

T H E S E

présentée

A L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET
MEDICALE DE GRENOBLE

pour obtenir

Le grade de Docteur ès-Sciences Physiques

par

Jacques BLANC

-:-:-:-:-

ETUDE DE L'INFLUENCE DES INHOMOGENEITES STRUCTURALES DU
SYSTEME Al-Ag SUR LA RESISTIVITE RESIDUELLE, LE DURCISSE-
MENT STRUCTURAL ET LA POSSIBILITE D'ANCRAGE DES LIGNES
DE FLUX (A L'ETAT SUPRACONDUCTEUR).

-:-:-:-:-

Soutenue le 6 mars 1972 devant la Commission d'Examen

MM. M. SOUTIF	<i>Président</i>
B. DREYFUS	
E. BONNIER	<i>Examineurs</i>
A. LACAZE	
M. WINTENBERGER	

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

Président : Monsieur Michel SOUTIF
Vice-Président : Monsieur Gabriel CAU

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	AUBERT Guy	Physique
	ARNAUD Georges	Clinique des maladies infectieuses
	ARNAUD Paul	Chimie
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	BESSON Jean	Electrochimie
	BEZES Henri	Chirurgie générale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Georges	Electrotechnique
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BONNIER Etienne	Electrochimie Electrometallurgie
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BRAVARD Yves	Géographie
	BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
	CABANAC Jean	Pathologie chirurgicale
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Oto-Rhino-Laryngologie
	CHATEAU Robert	Thérapeutique

MM.	CHENE Marcel	Chimie papetière
	COEUR André	Pharmacie chimique
	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie Pathologique
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphiligraphie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique
	FELICI Noël	Electrostatique
	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques Pures
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
Mme	KOFLER Lucie	Botanique et Physiologie végétale
MM.	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOUP Jean	Géographie
Melle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
MM.	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Seméiologie médicale
	MASSEPORT Jean	Géographie
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NEEL Louis	Physique du Solide
	OZENDA Paul	Botanique
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures

MM.	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET René	Servomécanismes
	PILLET Emile	Physique industrielle
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REULOS René	Physique industrielle
	RINALDI Renaud	Physique
	ROGET Jean	Clinique de pédiatrie et de puériculture
	SANTON Lucien	Mécanique
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SILBERT Robert	Mécanique des fluides
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLAND François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
M.	VERAIN André	Physique
Mme	VEYRET Germaine	Géographie
MM.	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
	YOCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	BULLEMER Bernhard	Physique
	RADHAKRISHNA Pidatala	Thermodynamique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM.	BEAUDOING André	Pédiatrie
	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
Mme	BONNIER Jane	Chimie générale
MM.	CARLIER Georges	Biologie végétale
	COHEN Joseph	Electrotechnique
	COUMES André	Radioélectricité
	DEPASSEL Roger	Mécanique des Fluides
	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	DESRE Pierre	Métallurgie

MM.	GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	JANIN Bernard	Géographie
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
	POULOUJADOFF Michel	Electrotechnique
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REVOL Michel	Urologie
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	ROBERT André	Chimie papetière
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIBILLE Robert	Construction Mécanique
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

Melle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
Melle	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBLARD Pierre	Dermatologie
	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Yves	Chimie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
	BELORIZKY Elie	Physique
	BENZAKEN Claude	Mathématiques Appliquées
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BLIMAN Samuel	Electronique (EIE)
	BLOCH Daniel	Electrotechnique
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BOUCHET Yves	Anatomie
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées
	BOUVARD Maurice	Mécanique des Fluides
	BRIERE Georges	Physique expérimentale
	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
	BRUGEL Lucien	Energétique
	BUISSON Roger	Physique
	BUTEL Jean	Orthopédie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	CONTE René	Physique

MM.	CROUZET Guy	Radiologie
	DURAND Francis	Métallurgie
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GENSAC Pierre	Botanique
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIDON Maurice	Géologie
	GRIFFITHS Michaël	Mathématiques Appliquées
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	IVANES Marcel	Electricité
	JALBERT Pierre	Histologie
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide
	JULLIEN Pierre	Mathématiques Pures
	KAHANE André	Physique générale
	KUHN Gérard	Physique
Mme	LAJZEROWICZ Jeannine	Physique
MM.	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LANCIA Roland	Physique atomique
	LE JUNTER Noël	Electronique
	LEROY Philippe	Mathématiques
	LOISEAUX Jean-Marie	Physique Nucléaire
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LIU DUC Cuong	Chimie Organique
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventive
	MARECHAL Jean	Mécanique
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MAYNARD Roger	Physique du Solide
	MICOUD Max	Maladies infectieuses
	MOREAU René	Hydraulique (INP)
	NEGRE Robert	Mécanique
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B)
	PEFFEN René	Métallurgie
	PELMONT Jean	Physiologie animale
	PERRET Jean	Neurologie
	PERRIN Louis	Pathologie expérimentale
	PFISTER Jean-Claude	Physique du Solide
	PHELIP Xavier	Rhumatologie
Melle	PIERY Yvette	Biologie animale
MM.	RACHAIL Michel	Médecine interne
	RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
	RICHARD Lucien	Botanique
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire

MM.	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
	ROUGEMONT (DE) Jacques	Neuro-Chirurgie
	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées
	VEILLON Gérard	Mathématiques Appliquées (INP)
	VIALON Pierre	Géologie
	VOOG Robert	Médecine interne
	VROUSSOS Constantin	Radiologie
	ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
	CHEEKE John	Thermodynamique
	GOLDSCHMIDT Hubert	Mathématiques
	YACOUD Mahmoud	Médecine légale

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

Mme	BERIEL Hélène	Physiologie
Mme	RENAUDET Jacqueline	Microbiologie

A ma femme ,

Je remercie Alain NEMOZ de m'avoir offert une
amitié qui s'est affermie au cours des années et qu'une colla-
boration quotidienne n'a pas usée.

Nous évoquons avec reconnaissance la mémoire du Doyen WEIL qui nous a accueilli dans son laboratoire.

Le Professeur DREYFUS a toujours fait preuve à notre égard d'une grande confiance, nous lui en sommes tout particulièrement reconnaissants.

