plans de module d'élasticité plus élevé supportent plus de contrainte et donc, plastifient les premiers). Les familles ayant plastifié ne pouvant plus supporter un incrément de charge, celle-ci se transfère alors vers les familles qui sont encore dans leur régime élastique induisant ainsi un changement de pente du domaine élastique. Ce principe est illustré par un schéma à la figure 4.9 avec les familles  $\{h_1k_1l_1\}$  et  $\{h_2k_2l_2\}$ . En effet, l'écart à la linéarité puis la stagnation de la déformation élastique pour la famille  $\{h_1k_1l_1\}$ , nous indique que celle-ci atteint le régime

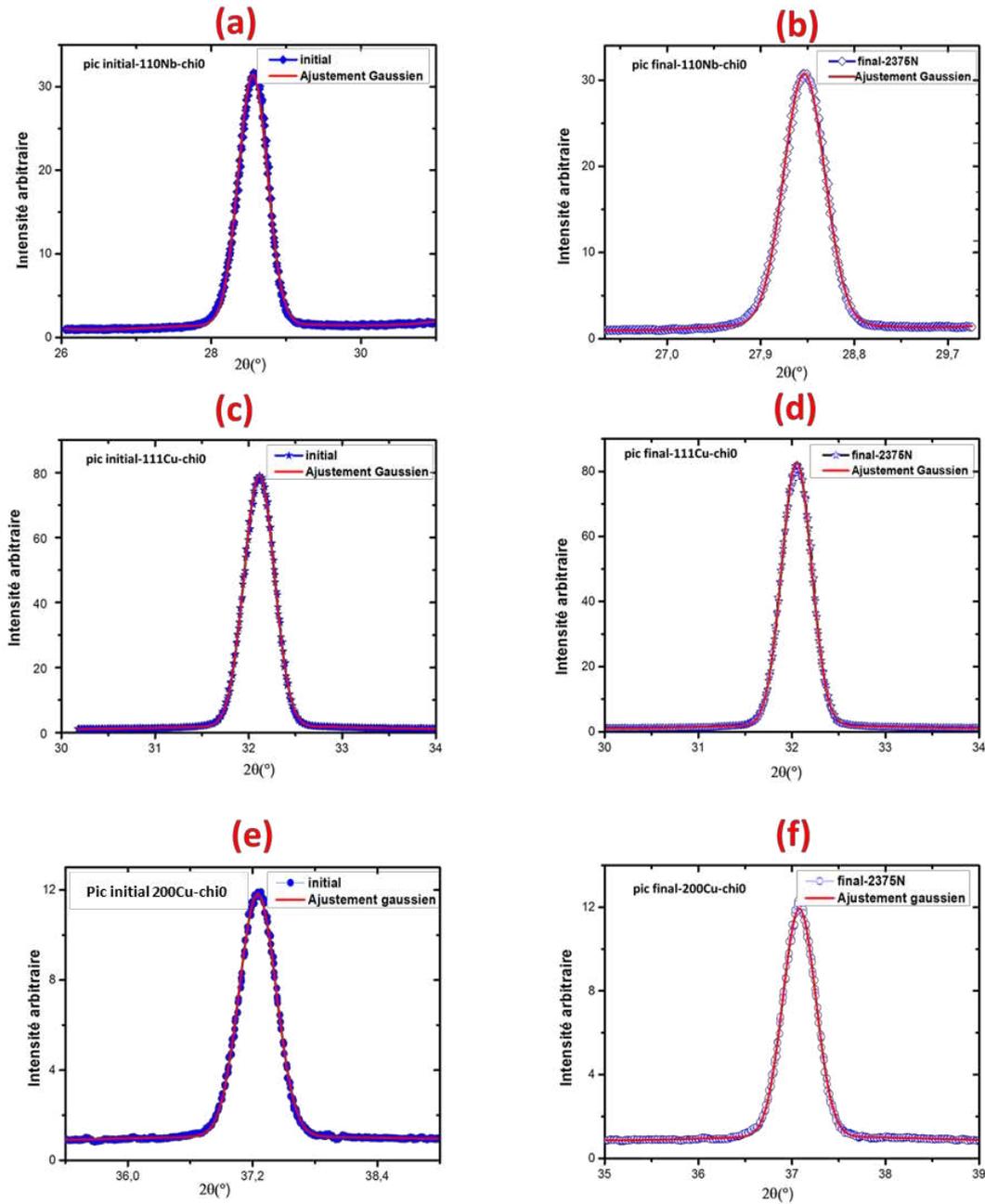
plastique. Simultanément le transfert de charge s'effectue sur la famille  $\{h_2k_2l_2\}$  qui reste dans le domaine élastique (déformation croissante et changement de pente). Nous rappelons que ce principe reste aussi valable dans le cas des matériaux multiphasés (les composites Cu/Nb présentés dans ce manuscrit, par exemple).



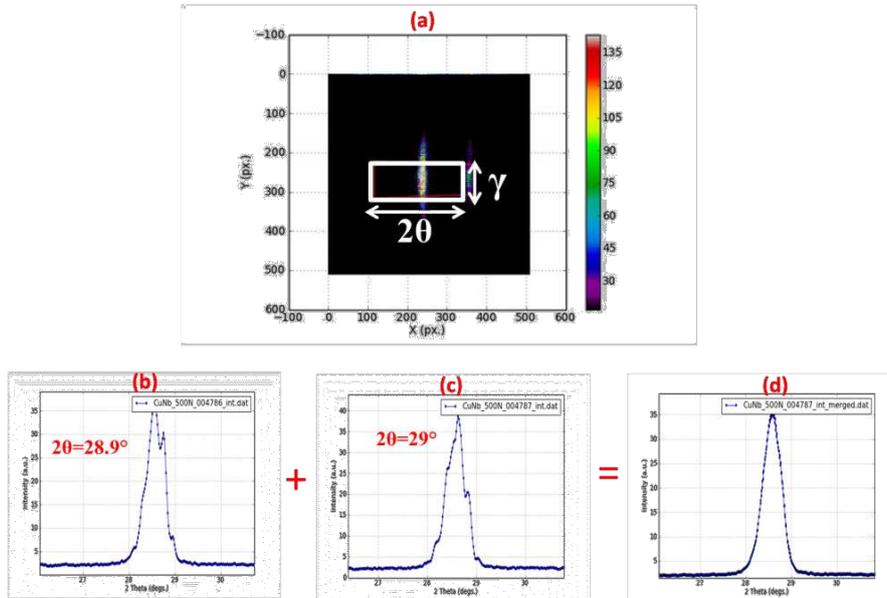
**Figure 4. 9:** Schéma illustrant les Comportements mécaniques de deux familles de grains  $\{h_1k_1l_1\}$  et  $\{h_2k_2l_2\}$  mettant en évidence les phénomènes de plasticité et de transfert de charge lors d'un test de déformation in-situ.

### IV.5.3- Exploitation des données de diffraction

Pour le traitement des données (détecteurs 2D et ponctuel) de diffraction in-situ, DataGuinz, un programme mis au point par le LLB, a été utilisé. DataGuinz utilise le langage python avec trois principales bibliothèques : 1- Scipy qui est une collection d'algorithmes mathématiques et de fonctions pratiques pour la manipulation et la visualisation des données, 2- Numpy est le package pour le calcul scientifique fournissant un objet multidimensionnel et divers objets dérivés (tableaux et matrices masquées...) ainsi qu'un assortiment de routines pour les opérations rapides sur les tableaux, les fonctions mathématiques (transformées de Fourier discrètes, algèbre linéaire, opérations statistiques de base...); 3- Matplotlib permet de faire des plots bidimensionnels. On a donc utilisé DataGuinz pour convertir, corriger, intégrer (intégration azimutale) les clichés de diffraction ainsi que pour l'ajustement des pics de diffraction. Les pics de Bragg étant quasi-symétriques du premier chargement ( $F=500N$ ) au dernier ( $F = 2375N$ ) (voir figure 4.10), on a donc choisi, parmi les différentes options pour l'ajustement disponibles dans DataGuinz, une fonction gaussienne pour l'ajustement individuel des pics. Nous rappelons que les pics individuels obtenus lors de ces essais (voir figures 4.18 et 4.19) sont principalement dus à la forte texturation des conducteurs Cu/Nb-F. Dans DataGuinz les calculs d'erreur sont faits de façon classique par la méthode des moindres carrés avec un « poids » affecté à chaque point (Weighted Least Squares Refinement, en anglais). Plus l'erreur sur le point est grande, plus le poids est faible (et donc moins le point a d'influence sur l'ajustement). A partir des incertitudes sur la position des pics, l'erreur sur la déformation (estimée par la méthode logarithmique) se situe autour de 4%. L'écart-type sur l'intensité d'un point constituant un pic est calculé arbitrairement en prenant la racine carrée de l'intensité. Un exemple des différentes étapes du traitement des données expérimentales sur DataGuinz est illustré à la figure 4.11.



**Figure 4. 10:** Pics de diffractions correspondant aux trois composantes majoritaires de texture d'un Cu/Nb-F ( $d = 2\text{mm}$   $N = 85^2$ ) pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction ( $\chi = 0^\circ$ ) ajustés par une gaussienne : (a) et (b) chargements initial et final des familles  $\{110\}_{\text{Nb}}$  - (c) et (d) chargements initial et final des familles  $\{111\}_{\text{Cu}}$  - (e) et (f) chargements initial et final des familles  $\{200\}_{\text{Cu}}$ .



**Figure 4. 11:** Etapes du traitement des données de diffraction des neutrons sur DataGuinz : (a) cliché de diffraction montrant la forte texturation des Cu/Nb et la zone d’intégration en blanc,  $2\theta$  et  $\gamma$  sont les paramètres d’intégration (b) et (c) pics de Bragg décalés de  $\Delta 2\theta = 0,1^\circ / 28,9^\circ$  et  $29^\circ$  respectivement (d) résultat de la fusion des deux pics.

#### IV.5.4- Calcul de la déformation locale

Les déformations élastiques d’une famille de plans cristallins peuvent être mesurées par le déplacement des pics de diffraction de l’échantillon lorsque celui-ci est soumis à une charge. En effet, lorsqu’une contrainte extérieure est appliquée sur un échantillon, la distance inter-réticulaire  $d_{hkl}$  des familles de plans  $\{hkl\}$  varie plus ou moins en fonction de la direction d’application de la charge et donc, la position angulaire  $2\theta$  de la raie de diffraction aussi. Pour des plans perpendiculaires à l’axe de traction ( $\chi = 0^\circ$ ), la distance inter-réticulaire des plans augmente et la position angulaire diminue ; le pic de diffraction se déplace alors vers les valeurs décroissantes en  $2\theta$ . A l’inverse, lorsque l’on sonde des plans parallèles à l’axe de traction ( $\chi = 90^\circ$ ), la distance inter-réticulaire diminue et le pic se déplace suivant des valeurs croissantes de la position angulaire  $2\theta$ . La figure 4.12 illustre les déplacements des pics (110) du niobium pour des plans perpendiculaires et parallèles à l’axe de traction sous l’influence de deux états de charge ( $F_{\text{initial}} = 500\text{N}$  et  $F_{\text{final}} = 2375\text{N}$ ) d’un échantillon de diamètre 2mm obtenu après deux cycles ADB ( $N = 85^2$ ). Le barycentre (pics symétriques du début à la fin des chargements) est utilisé pour l’étude du comportement mécanique des familles de grains.

Les différentes valeurs de  $2\theta$  sont obtenues en ajustant les pics avec une fonction gaussienne. En effet, une loi de distribution gaussienne est caractérisée par sa valeur maximale  $Y_M$ , son espérance mathématique (sa valeur centrale  $X_c$ ) et par son écart type  $\sigma$ , pour une fonction  $y(x)$ , elle est décrite par l’équation ci-dessous :

$$y(x) = \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{x-x_c}{\sigma}\right)^2}, \text{ A étant l'aire de la section de la distribution}$$

En diffraction, on utilise la largeur à mi-hauteur  $H$  (FWHM, full-width at half-maximum en anglais) en lieu et place de l’écart-type. Pour un pic de diffraction  $p$ ,  $Y_M$  correspond à l’intensité maximum  $I_p$  et  $X_c$ , l’angle de Bragg  $2\theta$ . L’expression analytique de l’ajustement gaussien utilisé pour les pics de diffraction prend la forme :

$$y(2\theta) = \frac{2A}{H} \left( \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \right) e^{-4\ln 2 \left( \frac{2\theta - 2\theta_c}{H} \right)^2} ; \text{ avec } H = (\sqrt{8\ln 2}) \sigma$$

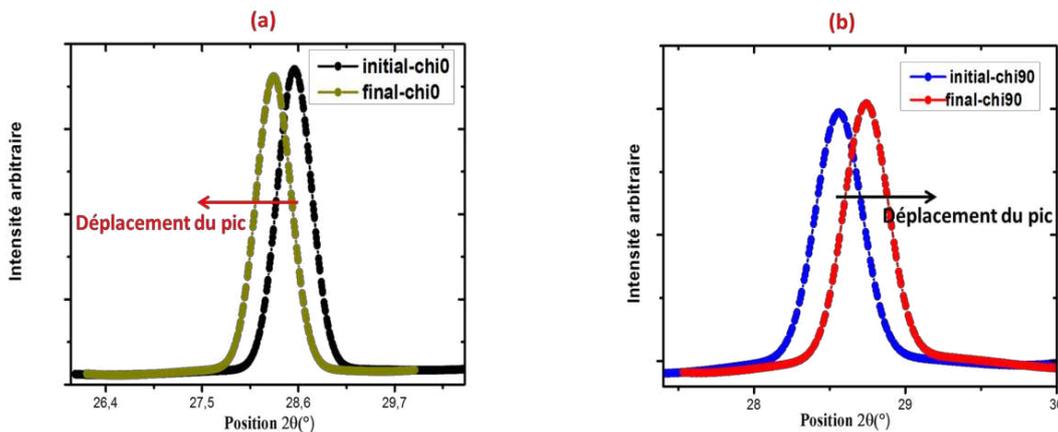
L'utilisation d'une fonction gaussienne pour ajuster les pics de Bragg permet d'obtenir, entre autres, les différentes positions  $2\theta$  correspondant aux différents états de chargements de l'échantillon.

Pour un faisceau monochromatique, la longueur d'onde est constante (cas des neutrons thermiques utilisés). Ainsi, en choisissant un état de référence ( $F = 10N$  dans notre cas), On peut utiliser la loi de Bragg pour le calcul de la déformation des différentes familles de plans pour plusieurs orientations du matériau de la façon suivante :

$$\lambda = 2d_0 \sin\theta_0 = 2d_i \sin\theta_i$$

$$\varepsilon_{hkl} = \ln \left( \frac{d_i}{d_0} \right) = \ln \left( \frac{\sin\theta_0}{\sin\theta_i} \right)$$

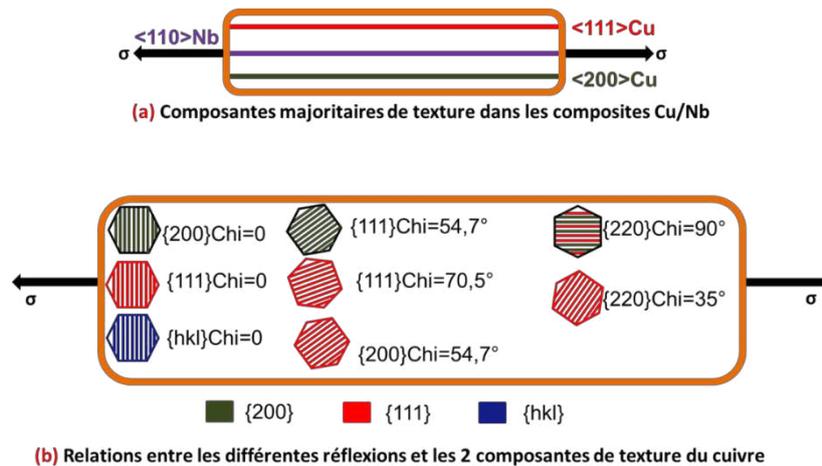
où  $d_0$  (ou  $\theta_0$ ) et  $d_i$  (ou  $\theta_i$ ) sont les distances inter-réticulaires (ou positions angulaires) correspondant à l'état de référence (fixé à 10N pour tous les essais) et à un état de chargement donné respectivement.



**Figure 4. 12:** Déplacement des pics de Bragg sous l'influence de la charge appliquée. (a) pic <110> du niobium pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction et (b) pic <220> du cuivre pour des plans parallèles à l'axe de traction. Fil Cu/Nb de diamètre 2mm.

## IV.6- Résultats

Comme nous l'avons vu au chapitre III, les conducteurs composites Cu/Nb-F présentent trois composantes majoritaires de texture : une composante unique <110> pour le niobium et deux composantes <111> et <200> pour le cuivre. Les essais de traction (uni-axiale) in-situ couplés à la diffraction des neutrons ont donc été focalisés principalement sur ces trois composantes de texture. Afin de repérer toutes les familles de plans diffractant dans le matériau, un essai initial a été lancé sur toutes les orientations possibles des deux phases. A partir des résultats de cet essai, on a donc choisi les réflexions ayant présenté des pics de diffraction avec des intensités « exploitables ». Sur la figure 4.13, nous avons représenté schématiquement l'échantillon avec les trois composantes de texture (a) et la relation entre les deux composantes du cuivre et les différentes familles de plans diffractant en fonction de leurs orientations (b).



**Figure 4. 13:** Représentation schématique (a) des composantes majoritaires de texture axiale des composites Cu/Nb-F et (b) les relations existant entre les différentes orientations des familles de grains avec les 2 composantes de texture du cuivre (vert : les grains <200>, rouge : <111> et bleu pour les grains orientés aléatoirement).

Dans un premier temps, les résultats obtenus avec le détecteur 2D d'un échantillon de diamètre 2 mm obtenu après deux cycles d'ADB ( $N = 85^2$ ) sont présentés pour les différentes familles de plans {hkl} répertoriées dans le tableau IV.4. Nous nous focaliserons ensuite sur le comportement mécanique des familles correspondant aux composantes majoritaires de texture dans les Cu/Nb –  $\{110\}_{Nb}$ ,  $\{111\}_{Cu}$  et  $\{200\}_{Cu}$  pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction, c'est-à-dire à  $\chi = 0^\circ$ . Dans le but de corriger les irrégularités observées sur les pics de diffraction quatre mesures, de dix minutes chacune, décalées de  $\Delta 2\theta = 0.05^\circ$  ont été réalisées pour chaque réflexion. Un état de chargement dure environ 8h sans compter les temps moteur, ce qui ramène la durée totale d'un essai à un peu plus de 6 jours.

Dans un deuxième temps, les résultats obtenus avec le détecteur ponctuel seront présentés pour deux échantillons de diamètres 2mm obtenus respectivement après deux ( $N = 85^2$ ) et trois ( $N = 85^3$ ) cycles ADB. Nous nous focaliserons uniquement sur le comportement mécanique des familles majoritaires de texture ( $\{110\}_{Nb}$ ,  $\{111\}_{Cu}$  et  $\{200\}_{Cu}$ ) des deux phases pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction, c'est-à-dire à  $\chi = 0^\circ$ . Les courbes macroscopiques contraintes appliquées-déformation (écartement des mors) des deux échantillons sont présentées à la figure 4.14. Avec ce détecteur, on a compté 50 points par pic de Bragg dont 50s / point pour les réflexions à  $\chi = 0^\circ$  et 60s / point pour les autres, soit environ 10h par état de charge.

Plan diffractant	Position $2\theta$ (°)	Orientation $\chi$ (°)		
$\{110\}_{Nb}$	29	0	60	90
$\{111\}_{Cu}$	32	0	54,7	70,5
$\{200\}_{Cu}$	37	0	54,7	
$\{211\}_{Nb}$	51	30		
$\{220\}_{Cu}$	54	35,3	90	

**NB** : les réflexions à  $\chi = 90^\circ$  pour les familles  $\{111\}_{Cu}$  et  $\{211\}_{Nb}$  ont été obtenues uniquement pour l'échantillon  $N = 85^3$ .

**Tableau IV.4:** Principales réflexions et orientations sondées lors des tests de traction in-situ sous diffraction des neutrons. L'essai avec le détecteur ponctuel sur l'échantillon  $N = 85^2$  a été réalisé uniquement pour les  $\chi = 0^\circ$ .

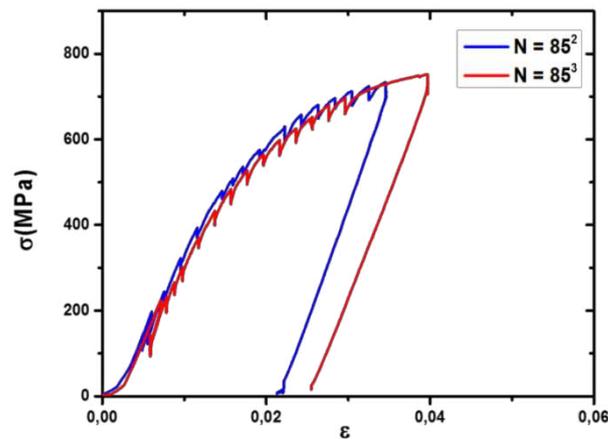


Figure 4. 14: Courbes macroscopiques en traction interrompue des deux échantillons testés ( $d = 2\text{mm}$ ,  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ).

### IV.6.1- Résultats de l'échantillon $N = 85^2$ / Essai réalisé avec le détecteur 2D

Les déformations de plusieurs familles de grains en fonction de la contrainte appliquée sont représentées à la figure 4.15. Ces résultats ont été obtenus avec le détecteur bidimensionnel présenté à la section IV.5. Pour chaque pic de Bragg, à des points de chargements précis, on remarque des points se trouvant en dehors des barres d'erreur (sauts en déformation dont les plus marqués sont repérés par les lignes en pointillées verticales sur la figure 4.15a et cerclés en noir sur la figure 4.15b). Ces sauts en déformation seraient dus à des problèmes de communication entre le système d'exploitation du détecteur (Pingouin) et les logiciels de pilotage du goniomètre et / ou de la machine de traction.

En dépit des problèmes rencontrés lors de cet essai (dysfonctionnements répétés de Pingouin), nous avons pu analyser globalement le comportement mécanique de plusieurs familles de grains des deux phases. En se focalisant sur les familles correspondant aux trois composantes majoritaires de texture dans les Cu/Nb-F, on remarque, pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction, qu'elles présentent toutes les trois des comportements mécaniques différents (figure 4.15b). Pour le cuivre, la famille  $\{111\}$  plastifient autour de 500MPa (pente nulle du domaine II) alors qu'un début de plasticité (vers 700MPa) peut-être observé pour la  $\{200\}$ . La famille  $\{110\}$  du niobium reste dans le domaine élastique jusqu'à la dernière charge précédant la décharge de l'échantillon ; l'écart à la linéarité reflétant dans ce cas un transfert de charge. Ces résultats sont en accord avec de précédentes études de déformation in-situ réalisées sur les conducteurs Cu/Nb [9, 10]. Néanmoins, en raison des points erronés sur les courbes, nous faisons le choix de ne pas aller plus loin sur ce jeu de données obtenu avec le détecteur bidimensionnel malgré sa richesse (plusieurs orientations, distributions azimutales...)

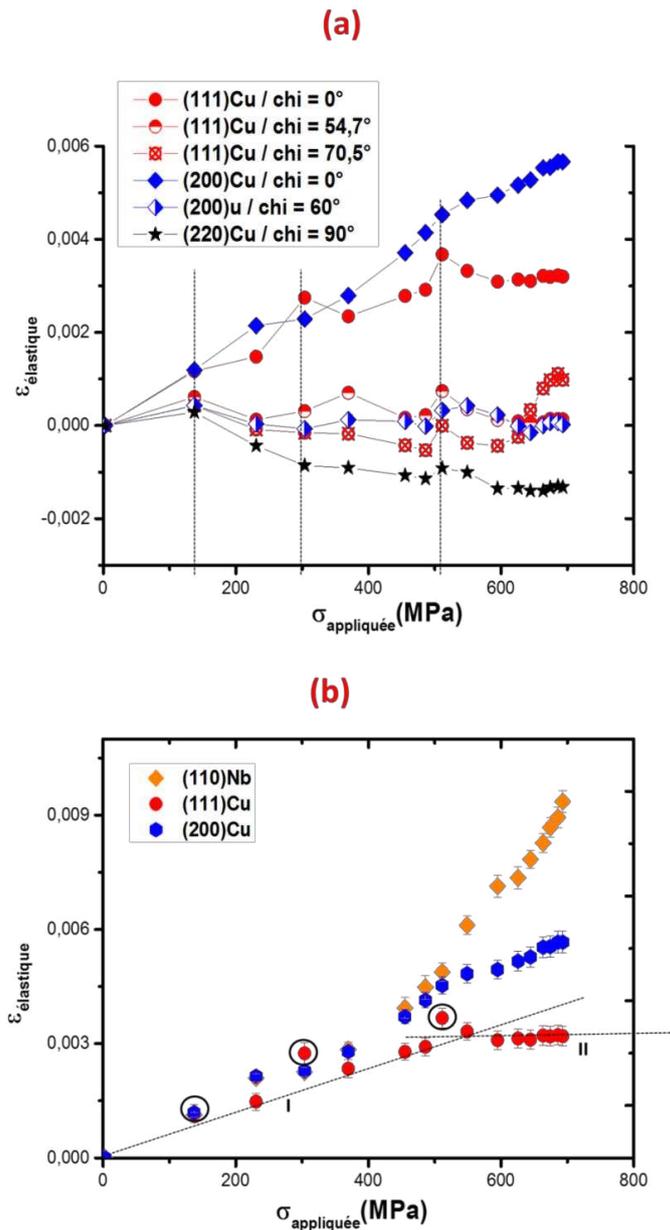


Figure 4. 15: Résultats du test de déformation in-situ obtenus avec le détecteur 2D d'un échantillon  $N=85^2$  de diamètre 2mm : (a) les familles de grains du cuivre pour différentes orientations (b) Les familles correspondant aux trois composantes majoritaires de texture pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction.

#### IV.6.2- Résultats des échantillons $N = 85^2$ et $N = 85^3$ / Essais réalisés avec le détecteur ponctuel.

La figure 4.16 regroupe les résultats des tests de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons pour deux échantillons ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ) de diamètre 2mm. Ils ont tous les deux été effectués avec le détecteur ponctuel présenté à la section IV.7. Seuls les résultats des plans perpendiculaires à l'axe de traction sont présentés pour les familles de grains correspondant aux trois composantes majoritaires de texture.

Pour l'échantillon  $N = 85^2$  (cf. figure 4.16a), on retrouve globalement les mêmes comportements mécaniques que ceux obtenus sur le même échantillon avec le détecteur

bidimensionnel (voir figure 4.15b). La famille  $\{111\}_{Cu}$  plastifie vers 500MPa, la famille  $\{200\}_{Cu}$  atteint le régime plastique à plus forte contrainte (plus de 600MPa) et la famille  $\{110\}_{Nb}$  reste dans le domaine élastique. La disparition des anomalies en déformation sur la courbe déformation / contrainte sur cet échantillon en utilisant le détecteur ponctuel semble confirmer l'hypothèse que ces dernières étaient liées aux problèmes rencontrés avec le détecteur 2D.