Nous avons été accueillis dans l'Université par le Professeur SOUTIF. Nous gardons le meilleur souvenir de notre collaboration avec lui en matière d'enseignement. Nous lui savons gré d'avoir accepté la présidence de nos jurys.

Notre profonde gratitude va au Professeur FRIEDEL qui a bien voulu s'intéresser à nos travaux.

Nous remercions très vivement le Doyen BONNIER pour sa participation à l'examen de nos conclusions en matière de métallurgie.

Le Professeur LACAZE, Directeur du C. R. T. B. T. et le Professeur RENARD ont fort aimablement accepté de faire partie de nos jurys. Nous les en remercions.

Nos rapports avec le Centre de Recherches de Péchiney - Voreppe ont toujours été des plus agréables. Nous sommes heureux d'avoir Messieurs PLATEAU et WINTENBERGER dans nos jurys.

Nos nombreuses discussions avec Monsieur BETHOUX furent très fructueuses. Notre collaboration avec lui a été sans aucun nuage. Le bonne humeur et l'humour l'ont toujours marquée !

Nous tenons à remercier Monsieur SOLECKI qui, toujours disponible nous a apporté une aide expérimentale efficace.

Nos relations scientifiques avec Monsieur GUYOT du Centre de Recherche Pechiney-Voreppe ont été des plus cordiales.

Monsieur NAUDON, du Laboratoire de Métallurgie Physique de la Faculté des Sciences de Poitiers, Madame PETITPAS et Monsieur HURALT du Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay nous ont fourni de précieux renseignements.

Il nous est particulièrement agréable de remercier Monsieur GENESTE. Sa compétence en matière de microscopie électronique et métallographique, son sens aigu de l'observation et son très grand sérieux ont largement contribué au développement de notre travail.

L'esprit d'équipe régnant entre les chercheurs du laboratoire a été pour nous une aide efficace.

L'atelier dirigé par Monsieur FAURE BRAC a répondu avec une parfaite compétence à nos besoins en matière expérimentale.

Mesdames MAZET et JULLIEN ont assuré avec le sourire la bonne qualité de l'impression de nos mémoires.

Notre travail a bénéficié du soutien de la
D. G. R. S. T.

J.B. - A.N.

L'idée de départ de notre travail effectué au Centre de Recherches sur Les Très Basses Températures (C. R. T. B. T.) de Grenoble nous fut proposée par Monsieur B.B. GOODMAN. Elle consistait en l'étude du mécanisme d'ancrage des lignes de flux dans les alliages Al-Ag dont la métallurgie assez souple, pouvait, d'après la littérature, être aisément contrôlée. Elle était justifiée par l'importance que prenait le développement des matériaux supraconducteurs à hautes performances.

Très vite il nous est apparu que la connaissance de la structure métallique la plus exacte possible était nécessaire autant que la connaissance des propriétés supraconductrices générales de nos échantillons.

Notre travail s'est donc développé dans 3 directions :

- une étude métallurgique poussée
- une étude plus générale des propriétés des supraconducteurs métallurgiquement inhomogènes.
- une étude des conditions nécessaires à l'ancrage des lignes de flux.

Nous avons menées ces 3 études en commun. La différentiation entre nous s'est faite au niveau de la réflexion ce qui se traduit par la réalisation de 2 mémoires distinctes.

^{présent}
Ce mémoire comprend deux parties :

- Dans la première on présente tout d'abord l'évolution de la structure des alliages Al-Ag de différentes concentrations avec les traitements thermiques successifs. Cette étude est faite au microscope électronique essentiellement. En second lieu, on analyse l'évolution de la résistivité résiduelle et celle de la microdureté des alliages Al-Ag. Ces 2 propriétés

2

qui au départ étaient seulement destinées à être un simple repérage des différents stades de la transformation structurale ont vu leur étude finalement assez développée. Il était donc intéressant d'établir une corrélation systématique entre ces deux propriétés d'une part et la structure métallurgique d'autre part.

- Dans la deuxième partie du mémoire, on présente les résultats de l'évolution de l'irréversibilité des courbes d'aimantation avec les traitements thermiques. L'interprétation de ces résultats basée sur un processus d'ancrage des lignes de flux sur des inhomogénéités structurales dont la taille est de l'ordre de la longueur de cohérence est ensuite donnée et discutée.

Alain NEMOZ dans un second mémoire présente l'étude des propriétés générales supraconductrices - température critique et champs critiques - des alliages Al-Ag. Il relie leur évolution à celle des inhomogénéités structurales dont la taille est beaucoup plus petite ou beaucoup plus grande que la longueur de cohérence.

Les photographies de microscopie électronique et métallographique font l'objet d'un fascicule commun aux deux mémoires.

S O M M A I R E

1ère partie : RESULTATS METALLURGIQUES RELATIFS AU SYSTEME ALUMINIUM-ARGENT

INTRODUCTION..... 5

CHAPITRE I - Alliage Al - 10 % at Ag.

- A - Microscopie électronique et métallographique..... 10
- B - Résistivité résiduelle..... 11
- C - Microdureté..... 15

CHAPITRE II - Alliages 4 - 5 - 7-17 % at Ag

- A - Microscopie électronique et métallographique..... 17
- B - Résistivité résiduelle..... 17
- C - Microdureté..... 20

CHAPITRE III - Essai de synthèse des résultats métallurgiques

- A - Courbes transformation - température - temps (T.T.T.).. 20
- B - Microdureté..... 24
 - 1°) Domaine des Z.G.P..... 24
 - 2°) Domaine des γ' 26

2ème partie : ETUDE DE L'IRREVERSIBILITE DE L'AIMANTATION DANS LES ALLIAGES Al-Ag

INTRODUCTION..... 30

CHAPITRE I - Mesures magnétiques..... 34

CHAPITRE II - La force d'ancrage..... 42

CHAPITRE III - L'induction rémanente..... 51

CHAPITRE IV - Discussion..... 57

ANNEXE I - Techniques d'observation métallurgiques

I - Préparation des surfaces d'échantillons..... 61

II - Exploitation des photographies de microscopie électro-
nique..... 64

 A - Evaluation du diamètre moyen des Z.G.P..... 64

 B - Evaluation de la distance moyenne entre les \downarrow Y..... 65

ANNEXE II - Technique des mesures magnétiques..... 68

REFERENCES..... 71

P R E M I E R E P A R T I E

RESULTATS METALLURGIQUES RELATIFS AU SYSTEME

ALUMINIUM-ARGENT

L'observation du diagramme de phases Aluminium-Argent (Al-Ag) (Fig.1) montre que l'on peut obtenir une solution solide homogène cubique faces centrées avec un alliage dont la composition peut aller de 0 à 22 pourcent atomique d'Ag. Un recuit de quelques heures à 550C est suffisant. Par trempe on obtient un état métastable qui n'évolue pratiquement pas à la température ambiante.