Quant à l'échantillon  $N = 85^3$  (figure 4.16b), aucune modification du comportement mécanique des familles  $\{111\}_{Cu}$  et  $\{110\}_{Nb}$  n'a été observée par rapport à l'échantillon  $N = 85^2$ : la famille  $\{111\}_{Cu}$  atteint le régime plastique vers la même valeur de contrainte (450-500MPa) que pour l'échantillon  $N = 85^2$  et la  $\{110\}_{Nb}$  reste dans le domaine élastique jusqu'à la décharge de l'échantillon. La seule différence se situe au niveau de la famille  $\{200\}_{Cu}$  qui reste dans le domaine élastique alors qu'elle a atteint le régime plastique dans l'échantillon  $N = 85^2$ .

La figure 4.17 présente les courbes correspondant à la famille  $\{200\}$  du cuivre des échantillons  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ; celle de l'échantillon  $N = 85^3$  a été volontairement décalée de l'origine de l'axe des déformations pour une meilleure vue. En effet, on distingue trois domaines distincts (repérés par les pentes en pointillés) sur la courbe de la famille  $\{200\}$  de l'échantillon  $N = 85^2$ . Les domaines I et II correspondent tous deux au régime élastique; le changement de pente définissant le début du domaine II (vers 450-500MPa) est dû à un transfert de charge. La famille  $\{111\}$  ayant atteint le régime plastique, la charge n'augmente plus sur les grains correspondants et est transférée sur les autres orientations dont la famille de grains  $\{200\}_{Cu}$  (qui, elle, est toujours dans le domaine élastique). Le domaine III dans lequel la déformation élastique stagne (pente quasi-nulle) correspond au régime plastique. On note, cependant, et c'est là le principal résultat de ces 2 essais, que la courbe correspondant à la famille  $\{200\}$  de l'échantillon  $N = 85^3$  ne présente que les deux domaines élastiques contrairement à la même famille de l'échantillon  $N = 85^2$ . Ceci prouve que la famille  $\{200\}$  reste dans le régime élastique jusqu'à la dernière charge précédant la décharge de l'échantillon. Notons que l'échantillon  $N = 85^3$  a une microstructure plus fine que l'échantillon  $N = 85^2$  (cf Tableau IV.2).

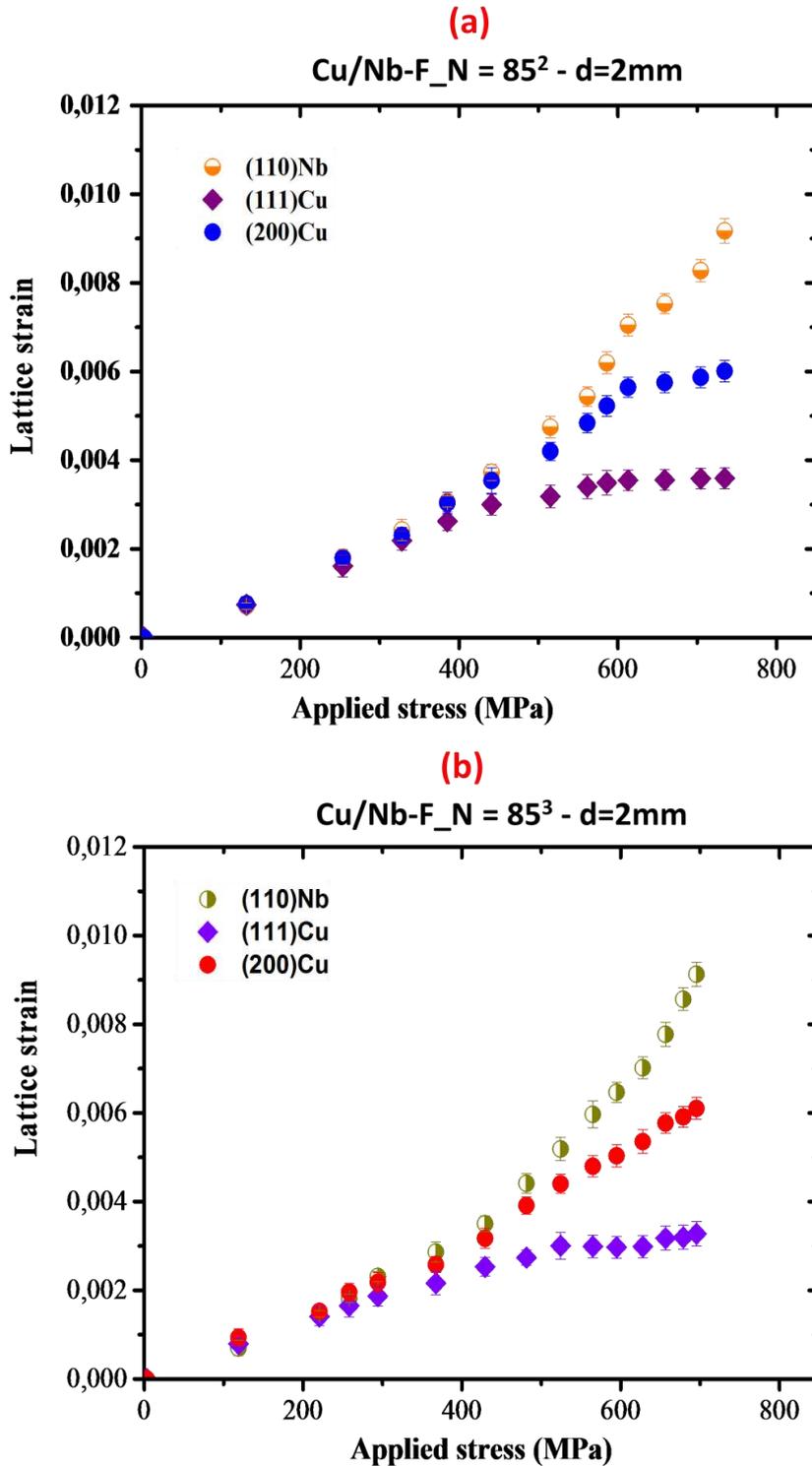
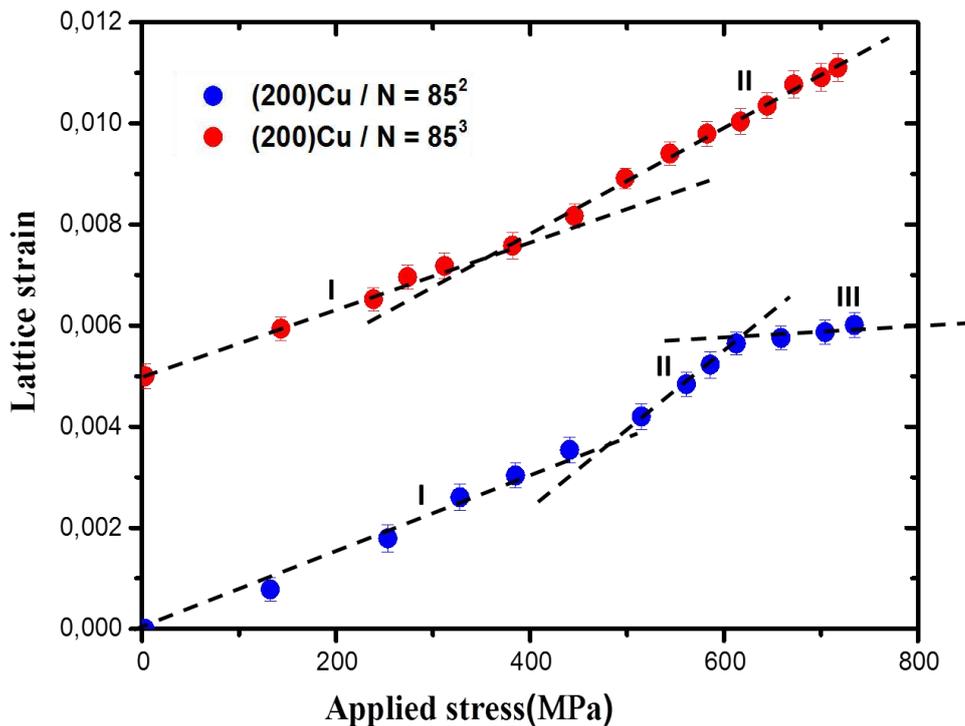


Figure 4. 16: Résultats des tests de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons des échantillons N = 85<sup>2</sup> et N = 85<sup>3</sup> de diamètre 2mm des familles {110}<sub>Nb</sub> {111}<sub>Cu</sub> et {200}<sub>Cu</sub> pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction du fil.



**Figure 4. 17:** Résultats des tests de déformation in -situ couplés à la diffraction des neutrons des échantillons  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$  de diamètre 2mm pour la famille {200} du cuivre. La courbe correspondant à  $N = 85^3$  est volontairement décalée de 0.005 afin de bien visualiser les différents domaines.

#### IV.7- Essai de déformation in-situ couplés à la diffraction des rayons X

Comme mentionné à la section 5.1.2 de ce chapitre, le système de mors de la machine de traction du LLB a été conçu pour réaliser des tests de traction (uni-axiale) pour des fils de diamètre 2mm. A partir de la différence de comportement mécanique observé entre les familles {200} du cuivre des échantillons  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ , il nous a paru important d'effectuer, au moins, un essai supplémentaire sur un échantillon avec une microstructure plus fine. Cependant, on ne disposait pas d'échantillon  $N = 85^4$  au diamètre 2mm. On a donc calculé les dimensions théoriques d'un échantillon  $N = 85^4$  de diamètre 2mm et l'on a trouvé qu'elles correspondaient à un échantillon  $N = 85^3$  de diamètre 0,30mm. Un tel fil a été choisi pour un essai de traction uni-axiale in-situ couplé à la diffraction des rayons X en source Synchrotron. Cet essai a été effectué en collaboration avec Henry PROUDHON et Cristian MOCUTA au synchrotron SOLEILS sur la ligne DIFFABS.

##### IV.7.1- Le rayonnement synchrotron

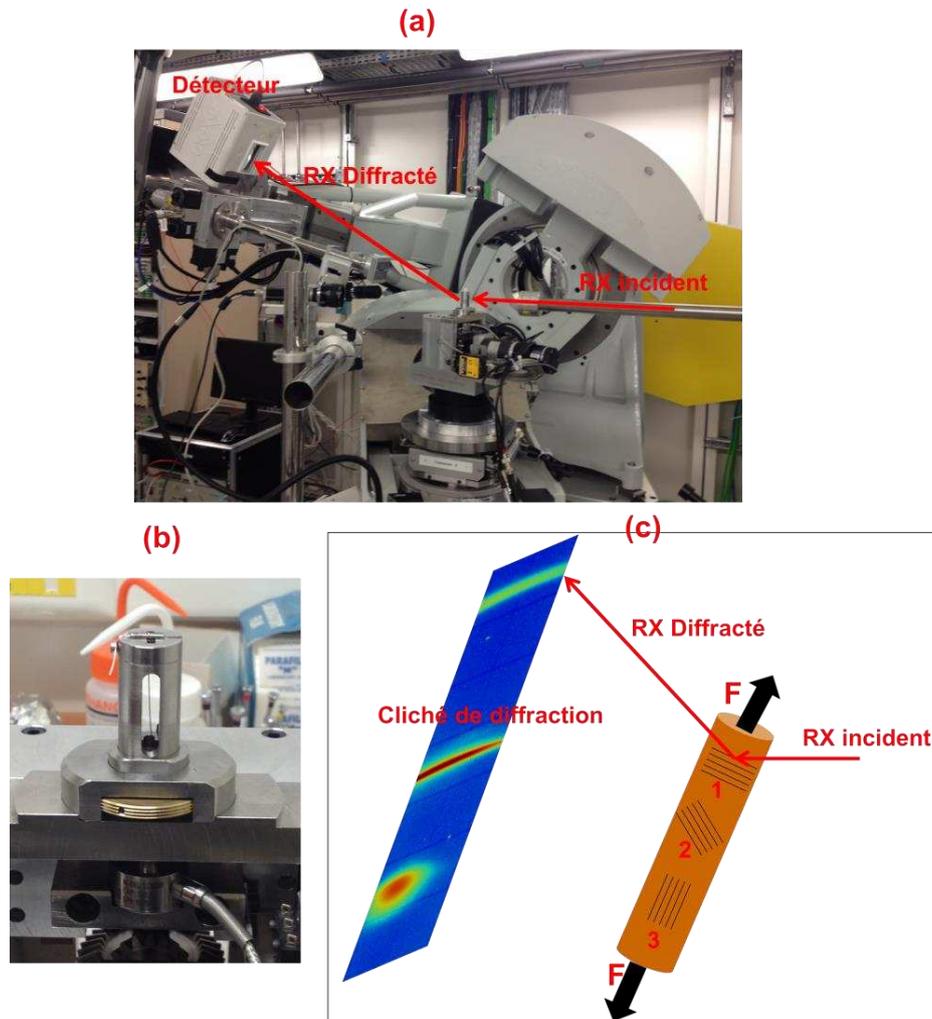
Un synchrotron est un « grand » instrument destiné à l'accélération à haute énergie de particules élémentaires. Le rayonnement synchrotron n'est autre que le rayonnement électromagnétique émis par une particule chargée (électron ou positron relativistes), soumis à une accélération (vitesse proche de celle de la lumière) centripète [11] ; son principe de base repose sur la théorie des ondes électromagnétiques de Maxwell. Le spectre synchrotron est un spectre continu dû à la superposition d'un grand nombre d'harmoniques à cause de l'effet relativiste du phénomène.

Ce spectre comprend toute les longueurs d'onde depuis l'infrarouge jusqu'au rayons X (de  $10^{-5}$  à  $10^{-11}$  m). Le rayonnement synchrotron est caractérisé par :

- a) Sa brillance qui détermine la qualité de la source, elle est définie comme étant le flux de photons par seconde et par unité d'angle solide et de surface transverse de la source. Elle est bien supérieure à celle des tubes de rayons X à cause de sa faible divergence dans le plan vertical.
- b) Sa continuité spectrale exceptionnelle (de l'infrarouge jusqu'aux rayons X)
- c) Faisceau de très faible ouverture (de l'ordre du mrad)
- d) La stabilité du faisceau (plus le rayonnement est stable, plus le rapport signal sur bruit est bon) de laquelle dépend la fiabilité des résultats.
- e) Son intensité qui est de loin supérieur à celle des générateurs classiques de rayons X de laboratoire

### IV.7.2- Dispositif expérimental

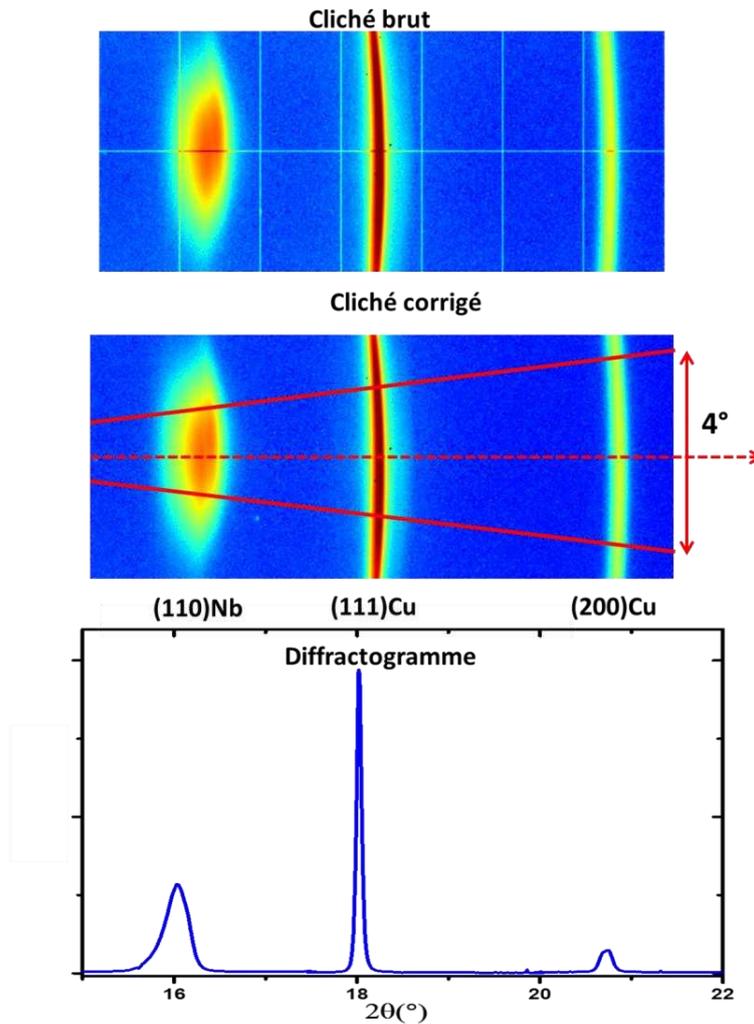
L'essai de traction uni-axiale couplé à la diffraction des rayons X a été effectué en utilisant une micromachine de traction développée par H. Proudhon et al [12], sous un faisceau d'énergie 19keV ou de longueur d'onde  $\lambda = 0,0652$  nm. Comme pour les neutrons, le rayonnement synchrotron traverse l'échantillon massif (de relativement faible diamètre) et offre la possibilité de sonder individuellement chaque famille de grains présente dans la microstructure et ayant satisfait, pour une configuration donnée, la relation de Bragg. Une photographie du dispositif et un schéma de l'échantillon avec un cliché de diffraction des familles de plans perpendiculaires à l'axe de traction sont présentés à la figure 4.18. Comme pour tout essai de traction, il faut s'assurer que le fil ne glisse pas en cour de test. Il est donc installé sur la machine de traction et ses extrémités sont enroulées autour de deux goupilles dont une est visible sur la figure 4.18b (en haut sur la machine de traction). Après plusieurs tentatives courant 2015, une campagne en Avril 2016 a finalement permis d'obtenir des données fiables. Les réflexions correspondant aux trois composantes majoritaires de texture dans les Cu/Nb :  $(110)_{\text{Nb}}$  –  $(111)_{\text{Cu}}$  et  $(200)_{\text{Cu}}$  ont été obtenues (perpendiculairement à l'axe de traction du fil) pour les angles de Bragg ( $2\theta$ ) de  $16,07^\circ$  -  $17,99^\circ$  et  $20,8^\circ$  respectivement. Notons que cet essai a été réalisé en utilisant un détecteur 2D.



**Figure 4. 18:** Dispositif expérimental du test de diffraction sous faisceau synchrotron : (a) et (b) photographies du diffractomètre et de la machine de traction -(c) schéma de l'échantillon avec des familles de plans (1-> perpendiculaires à l'axe de traction, 2-> quelconques, 3-> parallèles à l'axe de traction) sous chargement et le cliché de diffraction obtenu pour un état de charge sur les plans 1.

### IV.7.3- Traitement des données

A partir des clichés de diffraction bruts on calcule une « image corrigée » par division du « flat field » et par correction des pixels défectueux et des double-pixels. Pour avoir les coordonnées exactes ( $2\theta$ ,  $\psi$ ) de chaque pixel, on utilise une calibration selon l'axe des X du détecteur pour un faisceau direct à  $\chi = 90^\circ$ . Le profil  $I(2\theta)$  est ensuite obtenu par intégration azimutale du cliché corrigé le long de l'anneau Debye-Scherrer sur une ouverture de  $\pm 2^\circ$ . Ces différentes étapes sont répertoriées sur la figure 4.19.



**Figure 4. 19:** Illustration des étapes du traitement (du cliché brut au profil  $I(2\theta)$ ) des clichés de diffraction. Les 2 clichés du haut permettent de visualiser les 3 portions d’anneau Debye-Scherrer (DS) associés aux réflexions  $(110)_{Nb}$ ,  $(111)_{Cu}$  et  $(200)_{Cu}$  perpendiculaires à l’axe de traction. La figure du bas représente le diagramme classique intensité vs  $2\theta$  issu de l’intégration sur les portions d’anneau DS, et utilisé pour l’analyse quantitative des déformations.

#### IV.7.4- Résultats

La figure 4.20 présente la courbe macroscopique contrainte appliquée-déformation de l’essai : la courbe en symboles pleins est obtenue avec les charges maximales, c’est-à-dire avant la relaxation de l’échantillon et celle en symboles creux correspond aux chargements après dix minutes de relaxation. La charge initiale (la référence) de l’essai est à 100MPa et la charge maximale atteinte est 1118MPa. Pour le calcul de la déformation macroscopique, les captures vidéos de l’échantillon en cours de déformation ont été utilisées par suivi des marques réalisées à la peinture blanche sur l’échantillon. Au cours de l’essai, il s’est avéré que le fil commençait à glisser dans les mors (à partir d’environ 250MPa) ; après resserrage et ajout de colle dans les mors, l’essai a repris son cours à partir d’environ 500MPa

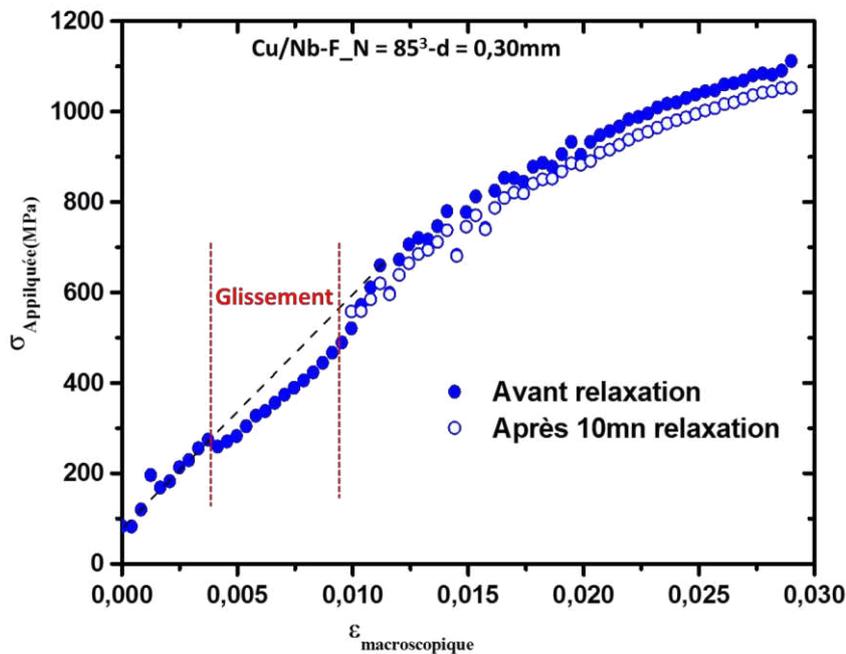


Figure 4. 20: Courbes macroscopique de l'essai de traction uniaxiale in-situ de l'échantillon  $N = 85^3 - d = 0,30\text{mm}$ .