Par des revenus successifs à des températures comprises entre 120 et 200C, on peut s'arrêter aux différents stades allant théoriquement de la solution solide homogène α (cubique faces centrées) à la précipitation de la phase γ - Ag_2Al (hexagonal compact). Chaque stade intermédiaire n'évolue pratiquement pas à la température ambiante.

Partant de la solution solide homogène, on voit apparaître tout d'abord des zones sphériques riches en Ag, cohérentes avec la matrice. Ce sont les zones de Guinier-Preston (Z.G.P.) bien connues. (Ref. 1,2,3. et photo. 1. 12. 18. 19). Leur diamètre croît jusqu'à 80 Å environ. Une phase précipitée γ' , d'abord en baguettes puis très vite sous forme de disques, se développe ensuite alors que parallèlement les zones de G.P. croissent et diminuent en nombre (photos 20 à 24). Le précipité γ' est hexagonal compact. Les faces plates du disque sont cohérentes avec la matrice sans contrainte élastique (Ref. 3,4).

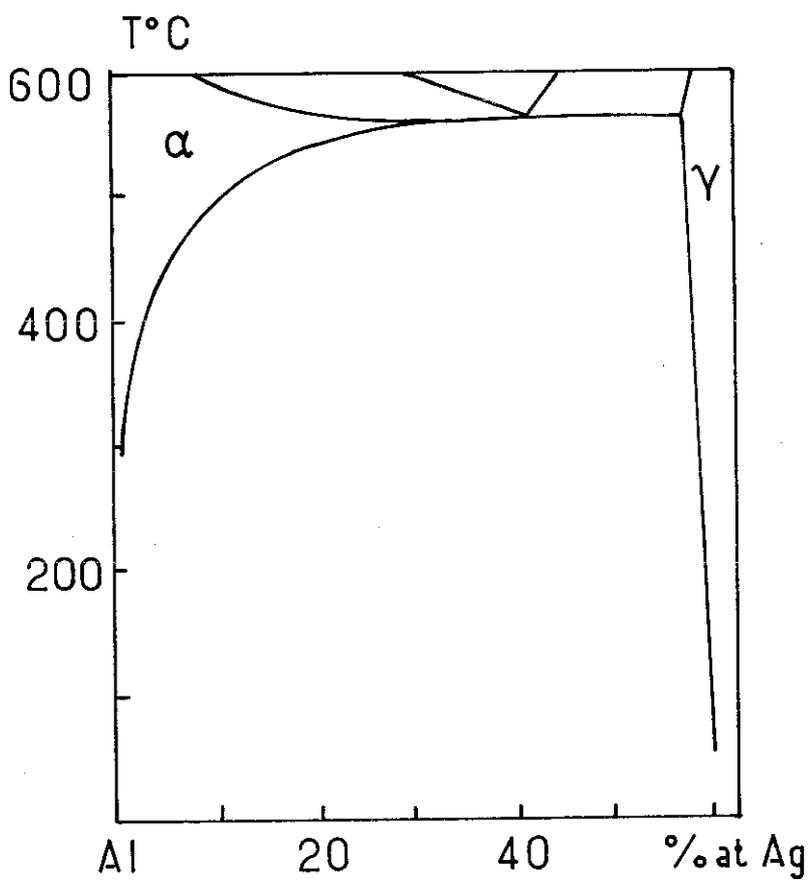


Figure 1

A l'interface périphérique du disque , il y a semi cohérence seulement, de nombreuses dislocations assurant l'accommodation des 2 phases (Ref. 4).

L'orientation des disques ou plaquettes du $\downarrow \gamma'$ est régulière. Elle est liée à la matrice de la façon suivante :

(0001) γ' // (111) mat α .

(0001) γ' étant la face plane du disque. (Ref. 3)

La phase stable γ se développe plus tard soit par précipitation discontinue ou cellulaire à partir des joints de grains et tout particulièrement des points triples, soit par une transformation "in situ" du $\downarrow \gamma'$ (Ref. 4, 5, 6, 7 et photos 31, 36, 37). A l'intérieur de chaque cellule cohabitent des lamelles de la phase α complètement désaturée en Ag et de la phase γ (Ag_2Al). Les relations d'orientation entre γ et α sont analogues à celles qui lient γ' et α . Mais alors que pour γ' la précipitation est continue et les 4 orientations également possibles, pour γ une seule orientation se développe. (Photo 38). Les cellules croissent à l'intérieur du grain jusqu'à son occupation totale (photo 39).

De nombreuses études ont été faites sur le système Al-Ag par des métallurgistes. Nous avons mené notre étude en vue de saisir l'interaction entre l'évolution des propriétés supraconductrices de ce système et l'évolution de ses réarrangements atomiques internes, au cours de différents traitements thermiques. L'originalité de notre étude peut se résumer ainsi :

- 8 concentrations différentes ont été étudiées. (voir tableau I donnant l'analyse des échantillons)
- Sur les 3 plus faibles concentrations nous n'avons fait qu'une homogénéisation à 550C et une trempe.
- Sur les suivantes, nous avons en plus, effectué de nombreux revenus isothermes.
- A chaque stade de la transformation, nous avons :

- d'une part mesuré la résistivité résiduelle ρ_0 et la micro-
dureté, et
- d'autre part, fait des observations au microscope électronique
et métallographique.

Nous allons tout d'abord présenter les résultats relatifs à l'alliage 10% at. que nous avons le plus étudié. Ensuite, nous regrouperons les résultats relatifs aux alliages moins chargés en Ag (4 - 5 - 7% at.) et plus chargés (17% at.). Enfin, nous essayerons une synthèse générale de ces résultats métallurgiques.

Tableau I

Désignation de l'allia- ge en % arrondi	% atomique en Ag	% en Poids en Ag.	Fe (ppm)	Si (ppm)	Cu (ppm)	Mg (ppm)
1	1,11	4,30	< 10	≤ 10	30	< 10
2	2,04	7,68	4	4	35	4
3	2,97	11,07	4	4	50	4
4	4,12	14,75	4	4	65	4
5	5,00	17,46	4	4	65	4
7	6,68	22,20	20	30	80	< 5
10	10,10	31	20	40	80	6
17	16,70	44,5	< 20	50	80	6-7

Analyse des échantillons effectuée au Centre de
Recherches Métallurgiques de Pechiney.

CHAPITRE I - ALLIAGE Al. 10% at Ag

Comme les autres alliages étudiés ici, il nous a été fourni brut de laminage par le Centre de Recherches Metallurgiques de Pechiney. Il a été homogénéisé sous Argon à 550C pendant 24 heures. Il a subi ensuite une trempe à l'eau. Des revenus isothermes de durée allant de quelques minutes à plusieurs dizaines de jours ont été faits dans l'huile aux silicones à 140 - 160 et 180C. A chaque revenu correspond un échantillon qui est, dès après le revenu, utilisé en entier pour mesurer la résistivité résiduelle ρ_0 . Puis il est fractionné, une partie servant à l'observation microscopique (métallographique ou électronique) et à la mesure de la microdureté, l'autre partie étant utilisée pour les mesures magnétiques.

Nous examinerons successivement les résultats obtenus à l'aide de la microscopie électronique et métallographique, puis ceux relatifs à la résistivité résiduelle ρ_0 et enfin ceux concernant la microdureté.

A - MICROSCOPIE ELECTRONIQUE ET METALLOGRAPHIQUE

L'échantillon est poli mécaniquement, aminci et poli électrolytiquement ensuite sans échauffement (voir annexe I). Une douzaine de clichés sont pris au microscope électronique pour chaque échantillon. Quelques uns, à titre de complément, sont réalisés au microscope métallographique sur certains échantillons seulement.

En plus d'une observation systématique de la succession des différents stades au cours du revenu (photos 18 à 25), nous pouvons mesurer le diamètre moyen des Z.G.P. et le nombre de $\downarrow\gamma'$ par unité de longueur (voir annexe I).

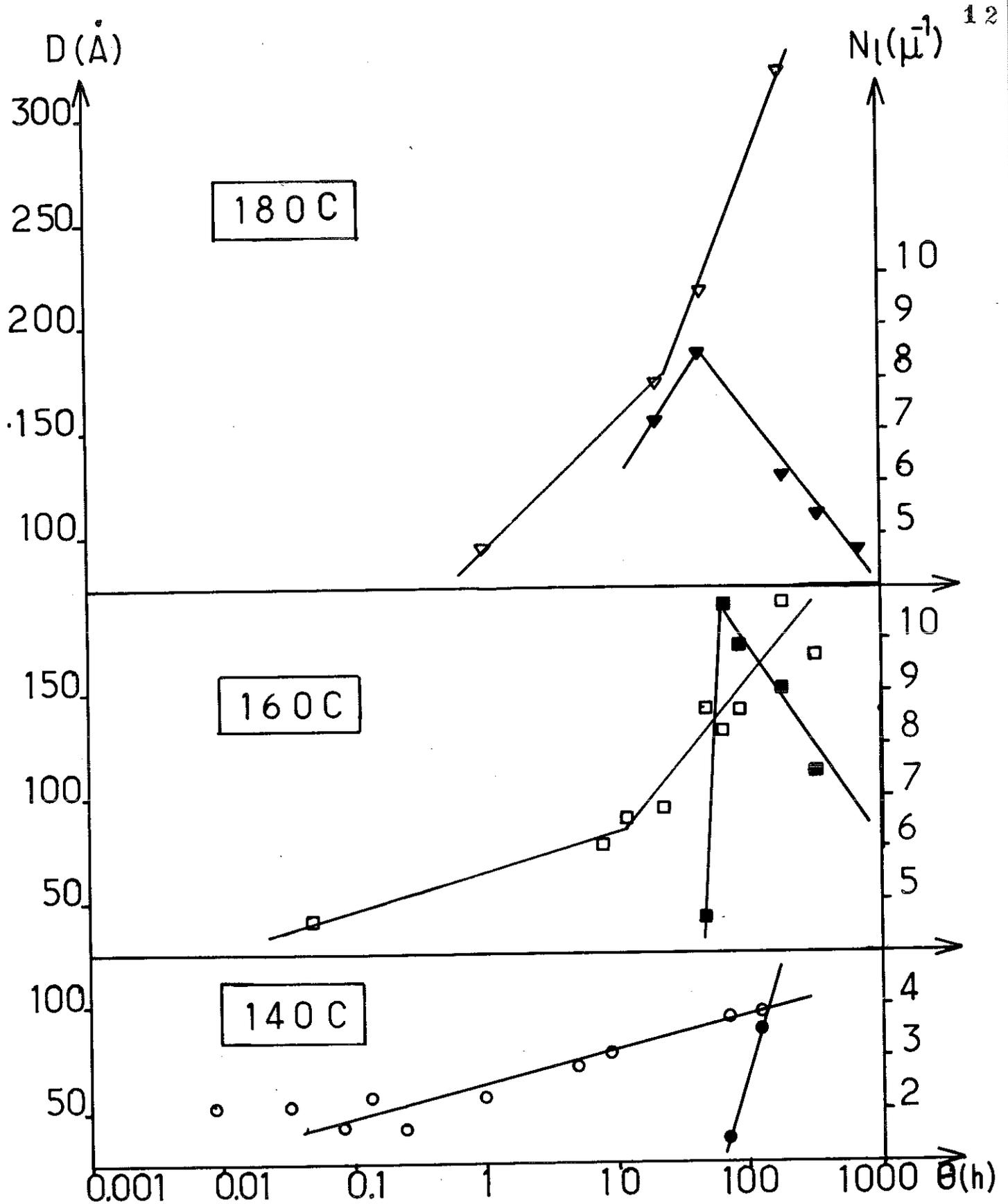
Il apparait nettement sur la Figure 2 que le diamètre moyen de Z.G.P. (moyenne arithmétique) croît en fonction du temps de revenu. Les grosses Z.G.P. se développent au détriment des petites. Un changement de pente intervient à l'apparition du $\downarrow \gamma'$. Le processus de croissance ne s'accélère sûrement pas mais les petites Z.G.P. étant préférentiellement dissoutes pour former le $\downarrow \gamma'$, la moyenne arithmétique des diamètres croît plus rapidement. Ce changement de pente se retrouve pour toutes les concentrations. Sur la figure 2 toujours, on voit que les $\downarrow \gamma'$ augmentent d'abord en nombre, se serrant de plus en plus (leur nombre par unité de longueur N_ℓ , croît). Puis lorsque leur distance moyenne atteint 1000Å environ ($N_\ell = 10\mu^{-1}$) ils s'écartent les uns des autres (N_ℓ décroît) les gros \downarrow se formant au détriment des petits. Il ne reste que très peu de Z.G.P. Elles sont alors très grosses (D de 200 à 300 Å) (photo 24). Pour des revenus de plus de 300h à 180C, la phase γ commence juste à se former (photo 26).