Une analyse qualitative de l'évolution des pics de diffraction avec les chargements nous permet de mettre en évidence les points suivants (voir figure 4.21) :

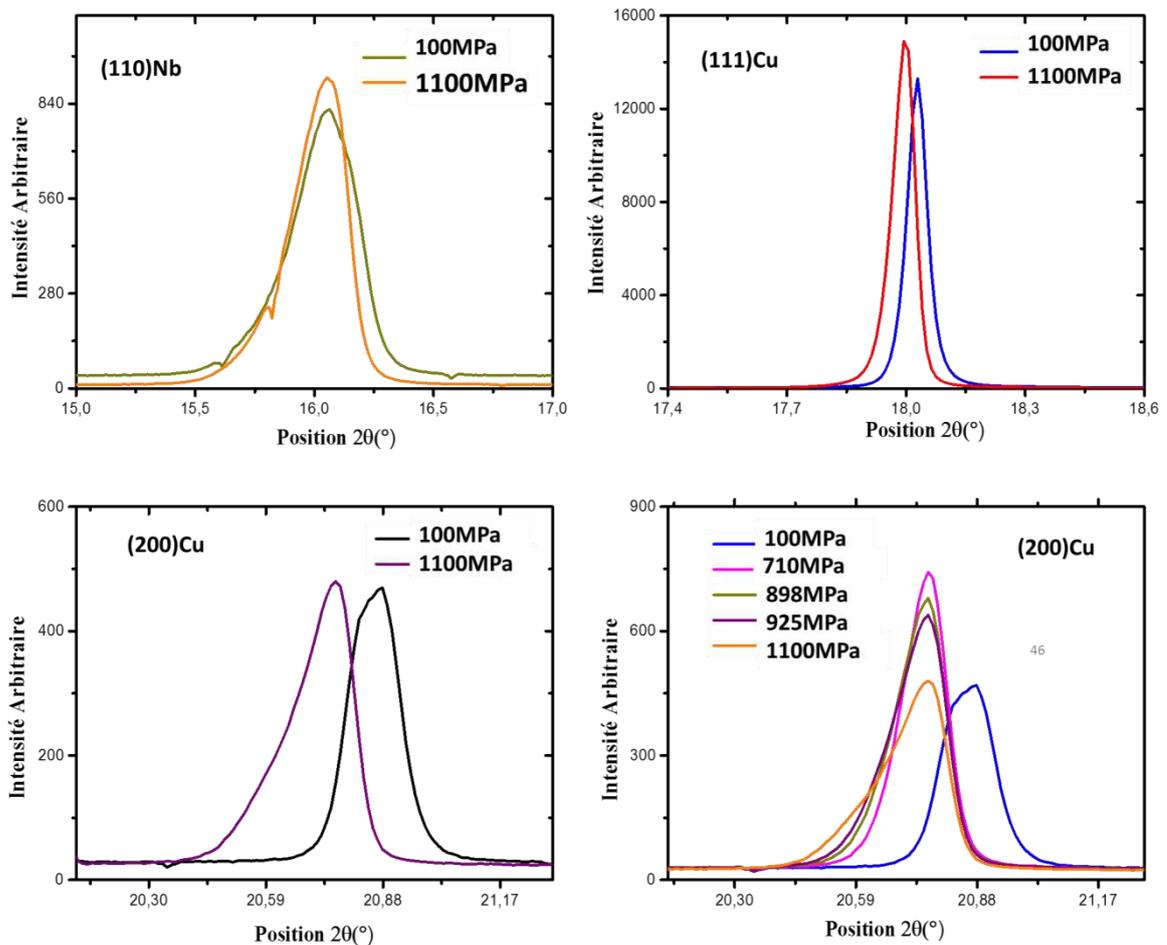
- Il apparaît que le pic (110) du niobium est très asymétrique dès l'état initial et que cette asymétrie n'évolue pas au cours de l'essai. Ce comportement a déjà été observé sur le pic (110) du niobium des composites cuivre / niobium par J.B. Dubois [13] et a été relié au phénomène de courbure (curling) des grains du niobium qui apparaît lorsque le niobium (de structure cubique centrée) subit de très grandes déformations et qui génère une distribution asymétrique des contraintes intra-granulaires.
- Le pic (111) du cuivre reste symétrique tout au long de l'essai.
- Le pic (200) du cuivre devient asymétrique au cours de l'essai. L'évolution de ce pic est très similaire au cas de la réflexion (220) du cuivre parallèle à l'axe de traction observé par V. Vidal [14] lors d'un essai de traction in-situ couplé à la diffraction des neutrons sur un composite Cu/Nb-F de diamètre 1,5mm obtenu après quatre cycle ADB ( $N = 85^4$ ). Dans les travaux de V. Vidal, l'asymétrie a été expliquée par deux tailles de grains différentes quelle que soit la texture. Ces deux tailles de grains étaient corrélées aux canaux larges et aux canaux fins de cuivre des composites Cu/Nb. En d'autres termes, le pic (220) longitudinal était composé de deux familles. Dans le même esprit, le pic  $(200)_{\text{Cu}}$  axial pourrait être associé à deux tailles de grains. Cependant, n'ayant pas d'informations quantitatives sur les proportions des deux familles, les pics ont été ajustés à l'aide d'une seule fonction analytique mais de façon à prendre en compte l'évolution du changement de forme au cours du chargement. Nous avons ainsi obtenu le

barycentre (ou moment d'ordre 1) à partir de l'ajustement avec la fonction analytique asymétrique suivante (Pearson VII asymétrique):

$$f(2\theta) = a \cdot \left[ 1 + \frac{(2\theta - 2\theta_{\text{Max}})^2}{b_1^2} \right]^{-c_1} \quad \text{si } 2\theta < 2\theta_{\text{Max}}$$

$$f(2\theta) = a \cdot \left[ 1 + \frac{(2\theta - 2\theta_{\text{Max}})^2}{b_2^2} \right]^{-c_2} \quad \text{si } 2\theta > 2\theta_{\text{Max}}$$

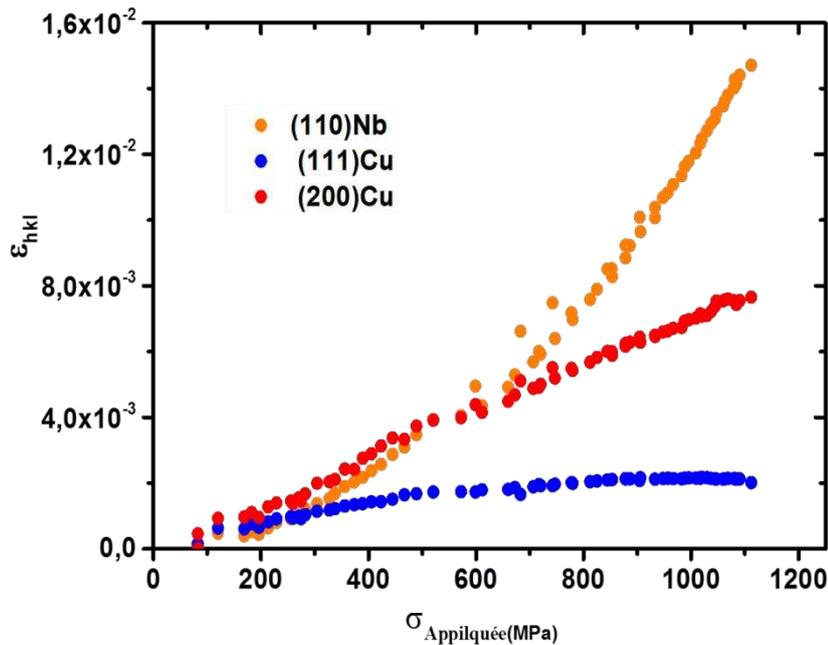
Où  $a$  représente l'intensité maximum  $I_P$ ,  $2\theta_{\text{Max}}$  est la position maximum, et  $c_1$ ,  $b_1$  (resp.  $c_2$ ,  $b_2$ ) des paramètres permettant de remonter entre autres à la largeur à mi-hauteur :  $FWHM = 2d \cdot \sqrt{2^{1/2} - 1}$ .



**Figure 4. 21:** Pics de diffraction des plans (110)<sub>Nb</sub>, (111)<sub>Cu</sub> et (200)<sub>Cu</sub> perpendiculaires à l'axe de traction du fil (Cu/Nb-F, N = 85<sup>3</sup>, d = 0,30mm) mettant en évidence l'évolution de l'asymétrie avec les chargements lors de l'essai de traction in-situ.

L'analyse quantitative du déplacement du barycentre des pics en fonction du chargement est présentée sur la figure 4.22. Seules les familles de grains {110}<sub>Nb</sub>, {111}<sub>Cu</sub> {200}<sub>Cu</sub> perpendiculaires à l'axe de traction du fil ont été analysées. Rappelons que ces familles correspondent aux trois composantes de texture majoritaires des conducteurs Cu/Nb. La famille {110} du niobium reste dans le domaine élastique comme pour les deux échantillons testés aux neutrons. Lors de précédentes études sur ces composites, le même type de comportement a été

observé pour la  $\{110\}$  qui n'a jamais atteint le régime plastique [14]. La famille  $\{111\}$  du cuivre atteint le régime plastique vers les mêmes valeurs de contrainte que les échantillons de diamètre 2mm testés aux neutrons ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ) : 500MPa (voir figures 4.16). La famille  $\{200\}$  du cuivre semble rester dans le domaine élastique jusqu'à plus de 1000MPa alors qu'elle a plastifié vers 600MPa pour l'échantillon  $N = 85^2$  de diamètre 2mm et demeure élastique à plus de 700MPa pour l'échantillon  $N = 85^3$  de 2mm de diamètre.



**Figure 4. 22:** Courbes déformation des plans en fonction de la contrainte appliquée de l'essai in-situ pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction du fil pour les familles de grains  $\{110\}_{Nb}$ ,  $\{111\}_{Cu}$  et  $\{200\}_{Cu}$ .

Pour rendre compte de l'évolution de la forme du pic (200) avec les étapes de chargement, nous avons déterminé le moment d'ordre 3 ( $m_3$ ) :

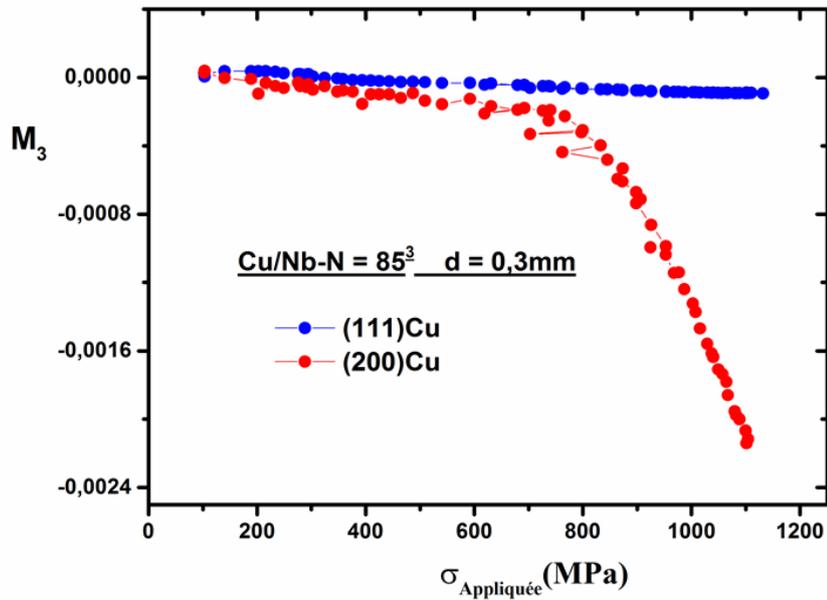
$$m_3 = \frac{\sum_i Y(2\theta_i) \times (2\theta_i - m_1)^3}{\sum Y(2\theta_i)}$$

Où  $m_1$ , le moment d'ordre 1, est défini par la relation :

$$m_1 = \frac{\sum_i 2\theta_i \times Y(2\theta_i)}{\sum Y(2\theta_i)},$$

Les moments d'ordre 3 ( $m_3$ ) des pics (111) et (200) du cuivre sont tracés en fonction de la contrainte appliquée à la figure 4.23. Pour le pic (111)<sub>Cu</sub>,  $m_3$  n'évolue pratiquement pas avec la contrainte appliquée, ce qui est en parfait accord avec l'observation des pics (111)<sub>Cu</sub> pour les chargements final et initial présentés à la figure 4.21. En revanche, nous pouvons remarquer que pour le pic (200)<sub>Cu</sub>,  $m_3$  présente une évolution assez douce du chargement initial jusque vers 800MPa. Au-delà de ce chargement,  $m_3$  évolue brutalement vers les valeurs décroissantes ; ceci traduit une augmentation de l'asymétrie (du côté des petits angles  $\theta$ , cf fig. 4.21). Cette asymétrie

pourrait être notamment attribuée à la présence d'une distribution multimodale de la taille des grains de la famille {200}. Ces différentes tailles de grains pourraient être corrélées aux canaux larges et aux canaux fins de cuivre des composites Cu/Nb et pourraient donc présenter des limites d'élasticité différentes.



**Figure 4. 23** : Evolution du moment d'ordre 3 avec la contrainte appliquée des pics (111) et (200) du cuivre au cours d'un essai de traction in-situ couplée au rayonnement synchrotron. Cu/Nb-F - N =  $85^3$ /d = 0,3mm pour des plans perpendiculaires à l'axe du fil.

### IV.8- Bilan

Les essais de diffraction in-situ couplés à la diffraction des neutrons et du rayonnement synchrotron sur les conducteurs Cu/Nb-F ont montré que :

- ❖ Les familles de grains  $\{110\}_{\text{Nb}}$ ,  $\{111\}_{\text{Cu}}$  et  $\{200\}_{\text{Cu}}$  correspondant aux trois composante majoritaires de textures ont des comportements mécaniques différents
- ❖ La famille  $\{111\}$  du cuivre atteint toujours le régime plastique vers 450MPa, quel que soit l'échantillon.
- ❖ La famille  $\{200\}$  du cuivre a un comportement différent selon les échantillons :
  - élasto-plastique avec transition vers 600 MPa pour l'échantillon  $N = 85^2 - d = 2\text{mm}$
  - purement élastique jusqu'à la dernière charge précédant la décharge ( $\approx 700\text{MPa}$ ) pour l'échantillon  $N = 85^3 - d = 2\text{mm}$
  - purement élastique jusqu'à rupture ( $\approx 1100\text{MPa}$ ) pour l'échantillon  $N = 85^3 - d = 0.3\text{mm}$  ; on observe aussi une asymétrie des pics de diffraction apparaissant en cours d'essai dans ce dernier cas
- ❖ La famille  $\{110\}_{\text{Nb}}$  reste dans le domaine élastique jusqu'à la rupture.

### Références

- [1] J. Schweizer, «Diffusion de neutrons : introduction,» *Journal de Physique IV*, vol. 111, pp. 19-55, 2003.
- [2] J. Teixeira, «Introduction à la diffusion de neutrons,» *Collection SFN*, vol. 8, p. 1–9, 2007.
- [3] G. Heger, «Introduction à l'interaction rayonnement matière,» *Collection SFN*, vol. 9, p. 19–33, 2008.
- [4] Issiaka TRAORE, *Etude et caractérisation des fonction de réponse des Détecteurs Solides de Traces Nucléaires: Application à la dosimétrie radon et neutron*, Stasbourg: Rapport de thèse, 2007.
- [5] «<http://wikisantets.wikispaces.com/Scintigraphie+plane>,» 2010. [En ligne]. [Accès le 2016].
- [6] N. Breteau et al, «Utilisation des neutrons rapides dans le traitement des tumeurs des glandes salivaires : rationnel, revue de la littérature et expérience d'Orléans,» *Cancer/radiothérapie*, vol. 4, pp. 181-190, 2000.
- [7] CEA, «<http://www.cea.fr/Documents/monographies/Réacteurs-nucléaires-expérimentaux-Utilisation-Histoire>,» 12 Avril 2012. [En ligne]. [Accès le 19 Avril 2016].
- [8] Laboratoire Léon Brillouin-CEA, « Annual Report 2014,» Saclay - France, 2014.
- [9] V. Vidal et al, «Size Effect in the Plasticity of Multiscale Nanofilamentary Cu/Nb Composite Wires During in-situ Tensile Tests Under Neutron Beam,» *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, vol. 977, 2007.
- [10] L. Thilly et al, «A new criterion for elasto-plastic transition in nanomaterials: Application to size and composite effects on Cu–Nb nanocomposite wires,» *Acta Materialia*, vol. 57, p. 3157–3169, 2009.
- [11] Y. Farge, «Le Rayonnement Synchrotron et ses applications diverses en physique, chimie et biologie,» *Journal de Physique Colloques*, vol. 7, pp. 17-32, 1975.
- [12] Pierre-Alexis Poulet, Gilles Hochstetter, Andrew King, Henry Proudhon, Sébastien Joannès, Lucien Laiarinandrasana, «Observations by in-situ X-ray synchrotron computed tomography of the microstructural evolution of semi-crystalline Polyamide 11 during deformation,» *Submitted to Polymer Testing*.
- [13] Jean-Baptiste DUBOIS, Rapport de thèse, «Conducteurs nanocomposites métalliques élaborés par déformation plastique sévère : formation et stabilité thermo-mécanique des nanostructures, propriétés induites,» Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées de l'université de Poitiers, Poitiers, 2010.
- [14] Vanessa VIDAL, Rapport de thèse, «Optimisation des propriétés mécaniques des conducteurs nano lamenteaires Cu/X- X=Nb ou Ta,» Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, Toulouse, 2006.

**CHAPITRE V : EFFETS DE TAILLE ET D'ARCHITECTURE :  
DISCUSSION ET CONFRONTATION EXPERIENCE/SIMULATIONS**

### Table des matières

<b>Chapitre V : Effets de taille et d'Architecture : discussion et confrontation expériences/simulation.....</b>	<b>147</b>
<b>V.1- Introduction.....</b>	<b>147</b>
V.2.1- Microstructure/architecture et propriétés électriques macroscopiques.....	147
V.2.1.1- Conductivité électrique longitudinale.....	148
V.2.1.2- Conductivité électrique transverse.....	149
V.2.2- Microstructure/architecture et propriétés mécaniques macroscopiques .....	151
V.2.2.1- Préambule .....	151
V.2.2.2- Résultats.....	152
V.2.3- Microstructure/Architecture et propriétés mécaniques « locales » .....	156
<b>V.3- Confrontation expériences/simulation .....</b>	<b>161</b>
V.3.1- Simulations en champ moyen et en champ complet.....	161
V.3.2 - Simulation des propriétés électriques des conducteurs Cu/Nb-F .....	162
V.3.2.1 – Conductivité électrique longitudinale .....	163
V.3.2.2 – Conductivité électrique transverse .....	164
V.3.3- Simulation des propriétés mécaniques.....	165
<b>V.4- Bilan .....</b>	<b>170</b>
<b>Références.....</b>	<b>172</b>

### Chapitre V : Effets de taille et d'Architecture : discussion et confrontation expériences/simulation

#### V.1- Introduction

Dans ce chapitre, nous allons, dans un premier temps, mener une discussion sur les résultats présentés aux chapitres II, III et IV dans le but de faire ressortir la synergie entre la microstructure, l'architecture et les propriétés macroscopiques. Dans un second temps, nous allons confronter certains des résultats expérimentaux obtenus dans cette thèse avec les simulations effectuées par Tang GU (Mines ParisTech) sur les composites Cu/Nb-F dans le cadre de la seconde thèse financée par le projet METAFORES.

#### V.2.1- Microstructure/architecture et propriétés électriques macroscopiques

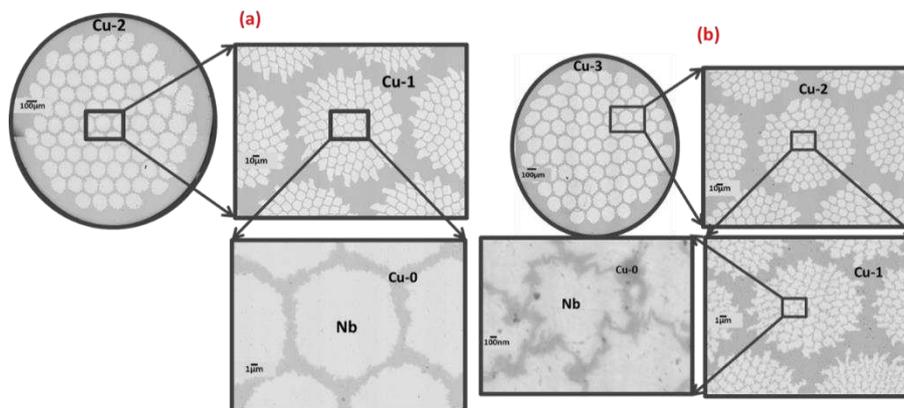
Au paragraphe II.9 du chapitre II, nous avons abordé les paramètres qui peuvent influencer la conductivité électrique des conducteurs Cu/Nb-F. Il a été bien établi que les défauts présents dans la microstructure et la température jouent un rôle primordial sur les propriétés électriques des matériaux cristallins. En ce qui concernent les conducteurs micro- et nano-composites étudiés durant cette thèse, les précédentes études ont montré que parmi ces différents types de défauts, seules les dislocations et les joints de grains et/ou les macles étaient présents dans les conducteurs Cu/Nb [1- 4]. D'autre part, les études menées par L. Thilly [1] sur les effets de taille en utilisant le modèle de Dingle modifié ont montré qu'un effet de taille va influencer la conductivité électrique lorsque les zones conductrices (la matrice de cuivre) deviennent plus petites que **trois fois le libre parcours moyen électronique**. Le libre parcours moyen des électrons à 293K pour du cuivre écroui est très petit (de l'ordre de 40nm) : le confinement géométrique des électrons est donc limité à cette température. En revanche, à 77K pour du cuivre écroui, le libre parcours moyen se situe autour de 200nm : les effets de diffusion électronique se feront donc sentir dès que la microstructure présente une dimension caractéristique de l'ordre de 600nm. La discussion autour des résultats sur la conductivité électrique de ces conducteurs sera donc menée en considérant les effets de tailles et d'écrouissage comme étant les seuls facteurs pouvant impacter sur les propriétés électriques.

A partir des observations MET, la matrice multi-échelles de cuivre, a été classée en canaux de cuivre dits « larges » et « fins » [2] :

- Les canaux de cuivre « larges » présentent une microstructure caractéristique des métaux fortement déformés avec des grains sous forme de cellules de dislocations de tailles  $\geq 1\mu\text{m}$  [1].
- Les canaux de cuivre « fins » contiennent seulement un ou deux grains (de diamètre  $< 200\text{nm}$ ) dans leur largeur, ces grains étant très fortement allongés selon l'axe du fil. Ces canaux fins sont obtenus dans les étapes d'élaboration avancées correspondant au stade IV de la déformation ; les grains contiennent alors très peu (ou pas) de dislocations dans leur volume [2].

La figure 5.1 présente des images MEB de deux conducteurs Cu/Nb-F de diamètre 2mm prélevés respectivement après deux et trois cycles ADB ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ). Ces deux conducteurs permettent d'illustrer la définition des canaux « larges » et « fins ». Sur le zoom de la figure 5.1a, on peut observer les renforts individuels de Nb de forme hexagonale entourés par les canaux de Cu-

0 ; ces canaux ont une largeur d'environ  $2\mu\text{m}$  et sont considérés comme étant des canaux « larges ». En revanche les canaux Cu-0 du zoom de la figure 5.1b présentant les renforts individuels de Nb sont plutôt des canaux « fins » avec une largeur d'environ  $200\text{nm}$ .



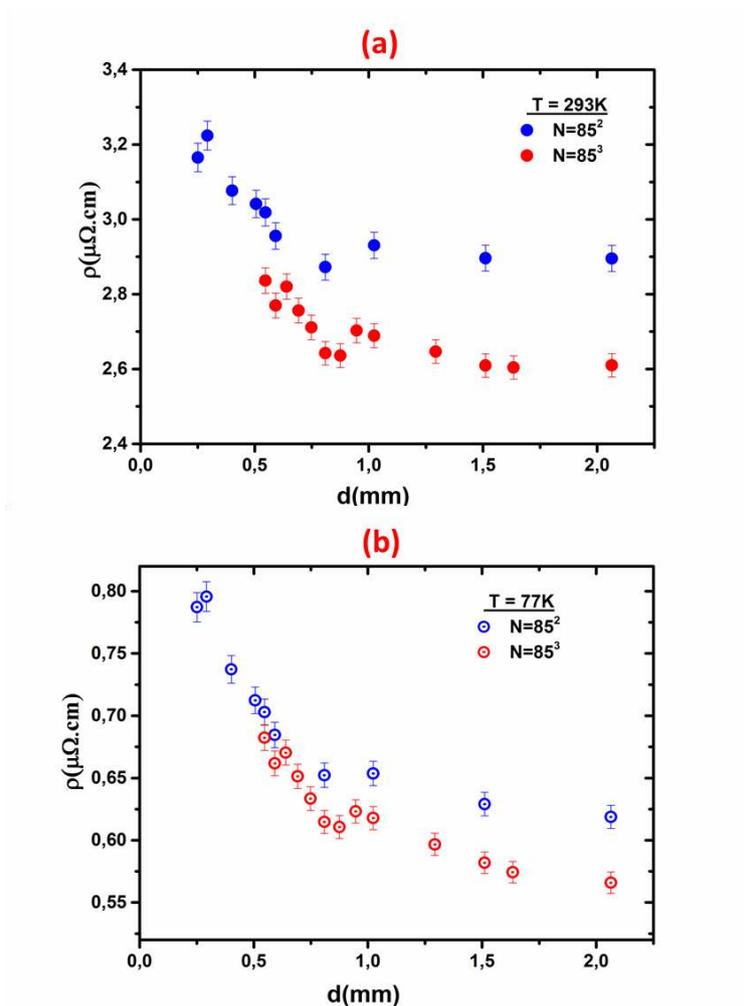
**Figure 5. 1** : Micrographies MEB-FEG à différents grossissements des conducteurs Cu/Nb-F – d = 2mm : (a)  $\rightarrow N = 85^2$  et (b)  $\rightarrow N = 85^3$ .

### V.2.1.1- Conductivité électrique longitudinale

La synthèse des résultats des mesures de résistivité longitudinale est redonnée à la figure 5.2. Les mesures ont été effectuées à 293K et 77K sur deux gammes de diamètres : de 2mm à 0,25mm pour les échantillons de l'étage  $n = 85^2$  et de 2mm à 0,547mm pour ceux de l'étage  $n = 85^3$ . Pour les échantillons de l'étage  $n = 85^2$ , la variation de la résistivité entre  $d = 2\text{mm}$  (RA = 98,77% -  $\eta = 20,7$ ) et  $d = 0,25\text{mm}$  (RA = 99,99% -  $\eta = 24,9$ ) est  $\Delta\rho = 0,27\mu\Omega\cdot\text{cm}$  à 293K et  $\Delta\rho = 0,17\mu\Omega\cdot\text{cm}$  à 77K. Les plus faibles dispersions de la résistivité à 77K par rapport à 293K pourraient s'expliquer par une diminution du nombre de phonons à basse température ; leur influence sur la conductivité devient donc négligeable à 77K. La même tendance est aussi observée sur les échantillons de l'étage  $n = 85^3$  :  $\Delta\rho = 0,23\mu\Omega$  à 293K et  $\Delta\rho = 0,17\mu\Omega$  à 77K entre les échantillons  $d = 2\text{mm}$  (RA = 98,77% -  $\eta = 20,7$ ) et  $d = 0,547\text{mm}$  (RA = 99,86% -  $\eta = 23,4$ ).

Pour une même température, l'augmentation de la résistivité avec la réduction des diamètres peut être due à la contribution de deux effets : effet d'érouissage et effet de taille. En effet, pour les échantillons de l'étage  $n = 85^2$ , les canaux de cuivre présentent généralement des dimensions dans le domaine micrométrique et ce n'est que pour les plus petits diamètres que l'on voit apparaître des dimensions sub-micrométriques pour les canaux les plus fins : par exemple, les canaux les plus fins, Cu-0, du plus petit diamètre (0.25mm) mesurent encore 260nm. Or le libre parcours moyen des électrons,  $\ell$ , est de l'ordre de 40nm à 293K : il est donc tel que  $3\ell \ll d_{\text{Cu}}$ ,  $d_{\text{Cu}}$  étant la largeur des canaux de cuivre. La baisse de la conductivité électrique pour ces échantillons peut donc être majoritairement attribuée à un effet d'érouissage. En revanche, pour les échantillons de l'étage  $n = 85^3$ , tous les canaux Cu-0 et certains Cu-1 sont sub-micrométriques, voire nanométriques ( $d_{\text{Cu-0}} = 51\text{nm}$  pour l'échantillon de diamètre 0,547mm). Pour ces échantillons, la diminution de la conductivité avec l'affinement de la microstructure semble donc être due à la contribution de deux effets : 1) un effet de taille puisque le libre parcours moyen de électrons est du même ordre de grandeur que la largeur de certains canaux de cuivre (on a donc  $3\ell \gg d_{\text{Cu}}$ ) et 2) un effet d'érouissage, puisque, même si les canaux les plus fins ne contiennent presque pas de dislocations, les canaux larges peuvent, eux, en contenir une densité assez conséquente en raison de la déformation sévère imposée par le procédé ADB ( $\beta = 6,6 \cdot 10^{15} \text{ m}^{-2}$  : cf § I.5 du chapitre I). Ces deux

effets combinés vont contribuer à une diminution importante de la conductivité électrique en dépit d'une fraction volumique de cuivre plus importante dans les échantillons  $N=85^3$ .

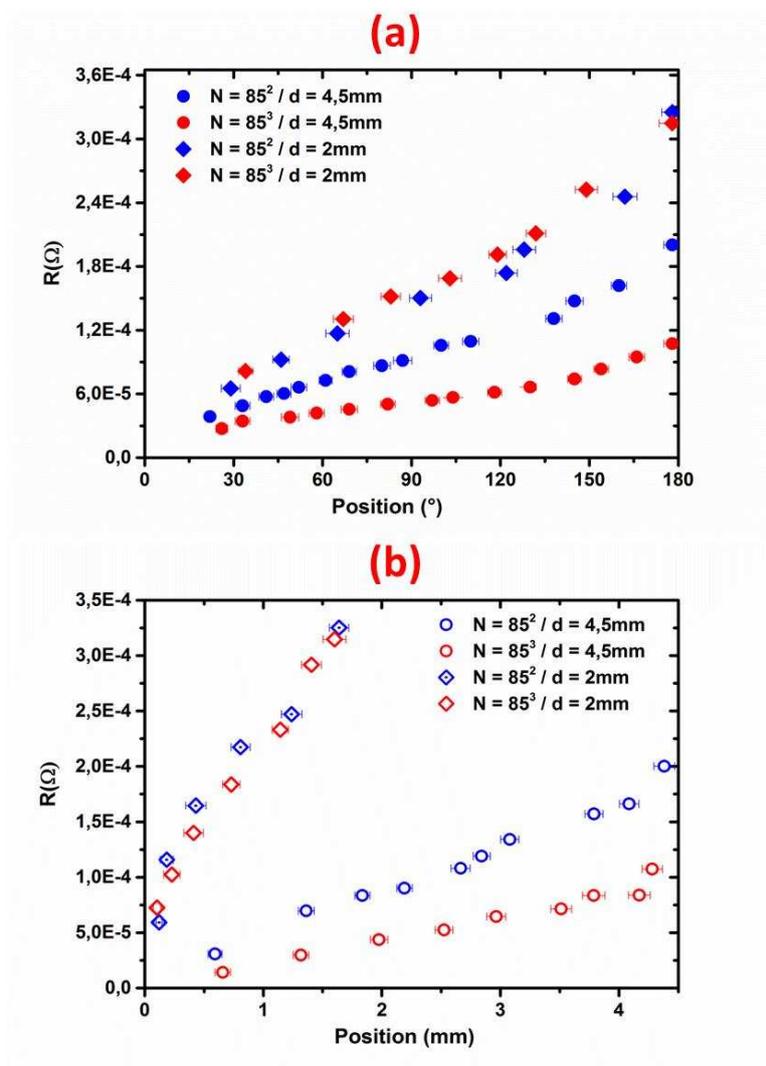


**Figure 5. 2 :** Résistivité électrique longitudinale en fonction du diamètre des conducteurs Cu/Nb-F pour des échantillons des étages  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$  (a)  $\rightarrow$  mesures à 293K et (b)  $\rightarrow$  mesures à 77K.

### V.2.1.2- Conductivité électrique transverse

Des mesures de la conductivité transversale ont été réalisées pour la première fois sur les conducteurs Cu/Nb. Ces mesures ont été effectuées comme pour les mesures longitudinales par la méthode des quatre pointes dont le principe a été présenté au chapitre II. La figure 5.3 regroupe les résultats obtenus sur quatre échantillons de diamètres 4,5mm et 2mm prélevés aux étages  $n = 85^2$  et  $n = 85^3$ . Pour les deux étages, les mesures suivant la circonférence, c'est-à-dire effectuées sur les canaux de cuivre extérieur ont mis en évidence une meilleure conductivité par rapport aux mesures suivant l'axe (zones composites). Ces observations semblent être cohérentes avec la microstructure et l'architecture des Cu/Nb. En effet, les canaux de cuivre périphérique sont très larges par rapport aux canaux des zones composites ( $d_{\text{Cu-2}} = 272\mu\text{m}$  et  $d_{\text{Cu-0}} = 4,8\mu\text{m}$  pour l'échantillon  $N = 85^2/d=4,5\text{mm}$ ), on s'attend donc à ce que les canaux extérieurs conduisent mieux le courant électrique. Un autre facteur pouvant expliquer la baisse de la conductivité dans les zones composites est lié au rayon de courbure de la pointe de mesure (environ  $10\mu\text{m}$ ) qui est supérieur à la dimension de tous les canaux Cu-0 testés. La zone mesurée est donc composite, i.e. contient

notamment du Nb, de conductivité relativement mauvaise, et des interfaces Cu-Nb qui diffusent les électrons de façon importante. Pour les échantillons de diamètre 4,5mm, celui de l'étage  $n = 85^3$  présente une meilleure conductivité électrique par rapport à l'échantillon  $N = 85^2$ . Nous rappelons que l'échantillon  $N = 85^3$  contient une fraction volumique de cuivre de 65% contre 55% pour l'échantillon  $N = 85^2$ . Pour un même taux d'écroûissage, tous les canaux de cuivre étant largement supérieurs au libre parcours moyen électronique, il est tout à fait normal que l'échantillon qui a le pourcentage de cuivre le plus élevé conduise mieux le courant électrique. En revanche, les échantillons de diamètre 2mm affichent pratiquement la même conductivité électrique. A des taux d'écroûissages similaires, il semblerait qu'un début effet de taille commence à se manifester pour l'échantillon  $N = 85^3$  ; cet effet de taille semble donc compenser la proportion de cuivre supplémentaire de l'échantillon  $N = 85^3$ . En ce qui concerne les échantillons de diamètres 2mm et 4,5mm : la baisse globale de la conductivité des échantillons de diamètre 2 mm, semble être due uniquement à un effet d'écroûissage à l'étage  $n = 85^2$ , et une combinaison d'un effet d'écroûissage et d'un début d'effet de taille à l'étage  $n = 85^3$ .



**Figure 5.3 :** Résistivité électrique transversale à 293K des conducteurs Cu/Nb-F pour des échantillons des étages  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$  (a) mesures sur les canaux de cuivre extérieur et (b) mesures dans les zones composites.

### V.2.2- Microstructure/architecture et propriétés mécaniques macroscopiques

#### V.2.2.1- Préambule

Le phénomène de plasticité, comme on l'a vu au chapitre I, est le résultat de la propagation et/ou de la multiplication des dislocations sous l'effet de contrainte. La limite d'élasticité d'un matériau parfait (absence de défauts et de sources de défauts) devrait donc, sous l'effet d'une contrainte externe, atteindre la valeur théorique prédite pour la limite d'élasticité. La notion de matériau parfait est plutôt idéaliste, car les matériaux utilisés dans les systèmes sont fabriqués et la plupart des techniques de fabrication induisent des modifications microstructurales qui vont impacter les propriétés macroscopiques de la pièce finale. Ces modifications ne sont pas toujours néfastes ; certaines d'entre elles sont souvent recherchées pour l'optimisation de propriétés de la pièce. Par exemple, la création d'obstacles au mouvement des dislocations permet de retarder l'écoulement plastique du matériau et donc, d'augmenter sa limite d'élasticité. Par analogie au libre parcours moyen électronique on peut définir le libre parcours moyen  $L$ , lié au mouvement des dislocations ( $L$  est alors la distance que doit parcourir une dislocation de longueur unitaire pour introduire une longueur unitaire supplémentaire de dislocation dans le cristal). Ce libre parcours moyen des dislocations est défini par (selon Gil Sevillano, rapportée dans [1]) :

$$L = \alpha^2 \frac{b\mu^2}{2\theta_0\tau} \quad (1)$$

où  $b$  est le module du vecteur de Burgers de la dislocation ;  $\mu$  est le module de cisaillement du matériau ;  $\theta_0$  est le durcissement  $\frac{d\tau}{d\gamma}$  ;  $\tau$  est la contrainte de cisaillement résolue dans le plan de glissement des dislocations ; la constante  $\alpha$  est égale à 0.35.

Dans la référence [1], on retrouve les valeurs des paramètres de la relation (1) ci-dessous pour du cuivre et du niobium très déformés (stade IV de la déformation plastique : voir § II.3.1 chapitre II). A ce stade de la déformation, le réseau de dislocations s'organise en structure stable caractérisée par des cellules dont les parois ont des tailles de l'ordre de  $10\ell$ ,  $\ell$  étant la distance moyenne entre dislocation [1].

	$\theta_0^{IV} / \mu$	$\tau^{IV} / \mu$	$b$ (nm)	$L$ ( $\mu\text{m}$ )	$\ell=1/\sqrt{\beta}$ (nm)
<b>Cu</b>	$4 \times 10^{-4}$	$2,5 \times 10^{-3} \rightarrow 3,6 \times 10^{-3}$	0,256	11 $\rightarrow$ 16	25 $\rightarrow$ 36
<b>Nb</b>	$5 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^{-4} \rightarrow 10^{-2}$	0,286	3,5 $\rightarrow$ 12	10 $\rightarrow$ 34

**Tableau V. 1** : Ordre de grandeur du libre parcours moyen  $L$  des dislocations et leur distance moyenne  $\ell$  dans le cuivre et le niobium au stade VI de la déformation à 300K [1].  $\beta$  est la densité de dislocations présente dans la microstructure.

Dans [1], le libre parcours moyen  $L$  des dislocations a été comparé aux dimensions microstructurales  $d_i$  des matériaux  $i$  pour prédire le comportement mécanique de ces derniers :

- si  $d_i$  est très supérieur à  $L$ , le comportement de chaque phase est celui d'un matériau massif ; les mécanismes de la déformation sont classiques. Le composite composé des  $i$  matériaux est décrit par la loi des mélanges classique (Rule of Mixture, ROM).
- si  $d_i$  est compris entre  $10\ell$  et  $L$ , l'interaction entre les dislocations et les interfaces intervient, entraînant un stockage des dislocations aux interfaces aussi important que celui ayant lieu dans le volume.

- si  $d_i$  est inférieur à  $10\ell$ , l'effet des interfaces devient prépondérant, les dislocations ressentent essentiellement ces dernières. Il y a alors un effet de taille : le stockage de dislocations dans le volume décroît fortement jusqu'à devenir théoriquement impossible dans le cas limite où  $d_i$  est inférieur à  $\ell$ .

**Ces hypothèses seront utilisées dans la discussion autour des résultats des essais de traction uniaxiale des conducteurs micro-et (nano)-composites Cu/Nb-F.**

### V.2.2.2- Résultats

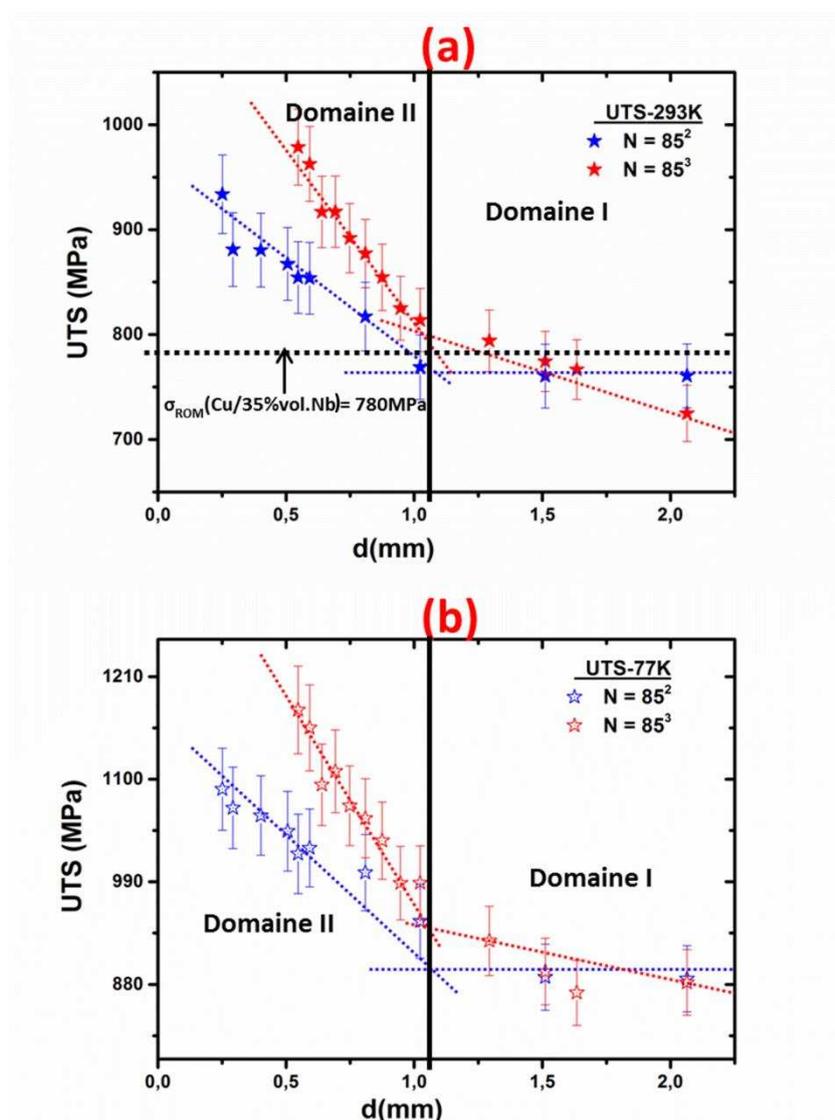
L'évolution de la contrainte maximale de traction (UTS) en fonction du diamètre des échantillons ( $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ ) est présentée à la figure 5.4. La figure 5.4a présente les résultats des essais à 293K et ceux réalisés à 77K sont présentés sur la figure 5.4b. L'erreur sur les résultats se situe autour de 5%. Pour un composite Cu/35%vol. Nb écroui, la loi des mélanges classique (ROM) prévoit une valeur de 780MPa à 293K. On observe déjà un écart relatif de l'ordre de 3% entre l'UTS de l'échantillon de diamètre 1,023mm et la valeur prédite par la loi des mélanges ; cet écart atteint plus de 20% pour l'échantillon de diamètre 0,547mm. La valeur de contrainte supérieure des micro-et (nano)-composites Cu/Nb par rapport aux prédictions de la loi des mélanges pour des composites écrouis s'interprète par la présence d'un effet de taille associé à la réduction de la microstructure.

Une comparaison rapide des résultats à 293K (figure 5.4a) et à 77K (figure 5.4b) met en évidence, pour des diamètres équivalents, des valeurs d'UTS plus élevées à 77K. Cette augmentation de l'UTS est probablement due à l'augmentation du frottement de réseau dans les renforts de Nb (structure CC) à basse température. On observe aussi, pour les deux types d'essais, une rupture de pente lorsque le diamètre des fils est d'environ 1mm (frontière des domaines I et II).

Pour les échantillons de l'étage  $n = 85^2$  et dans tous les fils de diamètre supérieur 1mm environ (domaine I sur les graphes), les renforts de Nb et les différents canaux de cuivre ont plutôt des dimensions supérieures ou proches de celle du libre parcours moyen  $L$  des dislocations ( $L_{Cu} = [11\mu\text{m} - 16\mu\text{m}]$  et  $L_{Nb} = [3,5\mu\text{m} - 12\mu\text{m}]$ ). On s'attend donc, pour ces conducteurs, à un comportement similaire à celui d'un matériau massif écroui : le domaine I présente bien un UTS constant, indépendant du diamètre du fil (et donc de la taille de la microstructure). En revanche, pour les diamètres en dessous de 1mm, correspondant au domaine II, les renforts de niobium ont des dimensions comprises entre  $L$  et  $10\ell$  ( $\ell_{Nb} = [10\text{nm} - 34\text{nm}]$ ) et les diamètres les plus fins ont des canaux de cuivre (Cu-0 et Cu-1) de dimensions inférieures à  $L$ , voire même des dimensions inférieures ou proches de  $10\ell$ . Le changement de pente traduisant l'augmentation des valeurs d'UTS pour les diamètres en dessous de 1mm peut être attribué à une combinaison d'un effet d'écrouissage et d'un début d'effet de taille.

Concernant les échantillons de l'étage  $n = 85^3$ , on remarque une augmentation modérée des valeurs de l'UTS dès le domaine I ( $d_{fil} > 1\text{mm}$ ). En effet, pour ces échantillons, tous les filaments de niobium ont des dimensions inférieures au libre parcours moyen des dislocations (voir tableau II.2, chapitre II). Cette augmentation modérée de l'UTS dans le domaine I peut être en partie attribuée au stockage des dislocations aux interfaces Cu-Nb. On note aussi une plus faible valeur

d'UTS pour l'échantillon de diamètre 2mm par rapport à celui de l'étage  $n = 85^2$ , au même diamètre. Cette diminution, en dépit de la microstructure plus fine de l'échantillon  $N = 85^3$ , semble provenir de la contribution des 10% de cuivre en plus de l'échantillon  $N = 85^3$  (55% de Cu dans les  $N = 85^2$  et 65% Cu dans les  $N = 85^3$ ). L'augmentation de l'UTS dans le domaine II est la signature d'un effet de taille accru puisque, dans ce domaine, en plus des dimensions sub-micrométriques/nanométriques des renforts de Nb, tous les canaux de cuivre Cu-0 sont de taille nanométrique, dont une majorité est inférieure à 10 $\ell$ . Cet effet de taille prononcé explique que la pente du domaine II observée pour les échantillons  $N = 85^3$  soit supérieure à celle du domaine II associé aux échantillons  $N = 85^2$ .



**Figure 5.4 :** Contrainte maximale de traction des conducteurs Cu/Nb-F en fonction du diamètre des fils. (a) essais à 293K, (b) essais à 77K. Les lignes pointillées marquent les changements de pente et la ligne continue verticale sépare les deux domaines.

De façon similaire à ce qui a été fait à la section II.10 du chapitre II, pour rendre compte de l'effet de taille pouvant apparaître dans les échantillons de l'étage  $n = 85^3$ , nous allons négliger la

## Chapitre V : synergie entre Microstructure, Architecture et Propriétés

contribution de la matrice de cuivre dans les propriétés mécaniques des composites Cu/Nb-F. Cette hypothèse a en effet déjà été proposée par F. Dupouy-Lecouturier et lui a permis de mettre en évidence le comportement whiskers des filaments de niobium pour des taux de déformation correspondant au stade IV de la déformation [4] ; la plasticité est supposée contrôlée par la nucléation de nouvelles dislocations. Elle a alors proposé un modèle (voir équation 2) permettant de dissocier les contributions de l'écroutissage et de l'effet de taille dans les nanocomposites Cu/Nb.

$$\sigma(Nb) = UTS(Cu/Nb) - \sigma_{\text{écroui-}ROM} \quad (2)$$

Les valeurs de cette équation, tracées en fonction du diamètre des filaments de niobium, a mis en évidence une dépendance exponentielle de la contrainte des filaments en fonction de leur diamètre. L'interpolation empirique des courbes par F. Dupouy dans [4] a donné l'équation suivante à 300K ;

$$UTS(Nb) = 1970 + 6680 \exp\left(-\frac{d_{Nb}}{111}\right) \quad (3)$$

UTS (Nb) étant en MPa et  $d_{Nb}$  en nm.

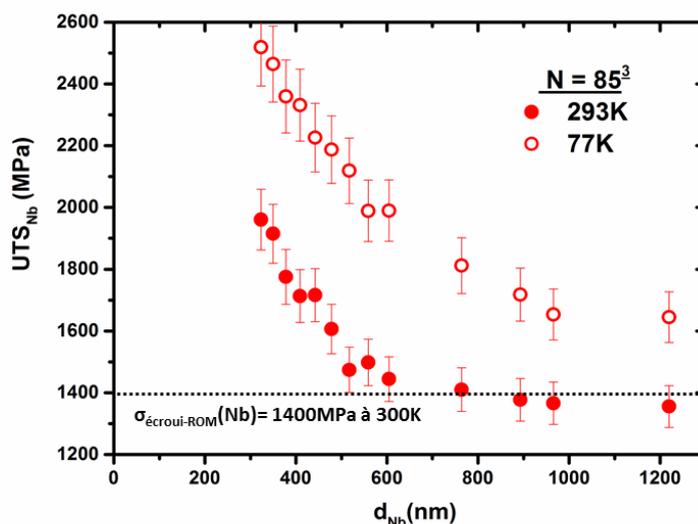
Lorsque le diamètre des filaments tend vers zéro, l'équation (3) donne une valeur de 8650MPa à 300K pour  $\sigma$  (Nb). Cette valeur correspond à une contrainte de cisaillement résolue de  $\mu/11$ , dans les filaments de niobium texturés  $\langle 110 \rangle$  [1]. Le terme constant de l'équation (3) doit correspondre à l'UTS du niobium massif écroui, soit 1400MPa. D'après [1], l'écart observé entre cette constante et l'UTS du niobium écroui s'explique par la non prise en compte par le modèle de la contribution des canaux fin de cuivre fins dans le durcissement mécanique des Cu/Nb. Une loi des mélanges modifiée (MROM), prenant en compte la contribution des canaux de cuivre fins, a alors été établie durant les travaux de thèse de L. Thilly [1].

Ce modèle, utilisé avec succès, a permis d'établir la relation empirique ci-dessous traduisant la dépendance exponentielle de  $\sigma(Nb)$  en fonction de  $d_{Nb}$ .

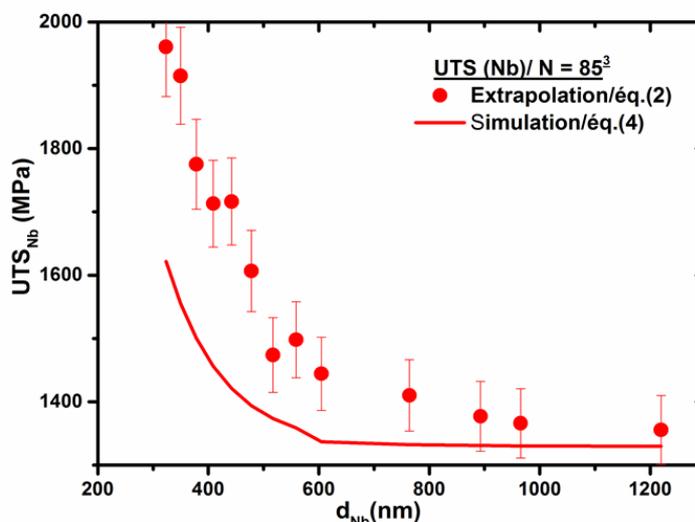
$$UTS(Nb) = 1330 + 6100 \exp\left(-\frac{d_{Nb}}{110}\right) \quad (4)$$

La figure 5.5 présente l'évolution de l'UTS des filaments de niobium en fonction de leur diamètre pour les échantillons de l'étage  $n=85^3$ . Ces résultats sont extrapolés en utilisant l'équation (2) qui découle de la loi des mélanges ne prenant pas en compte la contribution des canaux de cuivre fin. On retrouve, à partir des filaments de diamètre d'environ 600nm, la dépendance exponentielle de l'UTS des filaments en fonction de  $d_{Nb}$  qui témoigne du caractère whiskers des renforts de niobium, aux très forts taux de déformation. La contribution des filaments de niobium au durcissement mécanique des Cu/Nb est sans doute surestimée par ce modèle. Mais, il permet de mettre en évidence l'effet de taille qui apparait lorsque le diamètre des filaments de niobium devient sub-micrométrique. La comparaison des valeurs extrapolées d'après l'équation (2) avec la simulation à partir de l'équation (4) présentée à la figure 5.6 confirme bien l'hypothèse de la surestimation de la contrainte des filaments en négligeant la contribution des canaux de cuivre fin. En effet, les données extrapolées et simulées sont en bon accord pour les filaments micrométriques.

En revanche, on observe un écart entre les valeurs simulées et extrapolées pour les filaments de diamètre sub-micrométrique.



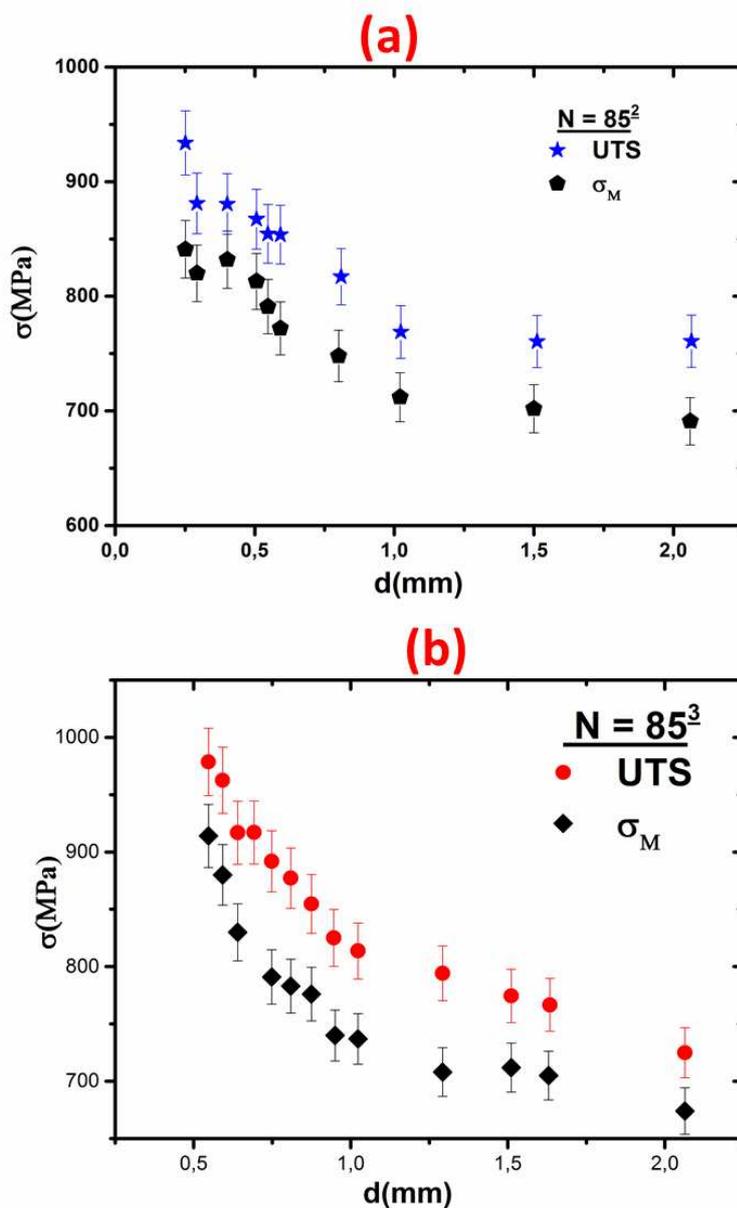
**Figure 5. 5 :** Evolution de la contrainte maximale des filaments de niobium, extrapolée d'après l'équation (2), en fonction de leur diamètre pour les échantillons de l'étage  $n = 85^3$ .



**Figure 5. 6 :** Comparaison de l'évolution des UTS, à 293K, des filaments de Nb extrapolées (sans prise en compte de la contribution des canaux de cuivre fin, d'après l'équation (2)) et simulées avec le modèle de l'équation 4 qui tient compte de la contribution des canaux fins de cuivre.

En plus des données UTS, l'analyse des courbes de traction nous a permis de déduire la limite d'élasticité macroscopique, en appliquant le critère  $E/3$  défini dans [5] (où  $E$  représente le module d'Young du composite). La figure 5.7 présente simultanément les évolutions de l'UTS et celles de la contrainte macro-plastique ( $\sigma_M$ ), en fonction du diamètre des fils. Les courbes UTS et  $\sigma_M$  ont des évolutions similaires en fonction du diamètre des fils. Par ailleurs, la contrainte macro-plastique et l'UTS ont, pour un même diamètre, des valeurs très proches, signe que le domaine

plastique est relativement restreint. Cette observation est assez classique pour des matériaux très écrouis.