B - RESISTIVITE RESIDUELLE

L'alliage brut de trempe a une résistivité résiduelle de $7,30\mu\Omega \times \text{cm}$. Il contient surtout de petites Z.G.P. L'évolution de ρ_0 avec le temps de revenu (θ) est donnée sur la figure 3. Il apparait nettement, sur la courbe relative au revenu à 180C, 3 régimes:

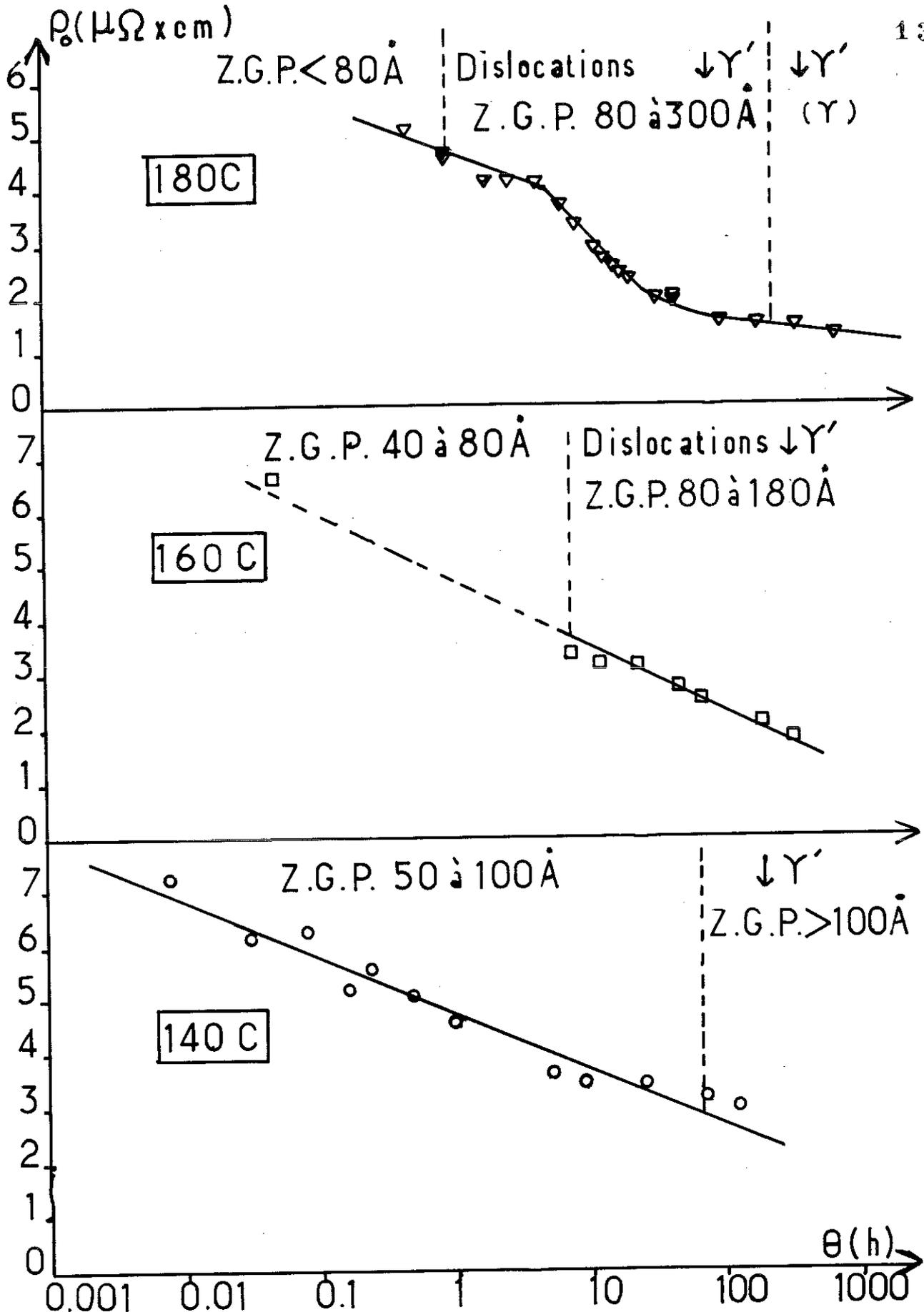
- Le premier se déroule lorsqu'il n'y a que des Z.G.P.
- Le second, beaucoup plus rapide, se produit pendant l'augmentation en nombre des $\downarrow \gamma'$ (N_ℓ croît, voir figure 2).
- Le troisième, à nouveau plus lent a lieu lorsque les $\downarrow \gamma'$ se desserrent. (N_ℓ décroît). On retrouvera ces 3 régimes pour les autres concentrations.