**Figure 5. 7 :** Comparaison de l'évolution de la contrainte macroplastique ( $\sigma_M$ ) et de l'UTS en fonction du diamètre des fils : (a)  $N = 85^2$  et (b)  $N = 85^3$

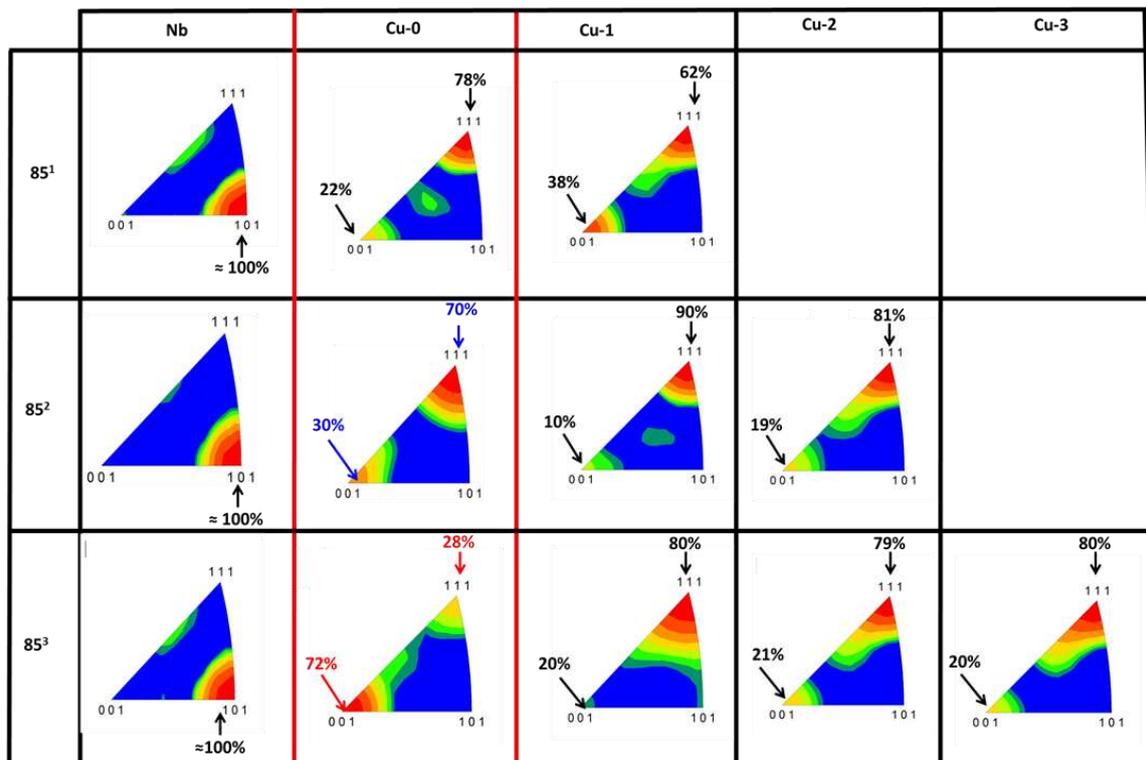
### V.2.3- Microstructure/Architecture et propriétés mécaniques « locales »

Les micro- et (nano)-composites Cu/Nb-F, comme nous l'avons vu au chapitre III, sont constitués d'une double texture  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$  pour la matrice multi-échelle de cuivre et d'une texture unique  $\langle 110 \rangle$  pour les renforts de niobium. Les analyses locales de la texture par EBSD ont mis en évidence une variation des proportions des composantes du cuivre en fonction de l'étage considéré. Nous avons aussi observé un comportement mécanique qui évolue en fonction de l'étage

## Chapitre V : synergie entre Microstructure, Architecture et Propriétés

pour la famille {200} du cuivre à travers les résultats des essais de déformation in-situ présentés au chapitre IV. Dans cette section, nous allons discuter essentiellement de cette différence de comportement mécanique de la famille {200} du cuivre en essayant d'établir le lien avec la microstructure, par le biais des analyses locales de la texture.

Le tableau V.2 présente un résumé des analyses locales de la texture. Ces figures de pôles inverses ont été obtenues par des scans sur la section transverse des fils ; on y retrouve notamment l'inversion des fractions volumiques entre les canaux Cu-0/85<sup>2</sup> et Cu-0/85<sup>3</sup>.



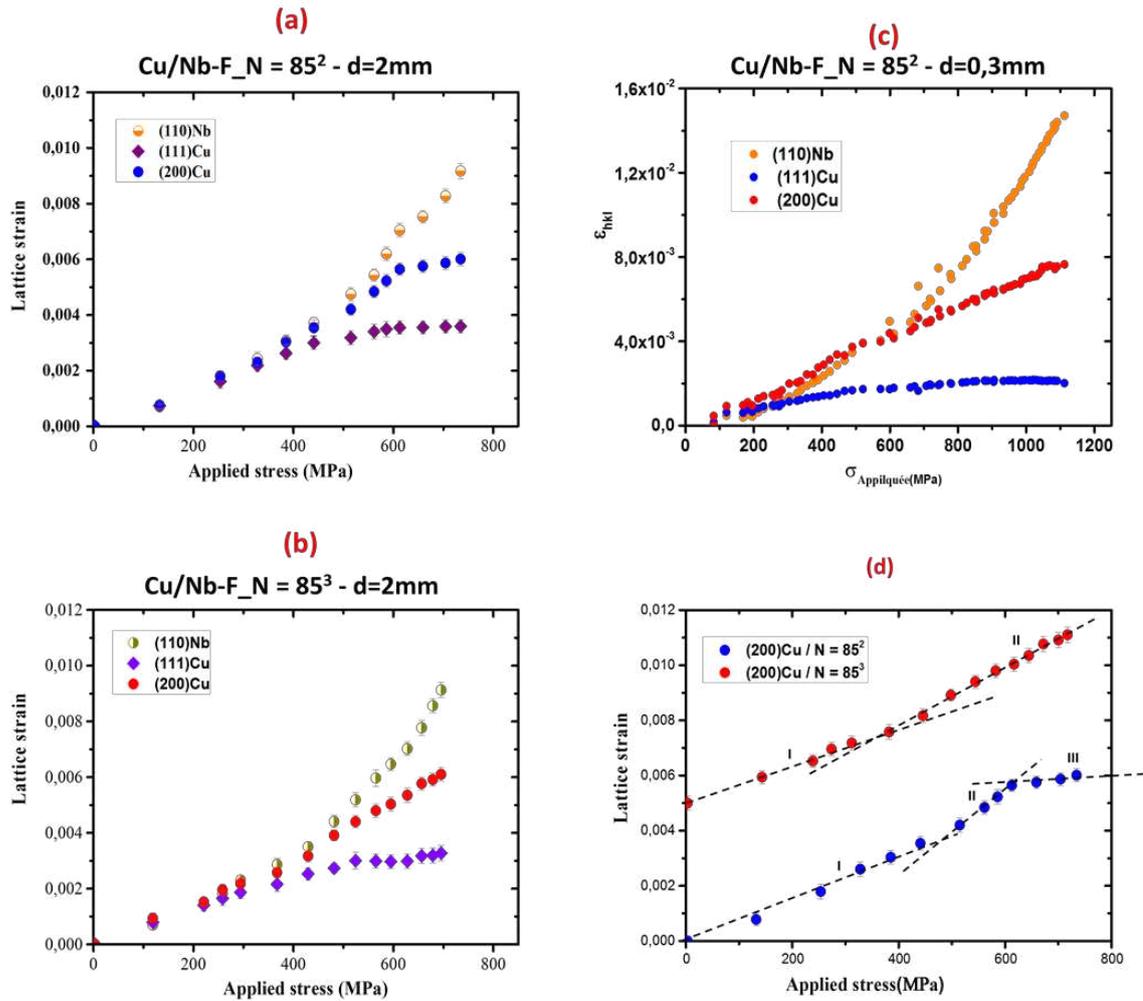
**Tableau V. 2 :** Résumé des résultats des analyses de la texture locale des conducteurs Cu/Nb-F par EBSD.

La figure 5.8 regroupe les principaux résultats des essais de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons et des rayons X (rayonnement synchrotron).

Pour les trois échantillons testés, le niobium reste purement élastique ; ce résultat est en très bon accord avec les précédents essais de déformation in-situ réalisés sur les conducteurs Cu/Nb [5 - 7] au cours desquels le niobium a toujours été observé comme restant dans le domaine élastique malgré les transferts de charge qu'il subit, la matrice de cuivre entrant progressivement dans le régime plastique. Il est aussi intéressant de noter que cette observation est compatible avec les niveaux de limite d'élasticité obtenus par extrapolation pour le Nb, dans la section précédente (paragraphe V.2.2.2) : en effet, les figures 5.5 et 5.6 montrent que les filaments de Nb présentent une contrainte maximale de 1400MPa dans l'état « massif », cette contrainte augmentant jusqu'à 1600MPa/2000MPa pour les filaments les plus fins (extrapolation prenant en compte, ou pas, la contribution des canaux de cuivre fins). Ces niveaux de contrainte n'étant vraisemblablement pas

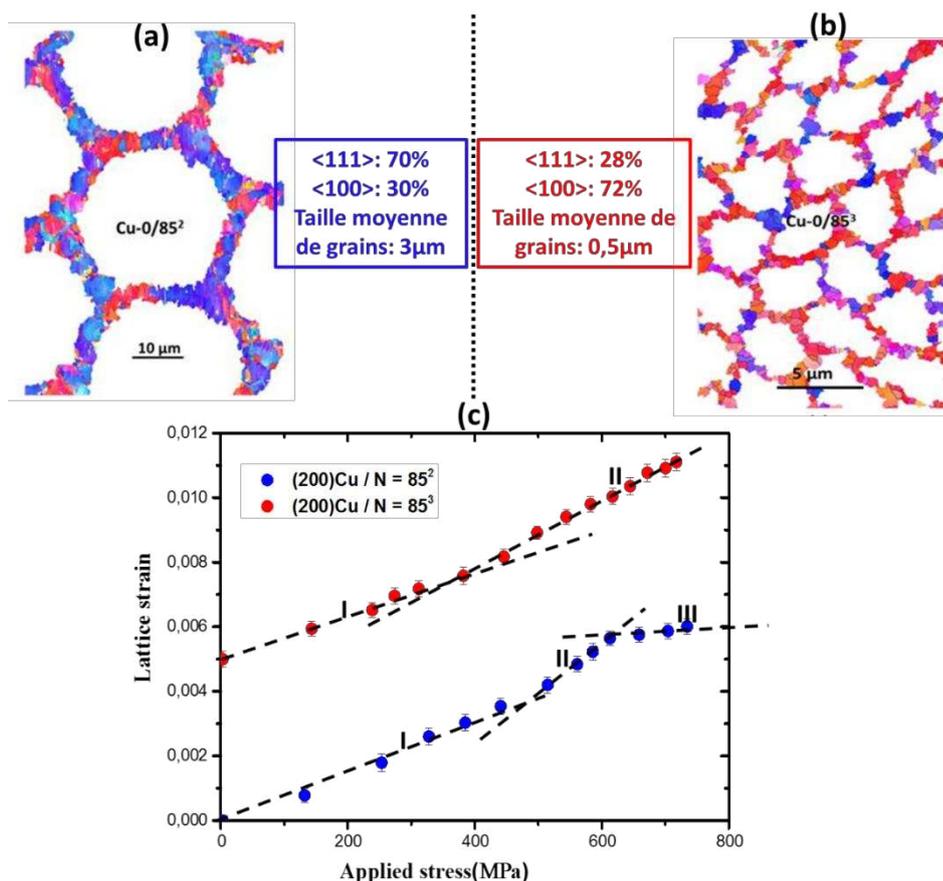
atteints dans le Nb durant les essais in-situ (même avec transfert de charge depuis la matrice), il semble normal que les renforts restent dans le régime élastique.

Pour la matrice de cuivre, la famille {111} met en évidence un comportement élasto-plastique avec une transition vers 450-500MPa, quel que soit l'échantillon. En revanche, la famille {200} a un comportement qui évolue en fonction de l'étage : elle a un comportement élasto-plastique dans l'échantillon  $N = 85^2$  et un comportement purement élastique dans les échantillons  $N = 85^3$  ( $d = 2\text{mm}$  et  $d = 0,3\text{mm}$ ). Rappelons que le domaine labellisé « II » dans la figure 5.8 (d), et observé sur les courbes correspondant à la famille {200}, se réfère au domaine élastique, l'accroissement de pente étant provoqué par un transfert de charge des zones plastifiées vers les zones élastiques (voir § IV.6.2 du chapitre IV). Nous allons nous concentrer par la suite uniquement sur cette famille car elle seule a un comportement mécanique qui varie avec les échantillons. Notons, cependant, que la plastification de la famille {111} avant la famille {200}, pour l'échantillon  $N = 85^2$ , en dépit d'un facteur de Schmid plus élevé pour cette dernière ( $m_{\{111\}} \approx 0,27$  et  $m_{\{200\}} \approx 0,4$ ), s'explique par le fait que les composites filamenteux Cu/Nb se déforment en mode « iso-déformation » : la déformation totale appliquée au fil global est identique à celle appliquée à chaque phase, les phases se déformant en parallèle. Cette hypothèse, comme nous le verrons par la suite, a été vérifiée par la modélisation du comportement mécanique par Tang Gu. La conséquence de ce mode « iso-déformation » est que, pour une même déformation élastique imposée, la famille {111} atteint rapidement une contrainte élevée puisque son module élastique est 2,865 fois plus élevé que celui de la famille {200} ( $E_{111} = 192\text{GPa}$ ,  $E_{200} = 67\text{GPa}$ ) : ce rapport 2,865 sur les modules d'Young ne peut être compensé par le rapport  $1/1,48 = 0,675$  sur les facteurs de Schmid. Tout autre paramètre étant par ailleurs identique, il est donc logique que la famille {111} plastifie avant la famille {200}, en mode « iso-déformation ».



**Figure 5. 8 :** Résultats des essais de déformation in-situ couplée à la diffraction des neutrons et des rayons X. Ces résultats concernent uniquement les familles de plans perpendiculaires à l'axe de traction des fils et correspondant aux 3 composantes majoritaires de texture dans les Cu/Nb. (a) et (b) diffraction des neutrons pour  $N = 85^2$  et  $85^3/d=2\text{mm}$ , (c)  $\rightarrow$  diffraction des rayons X pour  $N = 85^3/d=0,3\text{mm}$ , (d) familles (200) des deux échantillons au diamètre 2mm.

Nous avons vu, à travers les analyses locales de la texture, que la composante  $\langle 100 \rangle$  des canaux Cu-0 évoluait avec le nombre de cycles ADB. Nous allons, dans cette section, essayer d'établir le lien entre les différences de comportement mécanique de cette famille  $\{200\}$  et les variations microstructurales des différents échantillons. La figure 5.9 (a) et (b) présente un résumé des résultats EBSD pour les canaux Cu-0/85<sup>2</sup> et Cu-0/85<sup>3</sup>. Les courbes de déformation in-situ couplée à la diffraction des neutrons de la famille  $\{200\}$  du cuivre des échantillons (diamètre 2 mm)  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$  sont reportées en figure 5.9 (c).



**Figure 5. 9 :** Résumé des résultats EBSD des canaux Cu-0 : (a) échantillon  $N = 85^2$  ; (b) échantillon  $N = 85^3$ . En (c), déformation élastique en fonction de la contrainte appliquée des échantillons  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$ . Pour une meilleure visualisation des différents domaines, la courbe correspondant à l'échantillon  $N = 85^3$  a été volontairement décalée de 0,5% sur l'axe des déformations.

Comme mentionné précédemment, le retard affiché par la famille  $\{200\}$  à atteindre le régime plastique, par rapport à la famille  $\{111\}$ , dans l'échantillon  $N = 85^2$ , s'explique par le mode « iso-déformation » dans lequel se déforment les fils. Cependant la différence de comportement de la famille  $\{200\}$  dans les deux échantillons  $N=85^2$  et  $N=85^3$  doit provenir d'une différence microstructurale. Pour rappel, les résultats EBSD de la figure 5.9 (a) et (b) ont mis en évidence une inversion de la fraction volumique de grains texturés  $\langle 100 \rangle$  dans les canaux Cu-0 de l'échantillon  $N = 85^3$  (72% de  $\langle 100 \rangle$ ) par rapport à l'échantillon  $N = 85^2$  (30% de  $\langle 100 \rangle$ ). Ainsi, lors de la déformation in-situ de l'échantillon  $N=85^2$ , les neutrons qui diffractent sur les plans  $\{200\}$  sondent indistinctement les grains texturés  $\langle 100 \rangle$  dans tous les canaux de cuivre. Dans cet échantillon, tous les canaux de cuivre peuvent être considérés comme « larges » : la famille  $\{200\}$  présente donc un comportement élasto-plastique « classique ». En revanche, dans l'échantillon  $N=85^3$ , les grains texturés  $\langle 100 \rangle$  sondés par les neutrons proviennent majoritairement des canaux Cu-0 : ces grains sont beaucoup plus petits que dans l'échantillon précédent (taille moyenne de 0.5µm, contre 3µm dans le cas  $N=85^2$ , cf figure 5.9) ; ils peuvent donc être considérés comme « fins » et vont donc présenter une limite d'élasticité augmentée. Le résultat est alors qu'un effet de taille vient s'ajouter au retard à atteindre le régime plastique. Cet effet de taille est encore plus flagrant dans l'échantillon  $N = 85^3$  de diamètre 0,3mm, testé en déformation in-situ sous rayonnement

synchrotron (voir figure 5.8 (c)) : la famille {200} reste élastique jusqu'à la contrainte macroscopique de 1100MPa

Revenons quelques instants sur l'inversion de texture observée dans les canaux Cu-0 de l'échantillon N=85<sup>3</sup> : l'augmentation de la fraction volumique de la composante de recristallisation <100> des canaux Cu-0/85<sup>3</sup> peut être attribuée au même phénomène de « recristallisation confinée », tel qu'observé dans les composites Cu/Nb multicouches fabriqués par ARB [8] (cf. § I.5 chapitre I). Sur la figure 5.9 (b), on peut remarquer que les canaux Cu-0/85<sup>3</sup>, de largeur théorique d'environ 400nm, contiennent un ou deux grains. Ces grains qui étaient majoritairement orientés <111> à l'étage n = 85<sup>2</sup>, se sont réorientés selon la direction <100>, par recristallisation lors de l'étape d'extrusion à chaud permettant le passage à l'étage n = 85<sup>3</sup>. Les étapes d'étirage à froid ayant suivi cette extrusion à chaud n'ont pas pu transformer toute la texture de recristallisation <100> en texture de déformation <111>, car ces grains sub-micrométriques sont géométriquement confinés entre les renforts de niobium. La présence des interfaces Cu-Nb empêche ces grains d'évoluer vers la texture de déformation <111>, classiquement observée dans les autres canaux de la matrice et dans les canaux Cu-0 des étages précédents : la texture <100> est stabilisée dans les canaux fins Cu-0. Nous trouvons là un **effet indirect de l'architecture**.

Rajoutons qu'un autre paramètre, qui pourrait apporter une contribution au durcissement mécanique de la famille {200}, est la mise en place d'interfaces spécifiques Cu-Nb observées sur les cartographies EBSD des coupes longitudinales de l'échantillon N = 85<sup>3</sup> (figure 3.30 § 5.5.3 chapitre III). Ces interfaces spécifiques peuvent potentiellement modifier localement les propriétés de co-déformation des zones Cu-Nb, comme observé dans les composites multicouches Cu/Nb fabriqués par ARB [9 - 11]. Une étude plus poussée des interfaces est cependant nécessaire pour étudier plus précisément cet effet dans les fils Cu/Nb-F.

### V.3- Confrontation expériences/simulation

D'une manière générale, les matériaux polycristallins présentent des hétérogénéités qui peuvent se manifester depuis l'échelle du grain jusqu'à l'échelle de la pièce complète. Dans le cas des conducteurs Cu/Nb, comme nous l'avons vu tout au long de ce mémoire, ces hétérogénéités s'accroissent du fait même du caractère cyclique de la technique de fabrication ADB : en plus de la microstructure de chacune des phases, l'architecture (l'agencement des phases) est un paramètre important. Modéliser les propriétés de tels matériaux nécessite donc des modèles qui peuvent prendre en compte les différentes hétérogénéités microstructurales et l'architecture des phases en présence. Dans le cadre des travaux de thèse effectués par Tang Gu sur la simulation des micro-et nano-composites Cu-Nb-F, deux approches sont utilisées : une approche dite « champ moyen » et une autre dite « champ complet ». Dans cette partie, consacrée à la synergie entre les résultats expérimentaux et les simulations, nous allons présenter succinctement ces deux approches avant d'entamer la confrontation expériences/simulations.

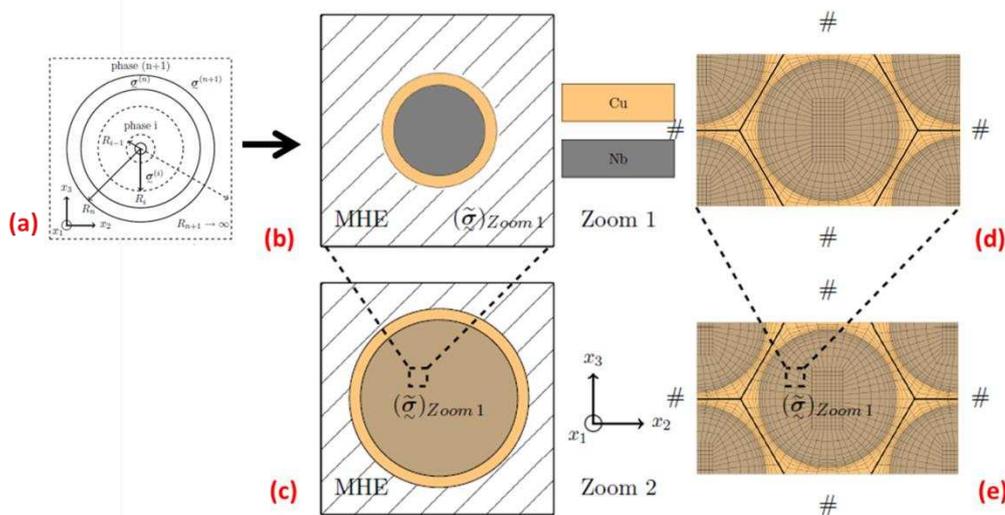
#### V.3.1- Simulations en champ moyen et en champ complet

Les méthodes en champ moyen ou méthodes auto-cohérentes généralisées (ACG) consistent à définir une inclusion constituée de n phases co-cylindriques dans une matrice homogène. Cette matrice est ensuite remplacée par un milieu homogène équivalent (MHE) pour lequel le

comportement effectif sera déterminé par une condition d'auto-cohérence [12]. Dans cette méthode, les éléments constitutifs de la microstructure sont aléatoirement répartis.

Les méthodes en champ complet, se basant sur des calculs par éléments finis, permettent une représentation explicite de la microstructure, via un maillage (2D ou 3D) associé à des conditions périodiques (homogénéisation périodique, HP). Cependant, l'utilisation des méthodes en champ complet reste très délicate du fait de leur coût numérique (temps de calcul) élevé.

Un schéma représentatif de ces deux approches est présenté à la figure 5.10. Ce schéma illustre le processus itératif utilisé pour la modélisation multi-échelle des conducteurs composites Cu/Nb. De manière générale, on commence par l'homogénéisation des composants individuels (H0) ; cette étape n'est pas présentée sur la figure, car elle n'est pas nécessaire pour simuler les propriétés électriques, le comportement isotrope et polycristallin étant connu. On passe ensuite au zoom 1 (H1) puis au zoom 2 et ainsi de suite jusqu'à remonter aux propriétés effectives macroscopiques du composite : c'est par ce biais que l'architecture des composites est prise en compte. La microstructure est, quant à elle, prise en compte via les « ingrédients » injectés dans la simulation pour décrire les composants individuels : constantes élastiques, taille des grains, texture, limites d'élasticités, conductivités électriques, etc. Tous les détails de ces simulations sont explicités dans la thèse de Tang Gu [13]

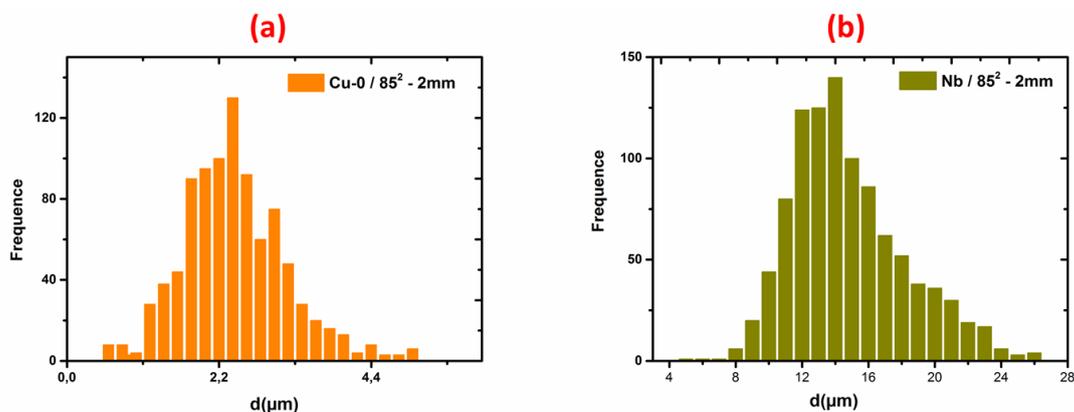


**Figure 5. 10 :** Schéma illustrant les simulations en champ moyen et en champ complet pour la modélisation de la conductivité électrique des Cu/Nb : (a) Passage du modèle auto-cohérent au modèle auto-cohérent généralisé (b) et (c) pour le champ moyen. (d) et (e) illustrent les étapes pour la simulation en champ complet. [12].

### V.3.2 - Simulation des propriétés électriques des conducteurs Cu/Nb-F

Afin de prendre en compte les effets de taille (induits ici par la largeur des canaux de cuivre) dans la simulation de la conductivité électrique des conducteurs Cu/Nb, il a été fait appel aux équations de Dingle, décrites par les équations (18) à (20) du chapitre II (§ II.9.1). En plus de la conductivité électrique du matériau à l'état massif (écroui ou non), ces équations prennent en compte l'effet de la réduction des dimensions des canaux sur la diffusion des électrons. Les dimensions théoriques des différents canaux de cuivre sont donc les premiers ingrédients permettant

de prendre en compte la microstructure des conducteurs Cu/Nb. Par ailleurs, nous avons pu constater que les dimensions réelles des canaux peuvent parfois varier localement (notamment en raison de la compatibilité de déformation du couple Cu/Nb) : les hétérogénéités géométriques des canaux ont donc été estimées par traitement d'images. Les résultats obtenus pour les canaux Cu-0/85<sup>2</sup> et des renforts individuels de Nb sont présentés à la figure 5.11 : les dimensions réelles peuvent alors être comparées aux dimensions théoriques des canaux Cu-0 et des filaments Nb, qui sont respectivement 2,2 $\mu$ m et 14 $\mu$ m. L'ensemble des résultats pour un échantillons de diamètres 2mm de l'étage n = 85<sup>3</sup> et un échantillon (d = 1mm) de l'étage n = 85<sup>2</sup> est donné à l'annexe AIII. Notons, toutefois, que les écarts entre dimensions réelles et dimensions théoriques n'ont que très peu d'influence sur la simulation des propriétés électriques : nous ne présentons donc ici que les propriétés électriques simulées en utilisant les dimensions théoriques (données dans les tableaux II.1 et II.2 du chapitre II).