Si l'on fait l'hypothèse que les groupes de 2 ou 3 atomes sont ceux qui interviennent le plus dans la diffusion des électrons (Ref. 8), cela revient à dire que les petites Z.G.P. sont les plus efficaces pour augmenter ρ_0 . On peut alors tenter d'expliquer les 3 régimes :



Al Ag 10% at. Diamètre des Z.G.P. (D) \circ \square ∇ et
 Nombre de $\downarrow Y'$ par unité de longueur (N_l) \bullet \blacksquare \blacktriangledown
 en fonction du temps de revenu (θ) à différentes
 températures

Figure 2



Al Ag 10% at. Résistivité résiduelle (ρ_0) en fonction du temps de revenu (θ) à différentes températures

Figure 3

1er régime : Les petites Z.G.P. disparaissent pour former les grosses. La fraction en volume des Z.G.P. reste constante (Ref. 9 et Th. Nz. p. 26).

2e régime : Les petites Z.G.P. se dissolvent à la fois pour en former de plus grosses, mais aussi pour former le $\downarrow \gamma'$. L'Ag ségrégué passe des Z.G.P. au $\downarrow \gamma'$. Le processus de disparition des petites zones est très rapide.

3e régime : La quantité d'Ag sous forme de $\downarrow \gamma'$ reste maintenant constante. Les petites Z.G.P. ne disparaissent que pour en former de très grosses. La pente devient plus faible.

A 140C seul le 1^o régime est atteint, la pente est faible. Si, sur la figure 3 on compare les valeurs de l'évolution de la résistivité à 140 et à 180C, la situation suivante apparaît :

- à 140C, une valeur de ρ_0 donnée (3,5 $\mu\Omega$ x cm par exemple) est obtenue avec un système métallurgique comportant seulement des Z.G.P. (de diamètre moyen 80Å)
- à 180C, la même valeur de ρ_0 est obtenue par un traitement plus court avec un système comportant des Z.G.P. (de diamètre moyen 140Å) et du $\downarrow \gamma'$.

Cette situation : l'obtention d'une même valeur de la résistivité pour 2 états métallurgiques différents d'un même alliage, s'explique bien si l'on suppose que la résistivité est liée à l'existence des petites Z.G.P. dont la disparition est plus rapide lorsque le $\downarrow \gamma'$ se forme en même temps que les autres Z.G.P. grossissent.

L'interprétation de la courbe à 160C est assez délicate. La pente est faible même lorsqu'il y a croissance du nombre de $\downarrow \gamma'$. On peut avancer l'hypothèse suivante : 160C est la température où suivant certains auteurs (Ref. 10) les Z.G.P. passent de l'état ordonné (η) à l'état désordonné (ϵ). Si l'état désordonné est plus favorable à l'existence des petites Z.G.P., on peut admettre qu'il y a une "redissolution" d'un certain nombre de grosses Z.G.P. pour former les $\downarrow \gamma'$. Il est alors normal que la pente reste faible.