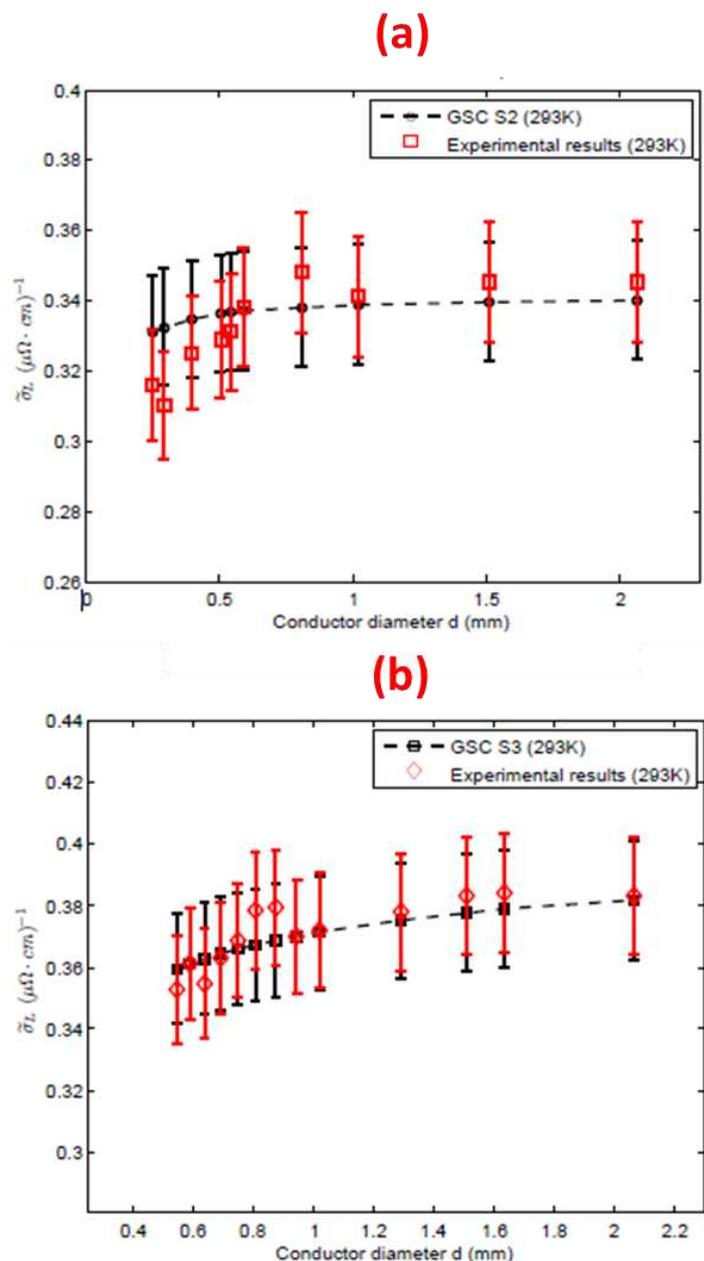
**Figure 5. 11** : Estimation des dimensions réelles des canaux Cu-0/85<sup>2</sup> et des filaments Nb pour un échantillon N = 85<sup>2</sup> de diamètre 2mm. Ces estimations ont été obtenues par traitement d'images MEB.

Les deux modèles, ACG et HP, ont été mis en oeuvre pour simuler les propriétés électriques des composites Cu/Nb-F et ont abouti aux mêmes résultats que ce soit pour la conductivité longitudinale ou pour la conductivité transverse [12].

### V.3.2.1 - Conductivité électrique longitudinale

Les résultats expérimentaux de la conductivité longitudinale présentés au chapitre II sont comparés aux résultats de la simulation à la figure 2.12. Ces résultats ont été obtenus sur deux gammes de diamètres : les résultats des échantillons de l'étage n = 85<sup>2</sup> sont présentés en (a) et ceux de l'étage n = 85<sup>3</sup>, en (b). Les résultats expérimentaux et de simulation sont en très bon accord, sauf pour les tous petits diamètres de l'étage n = 85<sup>2</sup>. L'écart observé entre expérience et simulation pourrait être dû à un effet d'érouissage non encore stabilisé à l'étage n = 85<sup>2</sup>; la prise en compte d'un érouissage plus important pour les petits diamètres de l'étage n = 85<sup>2</sup> permettrait, effectivement, d'abaisser les résultats de la simulation. Cette hypothèse semble se vérifier par le parfait accord entre les résultats expérimentaux et de simulation pour les échantillons de l'étage n = 85<sup>3</sup>. En effet, l'étage n = 85<sup>3</sup> correspond à des déformations cumulées équivalant au stade IV où le réseau de dislocations s'organise en structure stable dont les parois ont une faible capacité à

capturer de nouvelles dislocations ; la densité des dislocations est alors stable pour cette gamme d'échantillons et seule la réduction des dimensions des canaux induit la chute de conductivité en fonction du diamètre du fil.



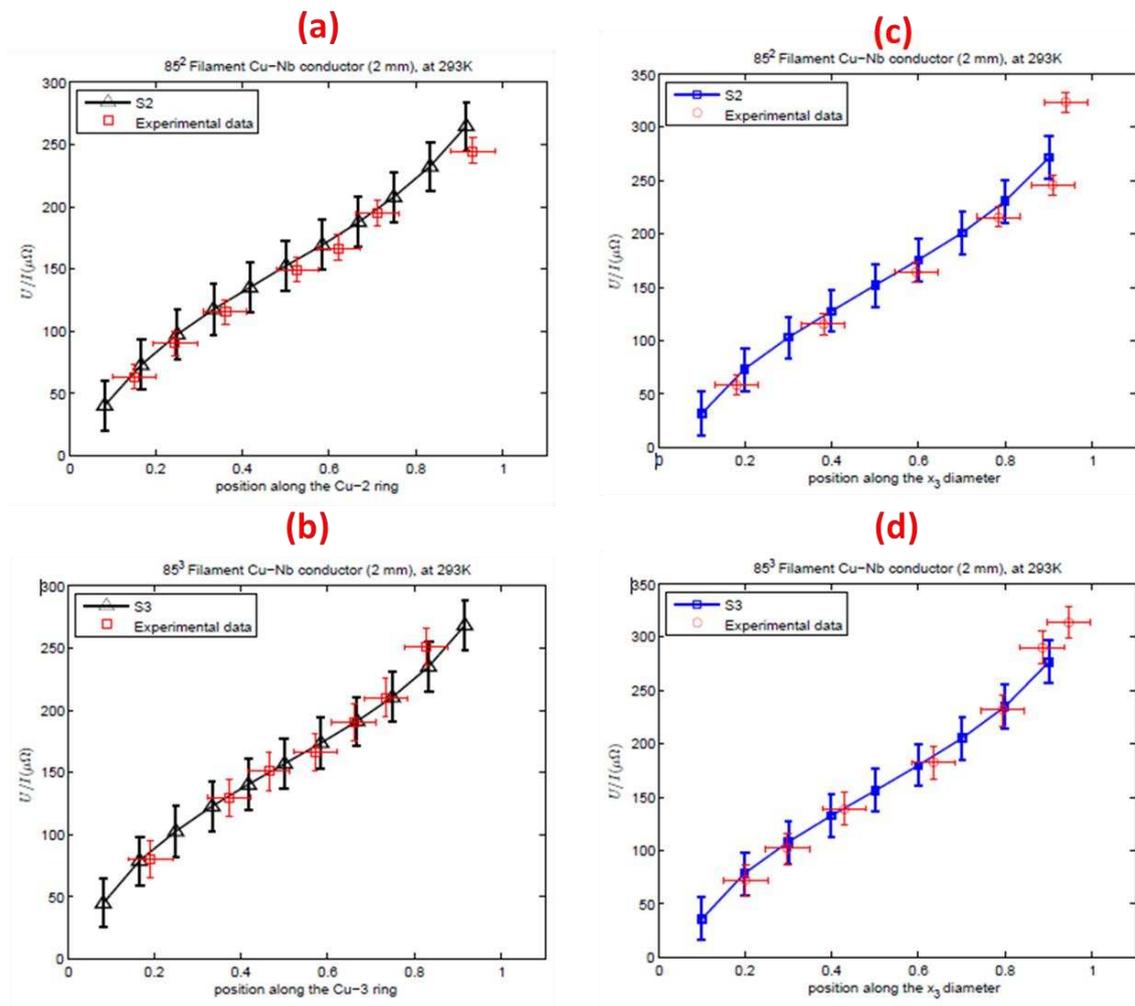
**Figure 5. 12** : Evolution de la conductivité longitudinale des conducteurs Cu/Nb-F en fonction du diamètre des échantillons : comparaison résultats expérimentaux et de simulation via le modèle ACG (GSC : Generalized Self Consistent).

### V.3.2.2 – Conductivité électrique transverse

La simulation (via le modèle ACG) des propriétés électriques transverses des conducteurs Cu/Nb a été effectuée en reproduisant la méthode expérimentale des quatre pointes, comme présentée au paragraphe II.9.2 du chapitre II. Le principe de la prise de mesure « simulée » est

## Chapitre V : synergie entre Microstructure, Architecture et Propriétés

aussi le même que pour les expériences (voir § II.9.4.1 chapitre II pour plus de détails) : obtention de points de mesure suivant la circonférence (canaux de cuivre extérieur, Cu-2/85<sup>2</sup> et Cu-3/85<sup>3</sup>) et suivant le diamètre (zones composites). Les positions des points de mesures expérimentales ont été utilisées dans les calculs de simulation. Les résultats simulés sont comparés aux résultats expérimentaux à la figure 5.13. Pour tous les graphiques, les positions sont relatives, c'est-à-dire rapportées à un pourcentage de 180° (180° correspondant à 100%) pour les mesures suivant la circonférence et à un pourcentage du diamètre réel de 2 mm (2mm correspondant à 100%) pour les mesures suivant le diamètre. Les résultats de la simulation sont en parfait accord avec les résultats expérimentaux pour les échantillons de diamètre 2mm. Les calculs pour les échantillons de diamètre 4,5mm sont en cours.



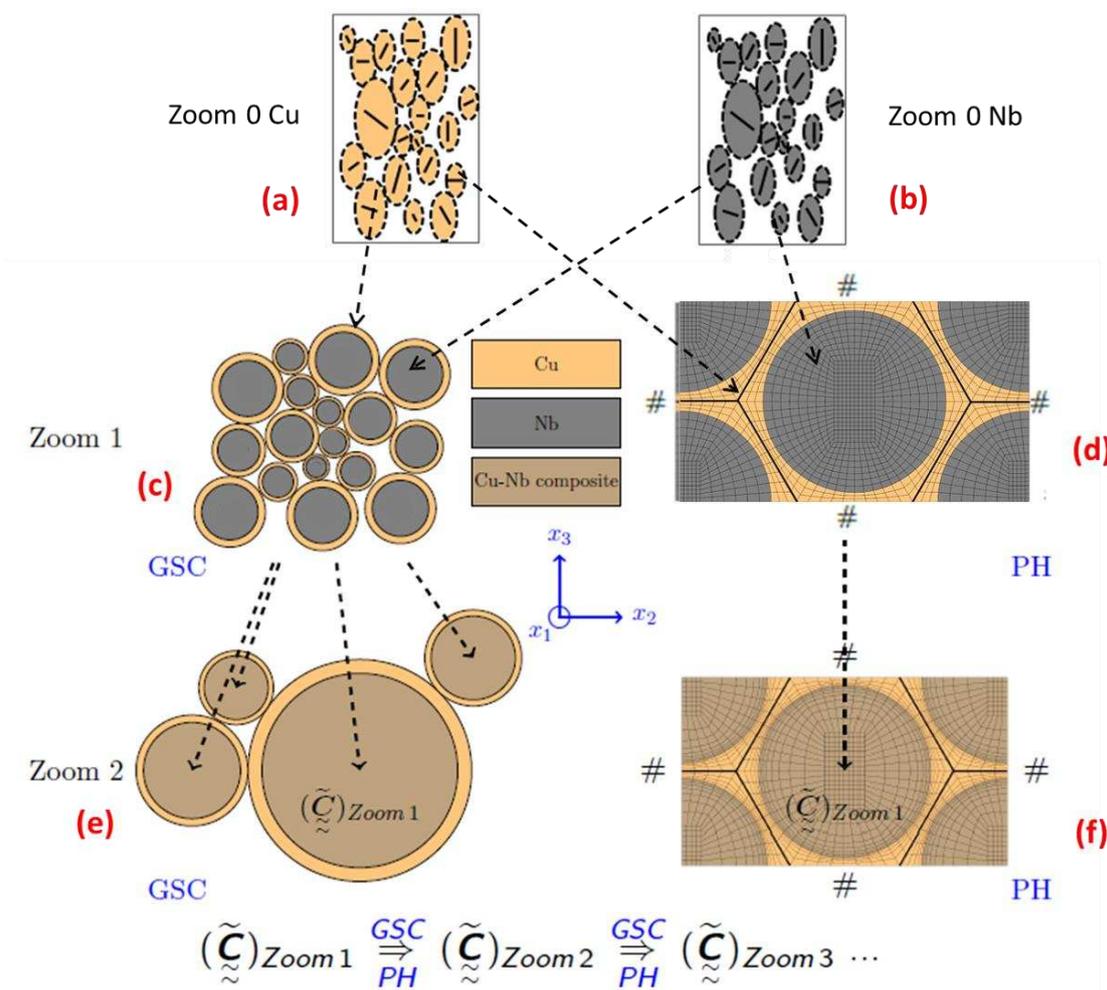
**Figure 5. 13 :** Comparaison expérience/simulation de la résistance transverse de deux conducteurs Cu/Nb-F/d=2mm. (a) et (b) mesures suivant la circonférence (canal extérieur de Cu) des échantillons  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$  respectivement, (c) et (d) mesures suivant le diamètre (zones composites des échantillons  $N = 85^2$  et  $N = 85^3$  respectivement). S2 : simulation ACG pour une structure à deux niveaux d'empilement ( $85^2$ ) ; S3 : simulation ACG pour une structure à deux niveaux d'empilement ( $85^3$ ).

### V.3.3- Simulation des propriétés mécaniques

La modélisation du comportement mécanique des conducteurs Cu/Nb-F a été effectuée suivant les deux approches décrites précédemment, i.e. en champ moyen et en champ complet. Si, pour les propriétés électriques il n'était pas nécessaire d'homogénéiser les composants individuels

en raison du caractère isotrope de la conductivité électrique du cuivre et du niobium, dans le cas de la modélisation mécanique la définition des composants H0 est indispensable. Cette étape permettra, à partir de l'établissement des équations constitutives pour les différents grains (dérivés des mono-cristaux) d'effectuer la transition mono-cristal  $\rightarrow$  poly-cristal.

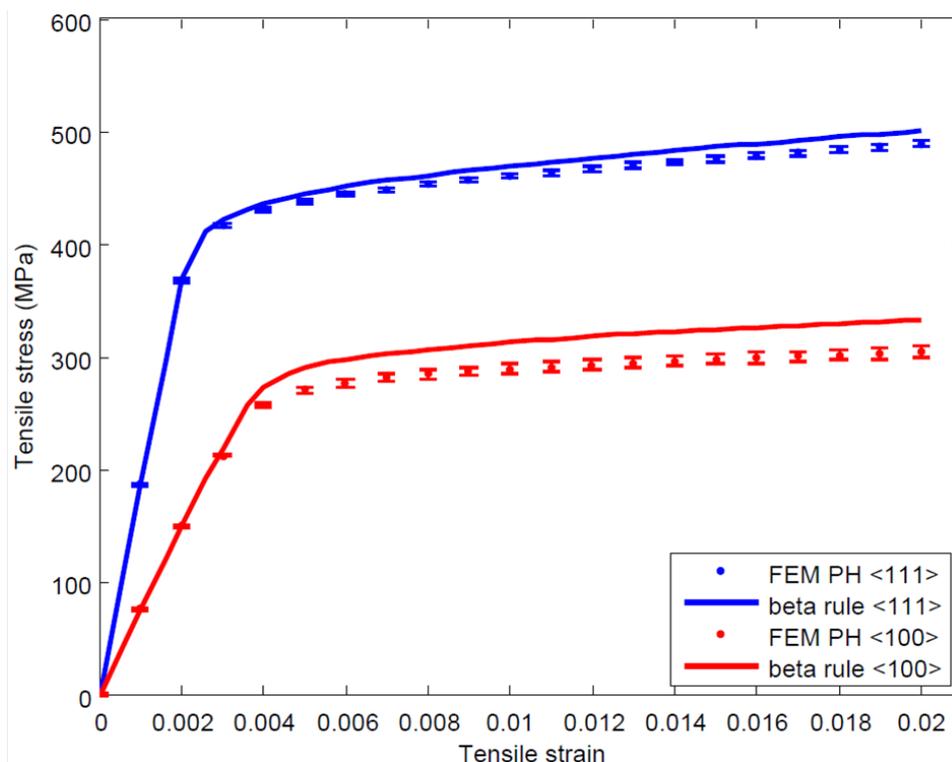
En ce qui concerne le cuivre, le choix a été fait d'utiliser le modèle d'écroutissage isotrope et cinématique de L. Méric [14] associé aux paramètres du cuivre poly-cristallins de A. Musienko [15]. Pour plus de détails, le lecteur pourra se référer à la référence [16]. Au niveau des composants H0, la texture cristallographique et la taille des grains sont prise en compte en injectant les résultats expérimentaux déduits des analyses de la texture locale obtenue par EBSD. Une fois le calcul sur H0 terminé, on procède au processus itératif jusqu'à l'obtention du comportement macroscopique, comme décrit dans la figure 5.14.



**Figure 5. 14 :** Schéma de la modélisation multi-échelle des composites Cu/Nb. (a) et (b) poly-cristal de cuivre et de niobium (ingrédients H0), (c) et (e) processus itératif pour la modélisation en champ moyen, (d) et (f) processus itératif pour la modélisation en champ complet. **Note :** GSC  $\rightarrow$  Generalized Self-Consistent (Auto-Cohérent Généralisé); PH  $\rightarrow$  Conditions aux limites périodiques [13].

La figure 5.15 présente la simulation, suivant deux approches, du niveau H0 de la matrice de cuivre, c'est-à-dire le cuivre poly-cristallin composé de deux familles de grains, orientés selon  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$ : la simulation en champ moyen (ACG) est effectuée en utilisant la « règle en  $\beta$  » d'après le modèle de Kröner [17] apportant des corrections dans l'interaction entre grains

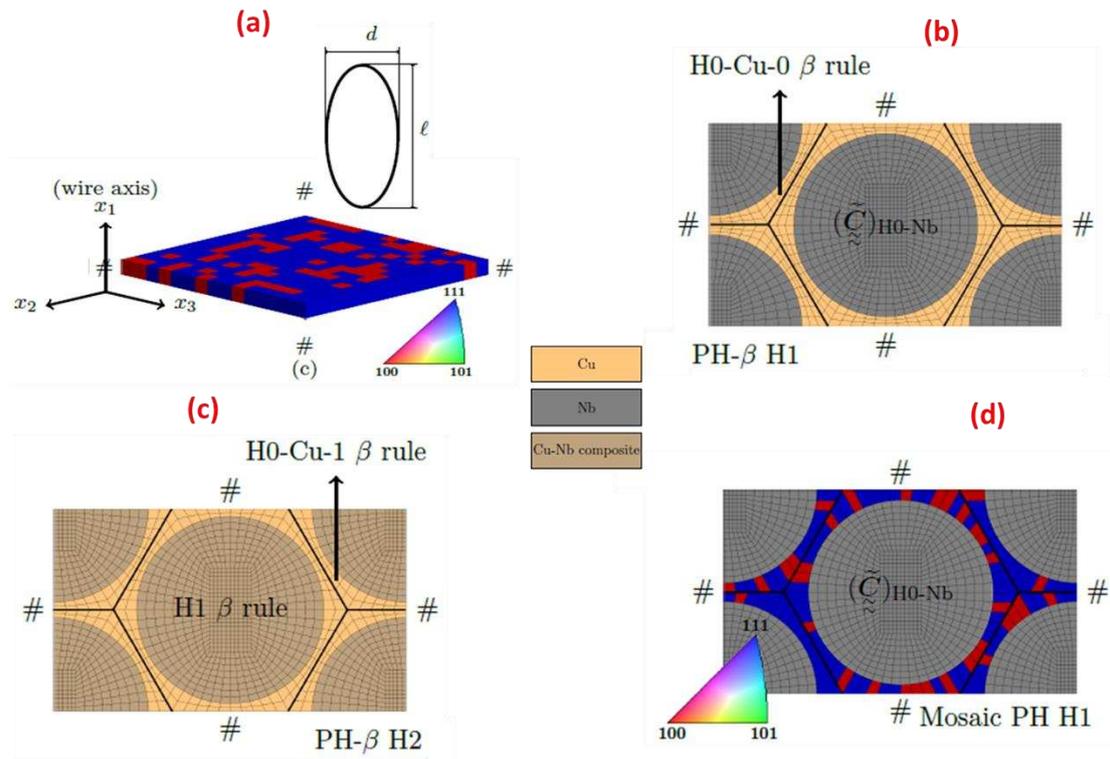
(équivalant à un assouplissement élasto-plastique) ; la simulation en champ complet est effectuée par un calcul par éléments finis avec des conditions aux limites périodiques (FEM-PH). Pour les deux modèles, les caractéristiques « réelles » des grains ont été prises en compte. Les fractions volumiques des composantes de texture et la taille moyenne des grains utilisées sont celles obtenues par EBSD. Le rapport  $l/d$  entre la longueur et le diamètre des grains a été pris égal à l'infini, ce qui correspond assez bien aux observations microstructurales effectuée sur les composites Cu/Nb [1, 2, 4]. Ces résultats, comme nous pouvons le voir sur la figure 5.15, valident l'hypothèse d'iso-déformation évoquée au paragraphe V.2.3 pour expliquer le retard de la famille  $\{200\}$  du cuivre à atteindre le régime plastique, par rapport à la famille  $\{111\}$ .



**Figure 5. 15 :** Comportement élasto-plastique des familles de grains  $\{200\}$  et  $\{111\}$  du cuivre mettant en évidence le mode « iso-déformation » de la matrice de cuivre. Les calculs ont été effectués par éléments finis avec conditions aux limites périodiques et par la règle en  $\beta$  pour un essai de traction uniaxiale [16].

C'est sur cette même base que les résultats des essais de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons ont été simulés pour mieux appréhender le comportement élasto-plastique moyen des familles de grains correspondant aux trois composantes majoritaires de texture des Cu/Nb-F. Nous présentons succinctement, dans la figure 5.16, deux variantes de la simulation en champ complet (FEM-PH) mises en œuvre pour la simulation des essais in-situ. La figure 5.16(a) schématise la morphologie des grains ( $l/d \rightarrow \infty$ ) et la prise en compte des fractions volumiques réelles des composantes de texture dans le maillage associé au cuivre poly-cristallin H0. La figure 5.15(b) présente le système périodique H1 composé des filaments de Nb (H0-Nb) et des canaux Cu-0 (H0-Cu). Pour le Cu-0, la « règle en  $\beta$  » a été utilisée pour l'homogénéisation H0. La figure 5.16(c) présente le système périodique H2, composé des zones homogénéisées H1 précédentes, prises dans les canaux Cu-1 (H0-Cu). Pour le Cu-1, la « règle en  $\beta$  » a aussi été utilisée pour

l'homogénéisation H0. La figure 5.16 (d) est une variante de la simulation du système périodique H1 : pour les canaux Cu-0, une distribution non-aléatoire est imposée pour les composantes de texture ; cette « mosaïque » est traitée en plasticité cristalline.



**Figure 5. 16** : Modélisation multi-échelle du comportement élasto-plastique effectif des conducteurs Cu/Nb-F : (a) définition des grains et maillage avec prise en compte des textures EBSD, (b) Modèle PH- $\beta$  pour le calcul de H1, (c) Modèle PH- $\beta$  pour H2 ; (d) variante « mosaïque » de H1 avec distribution spatiale non aléatoire de la texture dans les canaux Cu-0 [16].

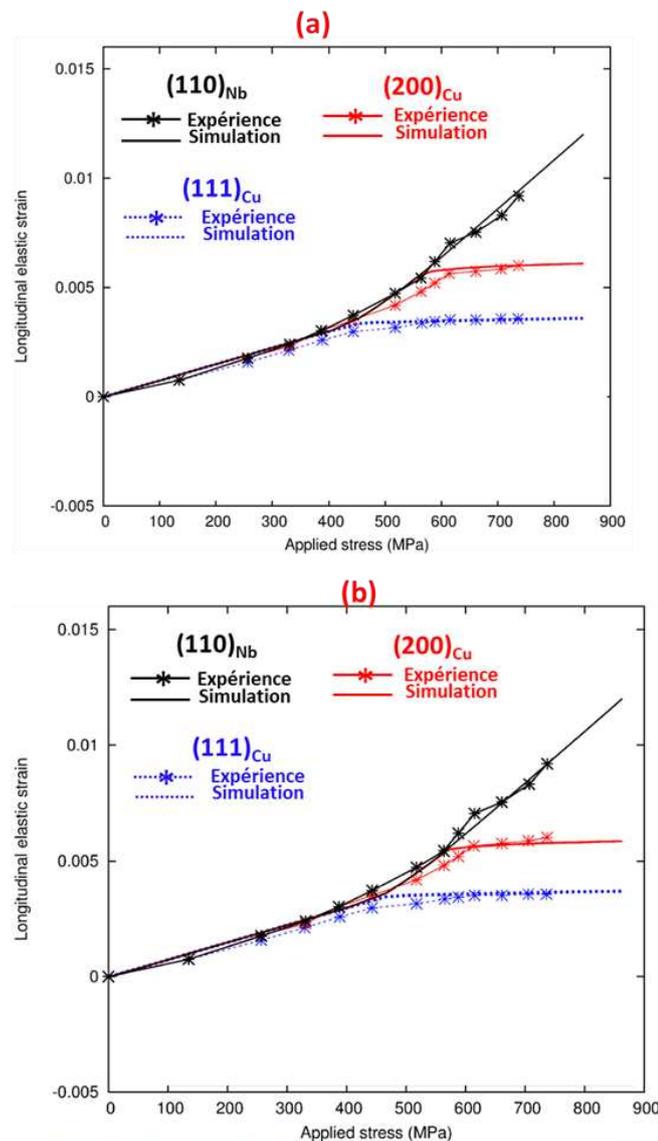
La figure 5.17 propose une comparaison expérience/simulation du comportement élasto-plastique des familles de grains  $\{111\}_{Cu}$ ,  $\{100\}_{Cu}$  et  $\{110\}_{Nb}$  pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction de l'échantillon  $N = 85^2$  de diamètre 2mm. Les contraintes résiduelles n'ayant pas été estimées pour cet échantillon, nous nous sommes basés sur les travaux antérieurs de V. Vidal et al. [6], sur des conducteurs dits de « première génération » ( $55^4$  filaments Nb dans la matrice multi-échelle de Cu) : les canaux de cuivre « larges » présentent une contrainte résiduelle de -109MPa (compression résiduelle), les canaux de cuivre « fins » ont une contrainte résiduelle de -523MPa (compression résiduelle) et les renforts de Nb de +278MPa (traction résiduelle).

Dans une première approche, les contraintes internes ont donc été prises égales à -100MPa pour le cuivre (les canaux étant tous « larges » à ce stade : étage  $n = 85^2$ ) et +125MPa pour le niobium (cette dernière valeur provenant du respect de l'équilibrage interne des contraintes résiduelles de chaque phase). La limite d'élasticité du cuivre a été prise égale à 430MPa (pour

## Chapitre V : synergie entre Microstructure, Architecture et Propriétés

rappel, la limite d'élasticité du cuivre écroui est de 350MPa : on a donc considéré ici un léger effet de taille) et le niobium est considéré purement élastique. Les résultats expérimentaux et de simulation concordent plutôt bien, comme nous pouvons l'observer sur la figure 5.17a.

Dans une seconde approche, la limite d'élasticité du cuivre n'a pas été modifiée (et donc prise égale à 350MPa). On retrouve un bon accord entre expérience et simulation uniquement si les contraintes résiduelles sont fortement augmentées : -200MPa pour le cuivre et +250MPa pour le niobium (figure 5.17 (b)). Ces valeurs de contraintes semblent néanmoins un peu exagérées pour un fil de l'étage  $n = 85^2$  : la première approche semble donc plus réaliste.



**Figure 5. 17** : Comparaison des résultats de déformation in-situ couplée à la diffraction des neutrons avec la simulation pour des plans perpendiculaires à l'axe de traction du fil ( $N = 85^2/d=2mm$ ) des familles de grains  $\{110\}_{Nb}$ ,  $\{200\}_{Cu}$  et  $\{111\}_{Cu}$ . (a) Prise en compte des contraintes résiduelles avec une limite d'élasticité de 430MPa pour le cuivre. (b) limite d'élasticité de 350MPa pour le cuivre et contraintes résiduelles augmentées.

### V.4- Bilan

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons mené la discussion autour des résultats sur les propriétés mécaniques et électriques et sur l'impact de la microstructure et de l'architecture des conducteurs micro-et (nano)-composites cuivre/niobium filamenteux :

- ❖ Nous avons montré que les propriétés mécaniques macroscopiques observées avaient un lien direct avec la microstructure de ces composites : ces propriétés sont fonction du taux d'écroutissage et/ou de la taille des canaux de cuivre et des renforts de niobium. En particulier, un effet de taille apparaît lorsque le diamètre des filaments Nb se situe autour de 600nm (correspondant à un diamètre de 1mm pour un échantillon de l'étage  $N = 85^3$ ). La contrainte maximum de traction présente alors une dépendance exponentielle en fonction du diamètre de ces filaments.
- ❖ Les essais de déformation in-situ couplés à la diffraction des neutrons et des rayons X, nous ont permis de mettre en évidence :
  - 1- Le mode « iso-déformation » des Cu-Nb-F lors des essais de traction uniaxiale suivant l'axe des fils.
  - 2- Le comportement purement élastique des filaments de Nb et le comporte élasto-plastique de la famille de grains  $\langle 111 \rangle$  du cuivre (en accord avec les résultats antérieurs).
  - 3- Le comportement élasto-plastique ou purement élastique de la famille de grains  $\{200\}$  du cuivre, en fonction de l'étage considéré.
- ❖ Nous avons aussi mis en évidence un effet de taille et un effet d'écroutissage qui diminuent la conductivité électrique des conducteurs. Pour les échantillons de l'étage  $n = 85^2$ , l'écroutissage semble être prédominant sur l'effet de taille (la densité de dislocations étant encore importante à l'intérieur des grains). En revanche, pour les échantillons de l'étage  $n = 85^3$ , tous les canaux Cu-0 et certains canaux Cu-1 sont nanométriques pour les diamètres en dessous du millimètre. Pour ces canaux fins de cuivre dépourvus de dislocations, c'est l'effet de taille qui est essentiellement responsable de la baisse des propriétés électriques, la largeur de ces canaux étant inférieure ou proche du libre parcours moyen électronique du Cu écroui.
- ❖ Les analyses de la texture locale par EBSD se sont révélées très importantes car elles nous ont permis :
  - 1- De confirmer certaines hypothèses déjà émises lors d'interprétation de précédents résultats, notamment sur l'évolution de la microstructure de ces conducteurs avec les cycles ADB : modification des textures d'équilibre aux étages avancés du procédé ADB (recristallisation confinée) + impact de la microstructure locale sur le comportement elasto-plastique macroscopique.
  - 2- De quantifier localement la texture des conducteurs Cu/Nb et de mettre en évidence les variations locales des fractions des composantes de texture du cuivre en fonction du nombre de cycles ADB.
  - 3- D'observer les premiers stades d'une probable construction d'interfaces spécifiques Cu-Nb de type  $\langle 111 \rangle // \langle 110 \rangle$  et/ou  $\langle 100 \rangle // \langle 110 \rangle$ .
  - 4- De faire le lien direct entre le comportement mécanique des familles de grains et la microstructure des différentes régions du matériau.

5- De mettre en évidence un effet d'architecture au travers de la texture spécifique apparaissant dans les canaux Cu-0 les plus fins.

Dans la deuxième partie, nous avons confronté les résultats expérimentaux avec ceux de la simulation :

- ❖ Les modèles, en champ complet et en champ moyen, ont validé l'hypothèse d'iso-déformation en traction uniaxiale des conducteurs Cu/Nb
- ❖ Les résultats de simulation pour les propriétés électriques longitudinales et transversales sont en parfait accord avec les résultats expérimentaux et confirment le rôle de l'écroutissage et des dimensions des canaux de cuivre
- ❖ Les comportements mécaniques moyens des familles de grains sont aussi en très bon accord avec les résultats de déformation in-situ couplée à la diffraction des neutrons pour l'échantillon N = 85<sup>2</sup> de diamètre 2mm.

### Références

- [1] Ludovic Thilly, Rapport de thèse, «Exploration théorique et expérimentale de fils « nanocomposites continus » présentant des propriétés extrêmes de conductivité électrique et de limite élastique. Application future : coilin 100 T.,» Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, Toulouse, 2000.
- [2] Vanessa VIDAL, Rapport de thèse, «Optimisation des propriétés mécaniques des conducteurs nano lamenteux Cu/X- X=Nb ou Ta,» Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, Toulouse, 2006.
- [3] Jean-Baptiste DUBOIS, Rapport de thèse, «Conducteurs nanocomposites métalliques élaborés par déformation plastique sévère : formation et stabilité thermo-mécanique des nanostructures, propriétés induites.,» Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées de l'université de Poitiers, Poitiers, 2010.
- [4] Florence Dupouy, Rapport de thèse, «Contribution au développement des Champs Magnétiques Pulsés très Intenses: R & D des Conducteurs Renforcés,» INSA-Toulouse, Toulouse, 1995.
- [5] L. Thilly, S. V. Petegem, P.-O. Renault, F. Lecouturier, V. Vidal, B. Schmitt, H. V. Swygenhoven, «A new criterion for elasto-plastic transition in nanomaterials: Application to size and composite effects on Cu–Nb nanocomposite wires,» *Acta Materialia*, vol. 57, p. 3157–3169, 2009.
- [6] Vanessa Vidal, Ludovic Thilly, Steven Van Petegem, Uwe Stuhr, Florence Lecouturier, Pierre-Olivier Renault, Helena Van Swygenhoven, «Size Effect in the Plasticity of Multiscale Nanofilamentary Cu/Nb Composite Wires During in-situ Tensile Tests Under Neutron Beam,» *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, vol. 977, 2007.
- [7] J.B. Dubois, L. Thilly, P.O. Renault, F. Lecouturier, M. Di Michiel, «Thermal stability of nanocomposite metals: In situ observation: In situ observation of anomalous residual stress relaxation during annealing under synchrotron radiation,» *Acta Materialia*, vol. 58, p. 6504–6512, 2010.
- [8] S.C.V. Lim and A.D. Rollett, «Length Scale Effects on Recrystallization and Texture Evolution in Cu layers of a Roll-Bonded Cu-Nb Composite,» *Mater Sci Eng A*, vol. 520, pp. 189-196, 2009.
- [9] John S. Carpenter, Rodney J. McCabe, Jason R. Mayeur, Nathan A. Mara, Irene J. Beyerlein, «Interface-Driven Plasticity: The Presence of an Interface Affected Zone in Metallic Lamellar Composites,» *Advanced Engineering Materials*, pp. 1-6, 2014.
- [10] M.J. Demkowicz, L. Thilly, «Structure, shear resistance and interaction with point defects of interfaces in Cu–Nb nanocomposites synthesized by severe plastic deformation,» *Acta Materialia*, vol. 59, p. 7744–7756, 2011.
- [11] S.J. Zheng, J. Wang, J.S. Carpenter, W.M. Mook, P.O. Dickerson, N.A. Mara, I.J. Beyerlein, «Plastic instability mechanisms in bimetallic nanolayered composites,» *Acta Materialia*, vol. 79, p. 282–291,

2014.

- [12] T. Gu, E. Herve-Luanco, H. Proudhon, L. Thilly, J.-B. Dubois, F. Lecouturier, O. Castelnau et S. Forest, «Modélisation multi-échelle du comportement électrique de nano-composites Cu-Nb,» *Matériaux & Techniques*, vol. 103, 2015.
- [13] Tang GU, Rapport de thèse, «Modélisation des propriétés mécaniques et électriques de composites Cu/Nb,» Mines, Paris, 2017.
- [14] L. Méric, P. Poubanne, G. Cailletaud., «Single crystal modeling for structural calculations: part 1 - model presentation.,» *Journal of Engineering Materials and Technology*, vol. 113, pp. 162-170, 1991.
- [15] A. Musienko, A. Tatschl, K. Schmidegg, O. Kolednik, R. Pippan, G. Cailletaud, «Three-dimensional finite element simulation of a polycrystalline copper specimen.,» *Acta materialia*, vol. 55, pp. 4121-4136, 2007.
- [16] T. Gu, J.-R. Medy, O. Castelnau, S. Forest, V. Klosek, E. Hervé-Luanco, F. Lecouturier, H. Proudhon, L. Thilly, «Multiscale modeling of the elasto-plastic behavior of architected and nanostructured Cu-Nb composite wires,» *Acta Materialia*, 2016 (à venir).
- [17] E. Kröner , «Zur Plastischen Verformung des Vielkristals,» *Acta Metall*, vol. 9, pp. 155-161, 1961.

**CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES**

### Conclusion générale et perspectives

L'objectif des travaux de recherche menés durant cette thèse sur la caractérisation des conducteurs micro-et (nano)-composites cuivre/niobium était double. D'une part, ces travaux s'inscrivaient dans la continuité de l'interprétation des propriétés macroscopiques remarquables de ces composites. D'autre part, l'intérêt se portait sur la collecte de données expérimentales fines (locales) permettant de comprendre la formation de la microstructure et robustes pour alimenter la modélisation. Pour ce faire, des échantillons prélevés à deux étapes intermédiaires de la fabrication (étages  $n = 85^2$  et  $n = 85^3$ ) ont été étudiés, l'étage  $n = 85^2$  étant étudié en détails pour la première fois.

En ce qui concerne la caractérisation des propriétés macroscopiques, différentes techniques de caractérisation ont été utilisées : des essais de traction uniaxiale et des mesures de conductivité longitudinale, à la température ambiante (293K) et à la température de l'azote liquide (77K) ; notons que des mesures de conductivité transverse ont été effectuées, pour la première fois, sur ces conducteurs, donnant accès à des informations inédites.

Les essais de traction ont mis en évidence une augmentation de la limite d'élasticité des composites avec le raffinement de leur microstructure. Nous avons montré que l'augmentation des performances mécaniques était due à la combinaison de deux effets : effet d'écroûissage et/ou un effet de taille. Pour les échantillons de l'étage  $n = 85^3$  où les cellules de dislocations sont stables, un effet de taille prononcé a été mis en évidence sur des échantillons de diamètre égal ou inférieur à 1mm. A partir de ces dimensions ( $d_{Nb} = 600\text{nm}$  pour  $d_{éch} = 1\text{mm}$ ), la contrainte des filaments de niobium dépend exponentiellement de leur diamètre ( $d_{Nb}$ ), confirmant leur caractère whiskers, déjà observé lors de précédentes études. Nous avons aussi montré, par l'utilisation du critère  $E/3$  où  $E$  représente le module d'Young, que ces composites sont dotés d'une limite d'élasticité très proche de leur contrainte maximale de traction (UTS).

Les mesures sur la conductivité électrique ont mis en évidence une diminution de la conductivité provenant d'une combinaison d'effets de taille et d'écroûissage. L'effet de taille devient prépondérant, lorsque les dimensions des canaux de cuivre sont comparables au libre parcours moyen électronique à 293K. Pour les mesures de conductivité transverse, réalisées sur des échantillons avec des canaux de cuivre plutôt micrométriques, les zones composites ont une conductivité plus faible que les canaux extérieurs. Cet écart pouvant s'expliquer par des mécanismes de diffusion électronique accrue dans les zones composites.

Les résultats obtenus sur les essais mécaniques et électriques sont en très bon accord avec les précédentes études réalisées sur les conducteurs Cu/Nb où une excellente combinaison limite d'élasticité/conductivité électrique a toujours été mise en évidence. Notons que les conducteurs étudiés dans ce mémoire sont obtenus sans traitements thermiques intermédiaires.

Les analyses de la texture globale par diffraction des rayons X ont révélé, sans surprise, des résultats similaires aux précédentes études sur la microstructure des conducteurs Cu/Nb-F :

- Les filaments de niobium sont texturés à 100% selon une composante unique  $\langle 110 \rangle$  dès l'étage  $n = 85^2$ .

## Conclusion générale et perspectives

---

➤ Une double texture dans la matrice multi-échelle de cuivre apparaît rapidement : une composante  $\langle 111 \rangle$  très prononcée et une composante  $\langle 100 \rangle$ , moins intense.

Du fait du caractère multi-échelle de la matrice de cuivre, une analyse locale de la texture s'est révélée d'une grande importance dans la connaissance de la microstructure très complexe des conducteurs nano-composites architecturés Cu/Nb. La nécessité de cette analyse locale de la texture figurait dans toutes les perspectives des précédents travaux sur ces matériaux. Ainsi un protocole de préparation des surfaces de ces matériaux à fort contraste mécano-chimique a été mis en place et a permis l'acquisition de données inédites sur la texture locale des composites Cu/Nb. Les résultats EBSD, riches en informations, ont révélées la répartition spécifique des trois composantes majoritaires de texture précédemment trouvées par l'analyse globale de la texture.

- Une composante unique de texture, similaire à celle de l'analyse globale, a été mise en évidence dans les filaments de niobium. Si la texture du niobium n'évolue pas de façon significative de l'étage  $n = 2$  à l'étage  $n = 3$  (100% texturé dès l'étage  $n = 2$ ), la taille moyenne des grains, en revanche, a été divisée par trois.
- En ce qui concerne la matrice de cuivre, les deux composantes majoritaires de texture du cuivre restent quasiment les mêmes ( $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$ ). Cependant, la fraction volumique de ces composantes dépend du nombre de cycles ADB. Dans les canaux de cuivre large, les fractions volumiques des composantes restent dans des proportions similaires (80%  $\langle 111 \rangle$  et 20%  $\langle 100 \rangle$ ) aux résultats obtenus en DRX. Par contre, dans les canaux de cuivre fin, notamment les canaux de Cu-0, on observe une inversion totale des fractions volumiques : dans **Cu-0/85<sup>2</sup>, 70%  $\langle 111 \rangle$  et 30%  $\langle 100 \rangle$**  ; dans **Cu-0/85<sup>3</sup>, 28%  $\langle 111 \rangle$  et 78%  $\langle 100 \rangle$** . Nous avons interprété l'augmentation de la fraction volumique de la composante  $\langle 100 \rangle$  du Cu-0/85<sup>3</sup> comme étant une conséquence de la « recristallisation confinée » dans les canaux fins de cuivre où les grains (un ou deux dans la largeur de ces canaux) sont spatialement confinés entre les filaments de niobium. Après l'étape de recristallisation imposée à la fin du second cycle ADB (extrusion à chaud), les étapes de déformation à froid n'arrivent pas à transformer toute la composante de recristallisation  $\langle 100 \rangle$  en composante de déformation  $\langle 111 \rangle$  dans ces canaux fins, au contact des filaments de Nb.

Les analyses EBSD sur une coupe longitudinale de l'échantillon  $N = 85^3$  ont mis en évidence ce qui pourrait être une signature de la construction d'interfaces spécifiques Cu-Nb similaires à celles observées dans Cu/Nb-ARB. En effet, dans les canaux Cu-1/85<sup>3</sup>, au contact direct des filaments de niobium, nous avons observé des grains très allongés suivant l'axe du fil. Ces grains sont orientés soit  $\langle 111 \rangle$  soit  $\langle 100 \rangle$ , tandis que les grains présents dans le volume du canal Cu-1 présentent une distribution assez complexe avec des orientations de types  $\langle 110 \rangle$  et  $\langle 211 \rangle$ . Ces grains orientés  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$  au contact des filaments de niobium pourraient indiquer les prémices de la mise en place des interfaces  $\langle 111 \rangle // \langle 110 \rangle$  et/ou  $\langle 100 \rangle // \langle 110 \rangle$  déjà observées antérieurement par des analyses MET sur les Cu/Nb fabriqués par ADB. Cette observation est peut être aussi à relier avec la stabilisation de l'orientation  $\langle 100 \rangle$  dans les canaux les plus fins, en lien avec le phénomène de recristallisation confinée.

Les propriétés mécaniques de chaque phase (matrice de Cu et renforts de Nb) ont été caractérisées par des essais de traction in-situ couplée à la diffraction des neutrons et au rayonnement synchrotron. Un intérêt particulier a été porté aux familles de grains correspondant

## Conclusion générale et perspectives

---

aux trois composantes majoritaires de texture dans les conducteurs Cu/Nb. Ces essais ont mis en évidence des comportements mécaniques différents pour chacune des familles de grains :

Pour l'échantillon  $N = 85^2$  de diamètre 2mm :

- la famille  $\{110\}_{\text{Nb}}$ , correspondant à la composante unique de texture des filaments de niobium, a un comportement purement élastique ;
- les familles  $\{111\}_{\text{Cu}}$ ,  $\{200\}_{\text{Cu}}$  ont un comportement élasto-plastique avec une transition vers 450MPa pour la première et une transition vers 600MPa pour la seconde. Ces résultats nous ont aussi montré que les fils Cu/Nb se déforment uniaxialement en mode « iso-déformation ».

En ce qui concerne les échantillons  $N = 85^3$ , les familles  $\{110\}_{\text{Nb}}$  et  $\{111\}_{\text{Cu}}$  ont les mêmes comportements mécaniques que dans l'échantillon  $N = 85^2$ , cependant la famille  $\{200\}$  a un comportement différent :

- la famille  $\{200\}_{\text{Cu}}$  présente un comportement purement élastique dans les échantillons  $N = 85^3$  de diamètres 2mm et 0,3mm. Le comportement élastique de cette famille dans ces échantillons est la signature d'effets couplés de taille et d'architecture : en effet, le procédé ADB induit, aux étapes avancées de la fabrication, une architecture où les canaux fins de cuivre se retrouvent majoritairement orientés  $\langle 100 \rangle$ . Cette localisation préférentielle des grains texturés  $\langle 100 \rangle$  dans les zones les plus affinées induit une augmentation importante de la limite d'élasticité des canaux de cuivre fins.
- Nous avons aussi observé le développement d'une asymétrie des pics de diffraction (200) lors de la déformation de l'échantillon de diamètre 0,3mm. Cette asymétrie pourrait être due à la mise en place d'un gradient de transitions élasto-plastiques au sein de la famille  $\{200\}_{\text{Cu}}$  avec la présence de ces grains dans différents canaux présentant des tailles allant du domaine nanométrique à micrométrique.

Durant les travaux de ce mémoire, nous avons pu collecter des données sur la microstructure des micro- et (nano)-composites cuivre/niobium filamenteux. Une partie des résultats confirme les observations obtenues durant les précédentes études menées sur ces matériaux. L'autre partie (analyses EBSD, déformation in-situ) apporte un éclairage nouveau sur la compréhension de la mise en place de la microstructure au cours du procédé ADB et vient valider certaines hypothèses précédemment émises sur le lien entre la microstructure et les propriétés observées à l'échelle macroscopique, la nouveauté de la présente étude résidant dans la prise en compte de l'architecture :

- les composantes de texture du cuivre ne sont pas réparties de façon homogènes dans la matrice et un effet d'architecture apparaît dès le troisième cycle ADB : la réduction de l'espacement inter-filamentaire induit une stabilisation de la composante  $\langle 100 \rangle$  dont le comportement élasto-plastique est radicalement différent de la composante  $\langle 111 \rangle$  ;

- la connaissance des comportements élasto-plastiques de chaque « phase » (renforts de Nb et différents canaux de Cu) associée à la confirmation du mode « iso-déformation » durant un essai de traction laisse entrevoir la possibilité de prédire voire contrôler les propriétés macroscopiques des fils Cu/Nb ;

## Conclusion générale et perspectives

---

- la mise en place d'interfaces spécifiques Cu-Nb semble se faire graduellement, cette observation demandant d'être approfondie.

Un des points forts de ces travaux est d'avoir pu fournir des données précises sur les différents « composants » des fils Cu/Nb, en vue de la modélisation de leurs propriétés électriques et mécaniques, dans le cadre d'une deuxième thèse financée par le projet METAFORES (thèse de Tang Gu, ENSAM-Mines ParisTech). Au moment de la rédaction de ce manuscrit, certaines simulations sont encore en cours, il n'a donc pas été possible de montrer l'étendue du bon accord existant entre les propriétés expérimentales et simulées. Si nous nous en tenons aux exemples présentés dans ce manuscrit, nous voyons que les données expérimentales, associées à des modèles en champ moyen et en champ complet, permettent de reproduire de manière remarquable les propriétés électriques longitudinales et transverses, ainsi que les comportements élasto-plastiques des familles de grains au sein des composites Cu/Nb. Cette capacité à bien reproduire les comportements expérimentaux permet de tirer trois enseignements importants :

- les données expérimentales qui ont été fournies sont bien discriminantes dans le comportement de ces matériaux complexes (texture, taille des grains, contraintes résiduelles, limites d'élasticité) ;

- les effets de taille et d'architecture semblent bien reproduits ;

- la robustesse de la simulation laisse envisager la possibilité de tester n'importe quelle configuration « numérique » de microstructure et d'architecture, en vue de tester son impact sur les propriétés électriques et mécaniques macroscopiques.

Ce dernier point sera probablement le résultat le plus original du projet METAFORES car il permettra la définition de critères de design prenant en compte les effets de taille et d'architecture en vue de l'optimisation du procédé de fabrication pour l'obtention de fils adaptés la fabrication de bobines générant des champs pulsés de l'ordre de 100T. Plus généralement, cet ensemble de données expérimentales et les simulations en découlant, permettront de comprendre les effets d'architecture, confirmant leur intérêt comme degré de liberté supplémentaire dans le design de matériaux optimisés.

# ANNEXES

Nous avons défini au chapitre I un monocristal idéal comme étant une répartition tridimensionnelle d'atomes qui occupe tout l'espace. Parmi les lois de symétrie que possède cette répartition, il existe une symétrie de translation qui confère à l'édifice cristallin son caractère de périodicité [1].

### Postulat de Bravais

Étant donné un point quelconque P dans un cristal, il existe dans le milieu une infinité discrète, illimitée dans les trois directions de l'espace, de points autour desquels l'arrangement des atomes est le même qu'autour du point P, avec la même orientation.

L'ensemble de ces points (nœuds du réseau) constitue un réseau spatial triplement périodique **L** qui peut être construit en appliquant à l'un quelconque d'entre eux l'ensemble des translations :

$$\vec{t}_n = u\vec{t}_1 + v\vec{t}_2 + w\vec{t}_3 ; \text{ avec } u, v, w \text{ entiers relatifs.}$$

Tout vecteur joignant deux nœuds du réseau étant un vecteur translation du groupe des translations.

### Symétrie d'orientation

La symétrie d'orientation régit à l'échelle **macroscopique** les propriétés vectorielles du cristal. On dira que l'édifice atomique d'un cristal possède un élément de symétrie d'orientation si le jeu de cet opérateur conduit à une image superposable à l'objet de départ ou à son image par rapport à un point ou un miroir (énantiomorphe) [1].

On appelle **élément de symétrie**, l'ensemble des points fixes, (points, droites ou plans) d'une opération de symétrie. Ces éléments de symétrie sont utilisés pour la représentation graphique de l'opération à laquelle ils sont associés. La manière la plus efficace pour représenter les opérations de symétrie dans un cristal est de tracer la projection stéréographique de ses éléments de symétrie. Les éléments de symétrie d'orientation compatibles avec la périodicité du réseau cristallin sont :

L'inversion (centre de symétrie) notée **I** ; la réflexion (miroir) notée **m** ; les rotations d'ordre n caractérisées par les axes de rotation propres ( $C_n$ ) ou impropres ( $S_n$ ) et l'angle de rotation  $\varphi_n = \frac{2\pi}{n}$  notées **R** ( $C_n, \varphi_n$ ). Des exemples d'éléments de symétrie sont donnés à la figure I.1.