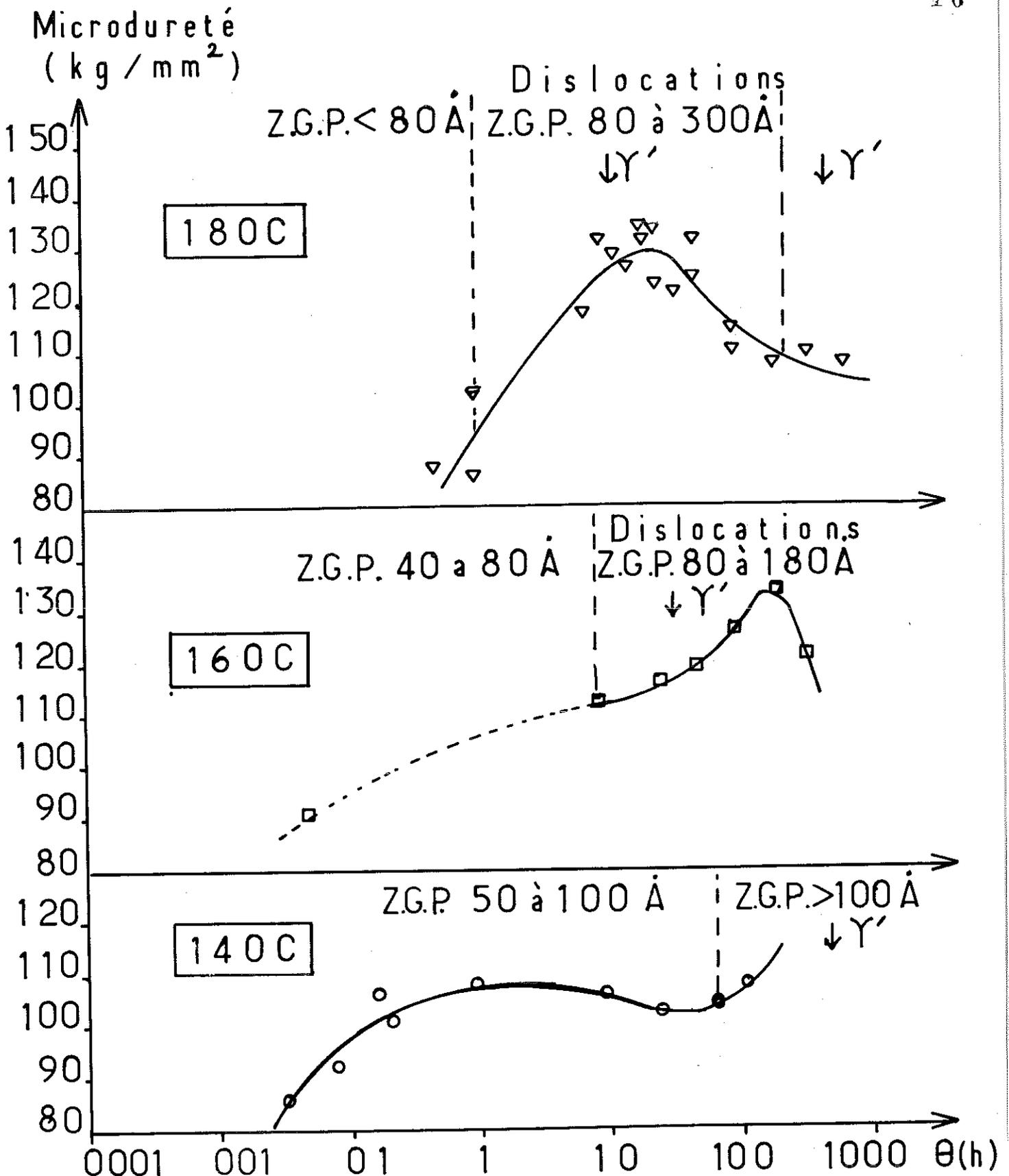
C - MICRODURETE

Les résultats donnant la microdureté en fonction du temps de revenu (figure 4) font apparaître 2 maximum. L'un se situe dans la région où il n'y a que des Z.G.P. (traitement à 140C). L'autre se place dans la zone où se développe le $\downarrow \gamma'$ (traitement à 180C).

Si l'on se reporte à la figure 2, on constate que pour le 1^o maximum la microdureté augmente d'abord avec le diamètre moyen des Z.G.P. Cela laisse supposer un processus de cisaillement des Z.G.P. par les dislocations. Ensuite, la microdureté diminue, le diamètre moyen des Z.G.P. continuant à croître. Le processus qui s'imposerait alors pourrait être le contournement des Z.G.P. par les dislocations.

Le maximum situé dans la région où le $\downarrow \gamma'$ se développe peut s'interpréter comme un processus de contournement, lequel est très sensible à la distance moyenne entre les précipités $(\frac{1}{N_{\ell}})$. La concordance entre les maximum de la microdureté et de N_{ℓ} serait normale (fig. 2 et 4).

Nous reviendrons plus longuement sur l'interprétation de la microdureté au cours de la tentative de synthèse générale des résultats métallurgiques.



Al Ag 10% at. Microdureté en fonction du temps de revenu (θ) à différentes temp.

Figure 4

CHAPITRE II - ALLIAGES Al. 4-5-7-17% at. Ag

Nous présentons maintenant des résultats relatifs à 4 alliages moins étudiés que le 10% at.

A - MICROSCOPIE ELECTRONIQUE ET METALLOGRAPHIQUE

Comme pour l'alliage à 10% at (figure 2) on voit sur la figure 5 que le diamètre moyen des Z.G.P. croît avec le temps de revenu. La pente de cette croissance change normalement à l'apparition du $\downarrow \gamma'$.

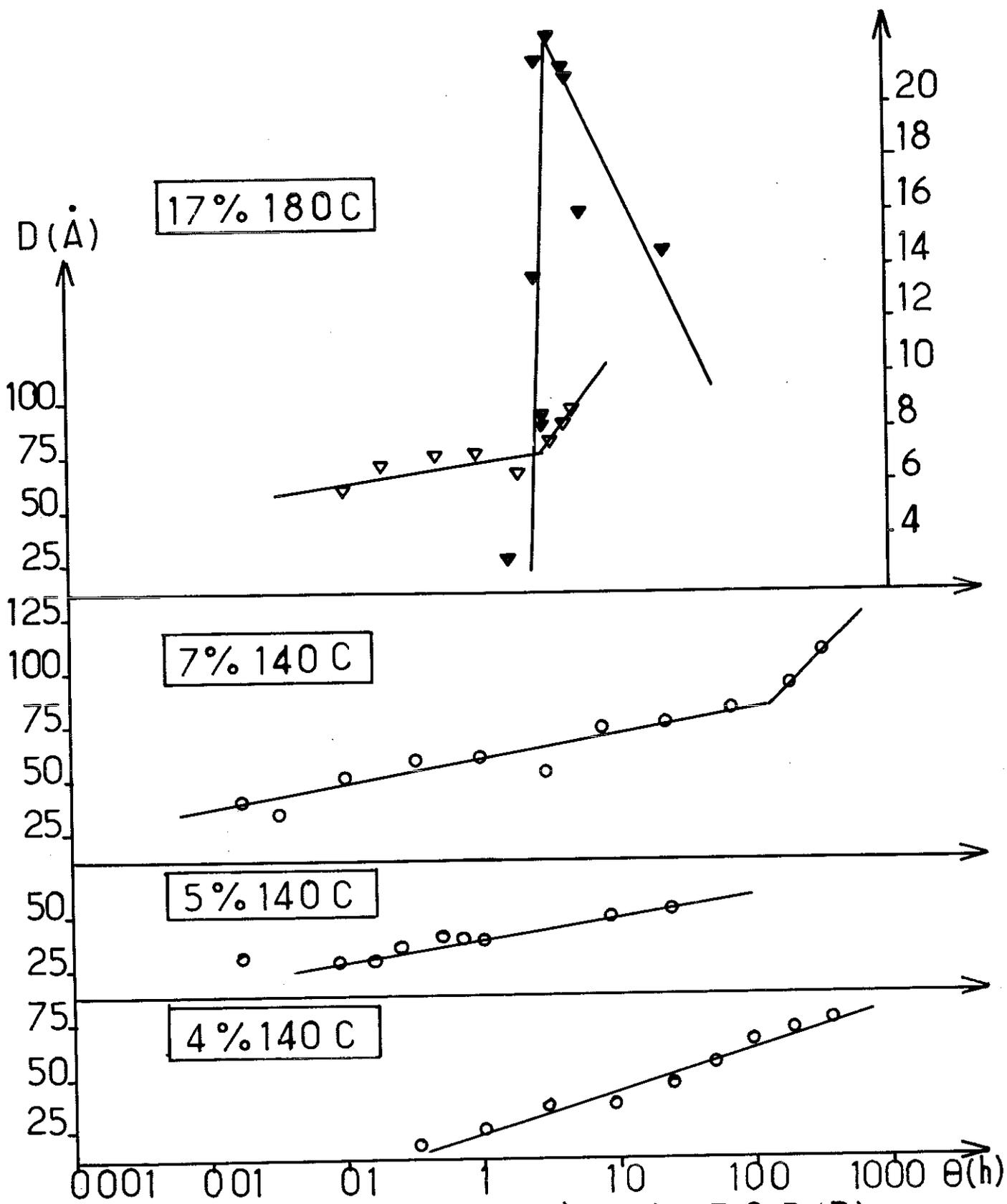
Le nombre de $\downarrow \gamma'$ par unité de longueur (N_L) passe pour l'alliage 17% at par un maximum comme c'était le cas pour l'alliage 10% at. Mais ici la distance moyenne des $\downarrow \gamma'$ n'est plus 1000 Å mais 500 Å au maximum de N_L ($N_L = 20\mu^{-1}$).