Les associations d'éléments de symétrie engendrent des groupes (en respectant les lois de structure de groupe). Le produit de deux éléments de symétrie entraîne en général la présence de nouveaux éléments dans le groupe. En se limitant aux éléments de symétrie d'un cristal, on dénombre trente-deux (32) groupes ponctuels cristallographiques appelés « classes cristallines » [1, 2]. Les 32 classes cristallines sont en 7 systèmes cristallins ou systèmes de Bravais (voir tableau Ia.1). Les symboles utilisés pour la dénomination des classes sont :

$$1, 2, 3, 4, 6, \bar{1}, m, \bar{3}, \bar{4}, \bar{6}, 2/m, 4/m \text{ et } 6/m.$$

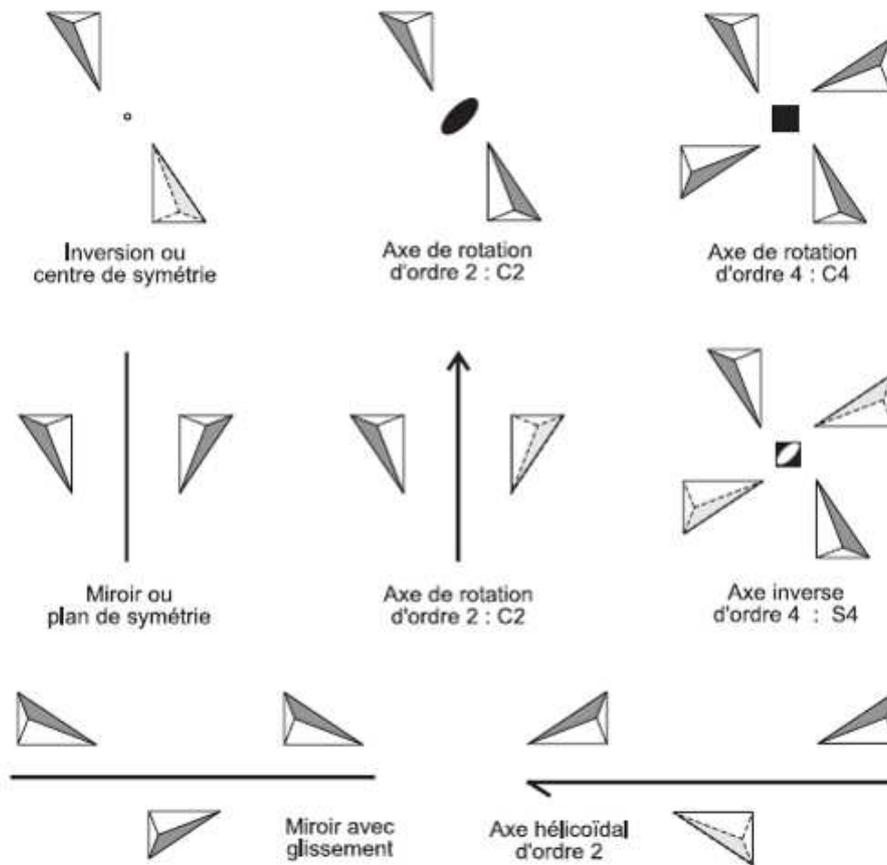


Figure I. 1 : Exemples d'éléments de symétrie [2].

Système cristallin	Classes de symétrie d'orientation
Triclinique	1 $\bar{1}$
Monoclinique	2 m 2/m
Orthorhombique	222 mm2 mmm
Quadratique	4 $\bar{4}$ 4/m 422 4mm $\bar{4}2m$ 4/mmm
Trigonal	3 $\bar{3}$ 32 3m $\bar{3}m$
Hexagonal	6 $\bar{6}$ 6/m 622 6mm $\bar{6}2m$ 6/mmm
Cubique	23 $\bar{3}m$ 432 $\bar{4}3m$ m $\bar{3}m$

Tableau Ia. 1 : Les 7 systèmes cristallins et leurs classes de symétrie d'orientation.

## Réseaux de Bravais

En plaçant dans les mailles primitives (des 7 systèmes cristallins du tableau Ia.1) des nœuds supplémentaires (au centre des bases, au centre de chacune des faces ou au centre de la maille) on obtient quatorze réseaux cristallins distincts (réseaux de Bravais). Ces quatorze réseaux sont présentés à la figure I.2.

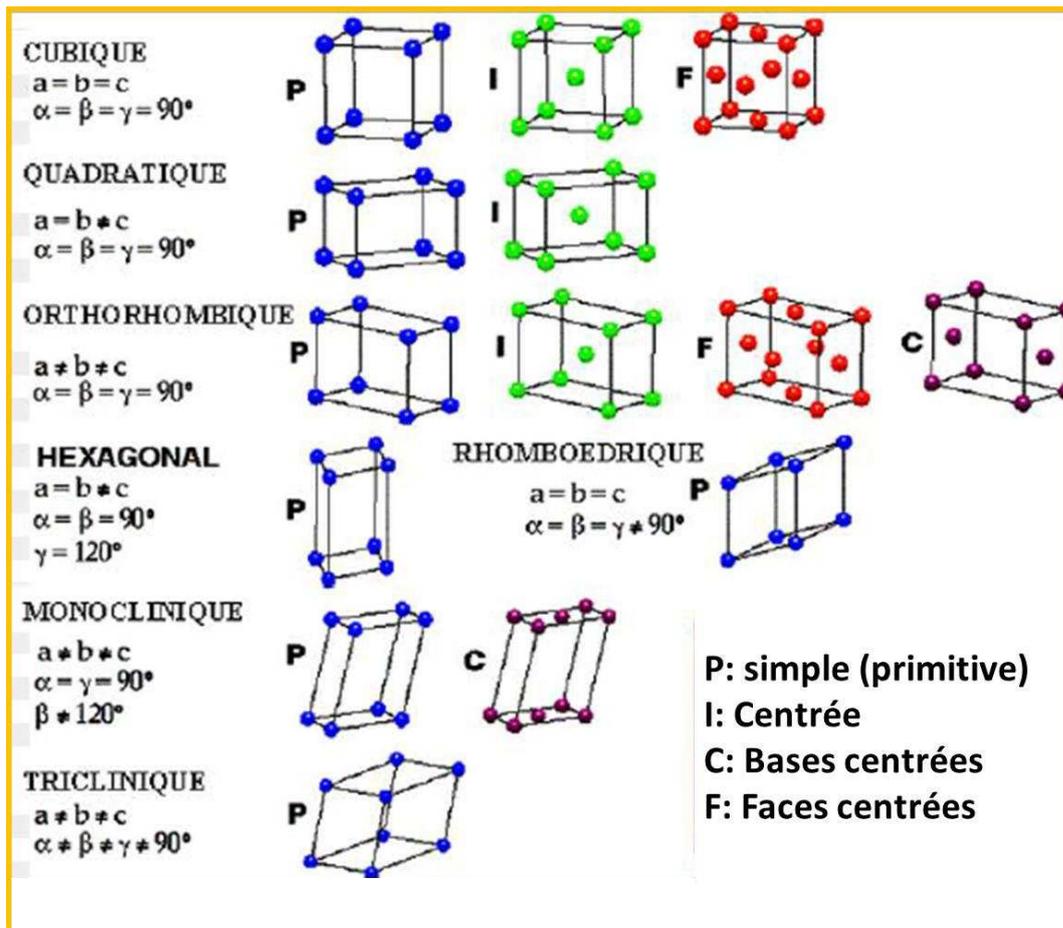


Figure I. 2: Représentation graphique des 14 modes (ou types) de réseaux de Bravais.

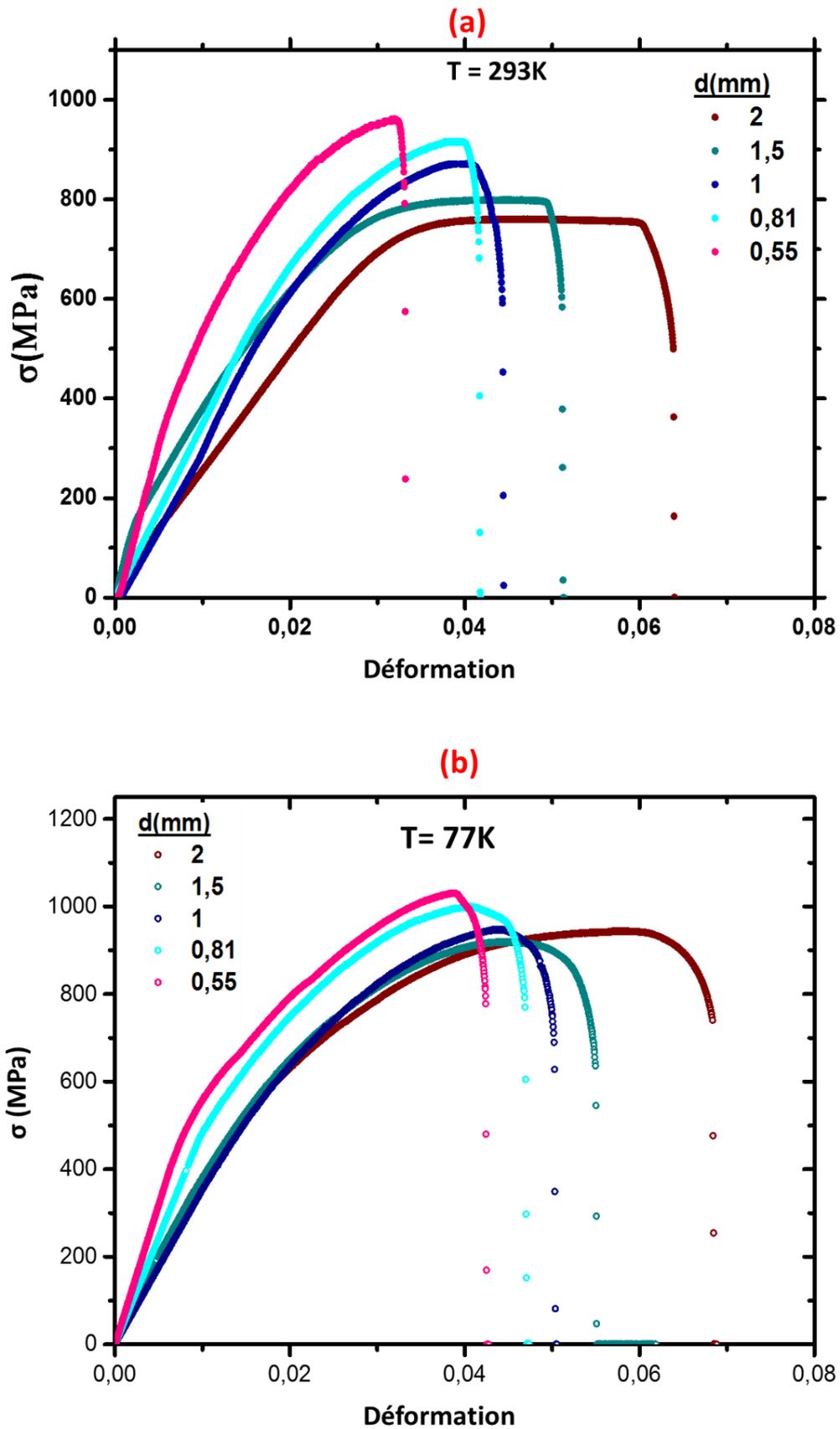


Figure II. 1 : courbes de traction uni-axiale des Cu/Nb-F de l'étage  $n = 85^2$  (a)  $T = 293K$  et (b)  $T = 77K$ .

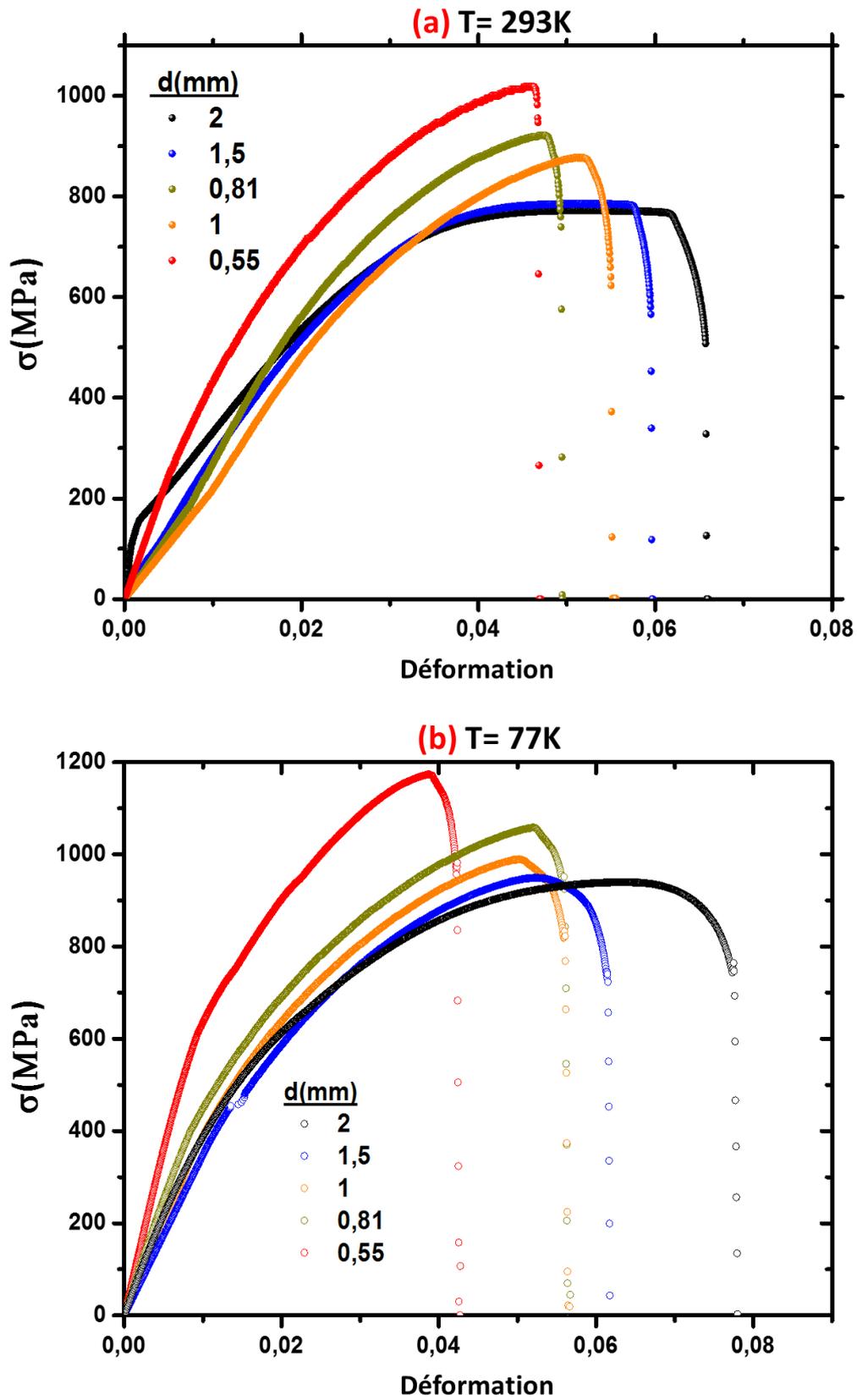


Figure II. 2 : courbes de traction uni-axiale des Cu/Nb-F de l'étage  $n = 85^3$  (a)  $T = 293\text{K}$  et (b)  $T = 77\text{K}$

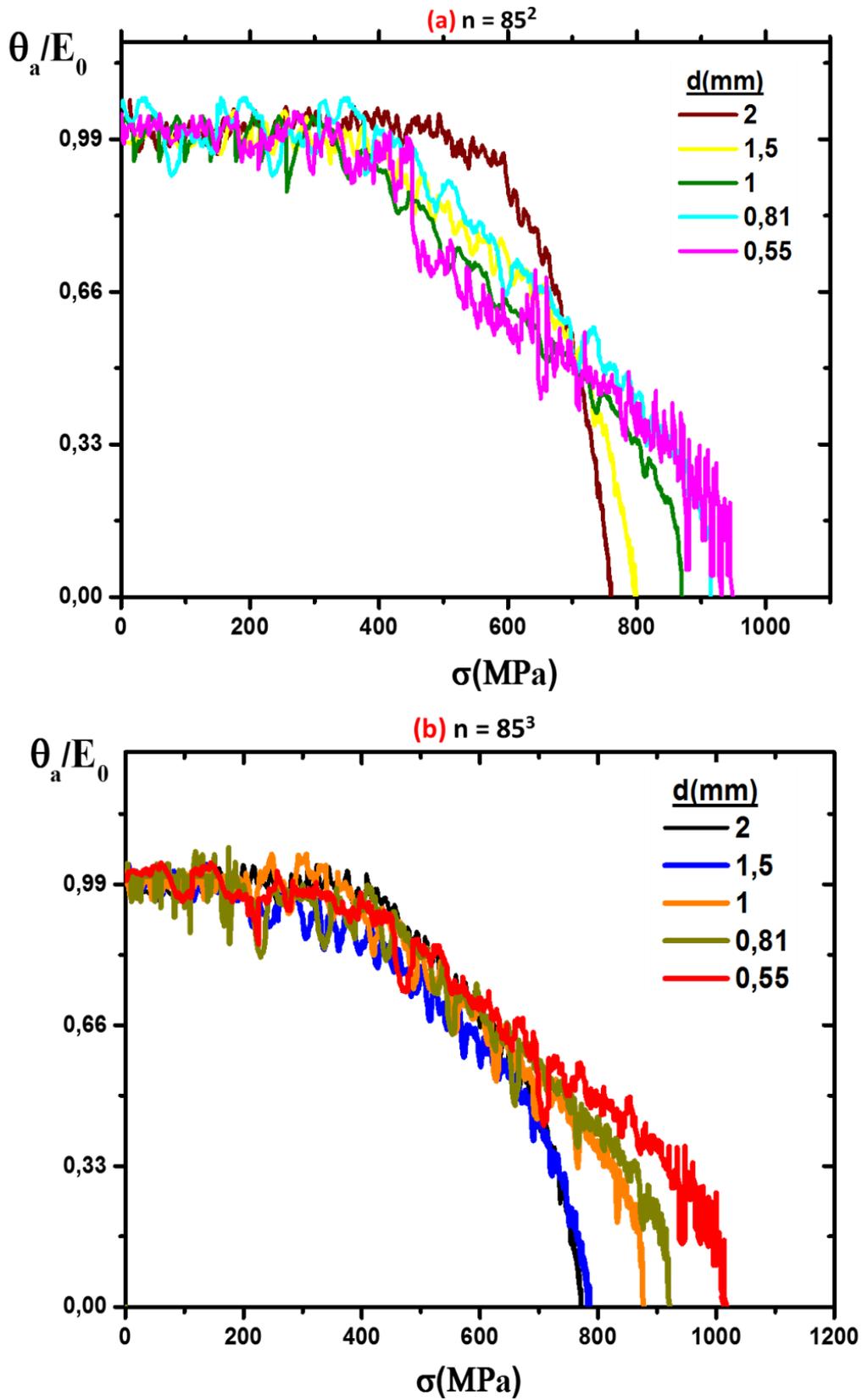
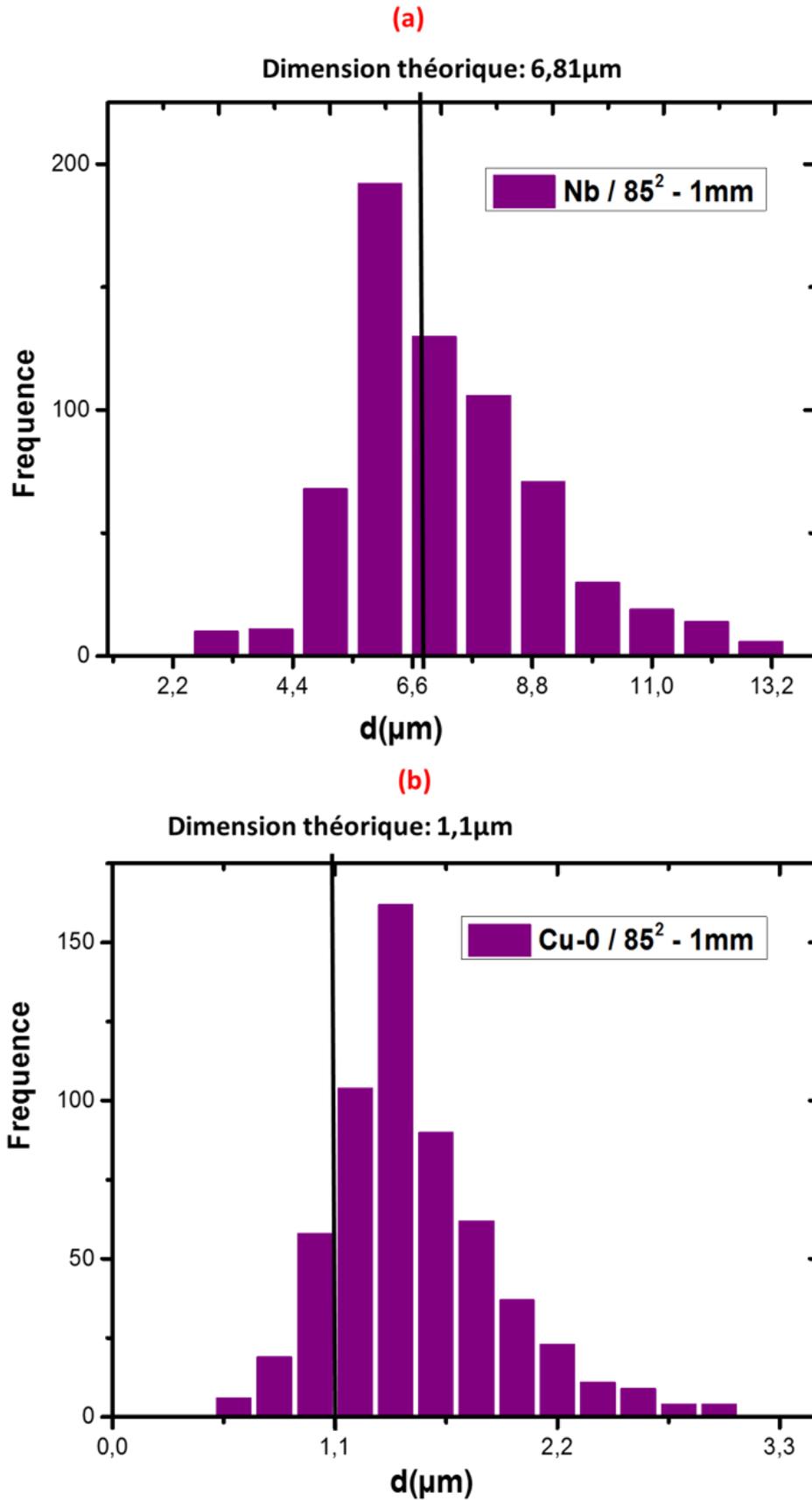
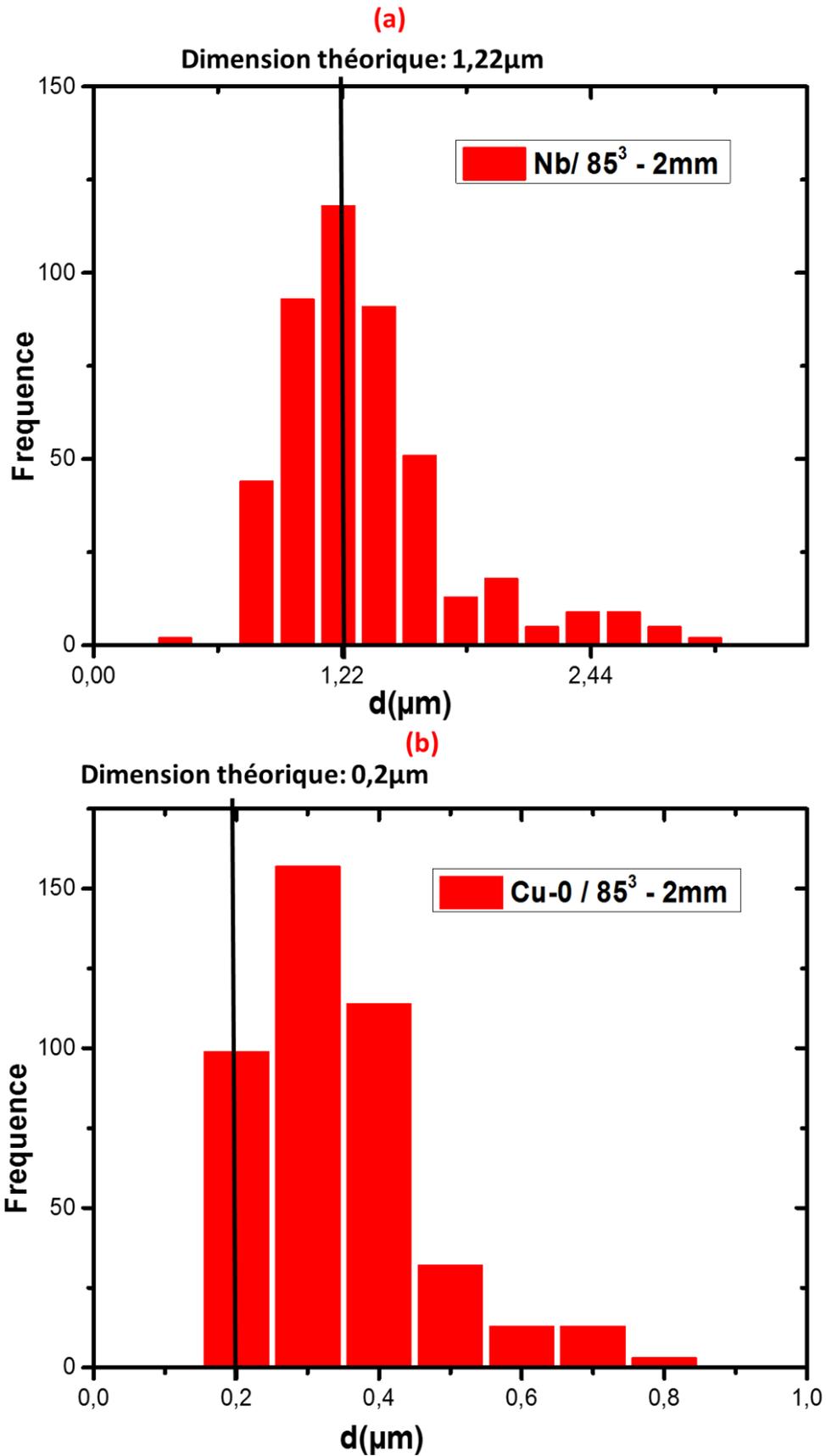


Figure II. 3 : Courbes de durcissement mécanique des Cu/Nb-F (a)  $n = 85^2$  et (b)  $n = 85^3$  ( $\theta_a = \sigma/\varepsilon$ ).



**Figure V. 1 :** Dimensions réelles (a) des filaments Nb et (b) des canaux Cu-0 d'un échantillon  $N = 85^2$  de diamètre 1mm. Ces mesures ont été effectuées par traitement d'images MEB. Les dimensions théoriques sont indiquées par le trait noir.



**Figure V. 2** : Dimensions réelles (a) des filaments Nb et (b) des canaux Cu-0 d'un échantillon  $N = 85^3$  de diamètre 2mm. Ces mesures ont été effectuées par traitement d'images MEB. Les dimensions théoriques sont indiquées par le trait noir

## Références

- [1] Pierre Gravereau, Introduction à la pratique de la diffraction des rayons X par les poudres, 444, Castro Street. California: Creative Commons, 2012.
- [2] Jean-Jacques Rousseau, Alain Gibaud, Cristallographie Géométrique et Radiocristallographie, Paris: Dunod, 2007.