La microscopie métallographique (photo 32) montre que la phase γ (précipitation cellulaire) apparaît pour le 17% à partir d'un temps de revenu de l'ordre de 2 heures à 180C. La microscopie électronique (photo 36 à 38) confirme ce résultat.

Enfin tous les phénomènes de croissance (diamètre des Z.G.P., apparition du $\downarrow \gamma'$, maximum de N_L , apparition de la phase γ) sont d'autant plus retardés que la concentration en Ag est plus faible. (voir la synthèse générale).

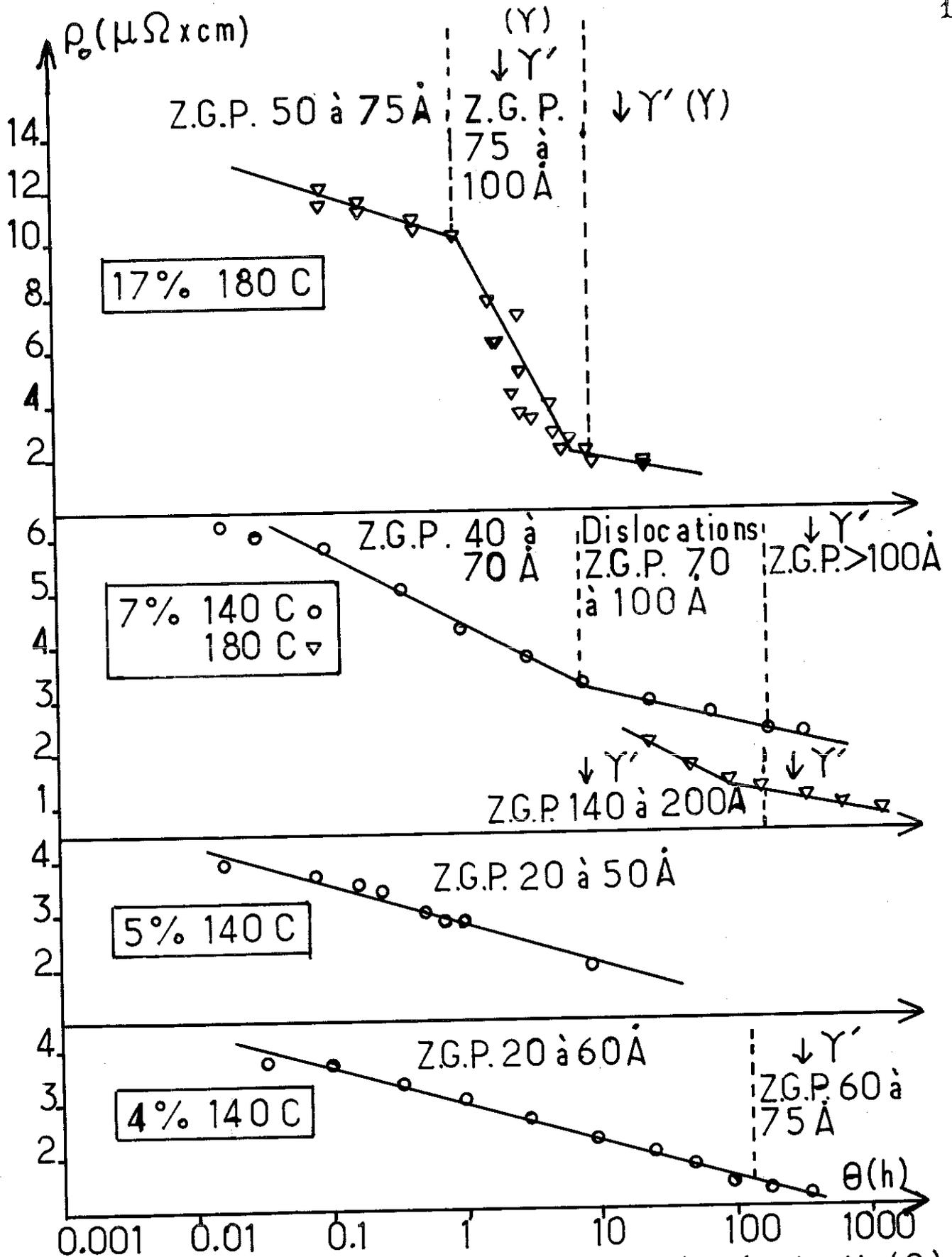
B - RESISTIVITE RESIDUELLE

Si l'on observe la variation de ρ_0 avec le temps de revenu à 180C (figure 6), pour l'alliage 17% at. on trouve très nettement marqués les 3 régimes déjà rencontrés avec l'alliage 10% at. la pente pour le 2° régime étant très forte (figure 3). On peut expliquer cette très forte pente en remarquant que se forme en même temps que le $\downarrow \gamma'$, la phase γ , la disparition des petites Z.G.P. est donc encore plus rapide.



Al Ag 4-5-7-17% at. Diamètre des Z.G.P.(D) \circ ∇ et Nombre de γ' par unité de longueur (N_l) \blacktriangledown en fonction du temps de revenu (θ) à différentes températures

Figure 5



Al Ag 4-5-7-17% at. Résistivité résiduelle (ρ_0) en fonction du temps de revenu (θ) à différentes températures
 Figure 6

Pour l'alliage 7%, le traitement à 180C n'est pas complet, mais révèle nettement un changement de pente au passage du 2° au 3° régime (figure 6).

Les alliages 4 et 5% n'ayant été revenus qu'à 140C, seul le 1° régime est atteint (figure 6).

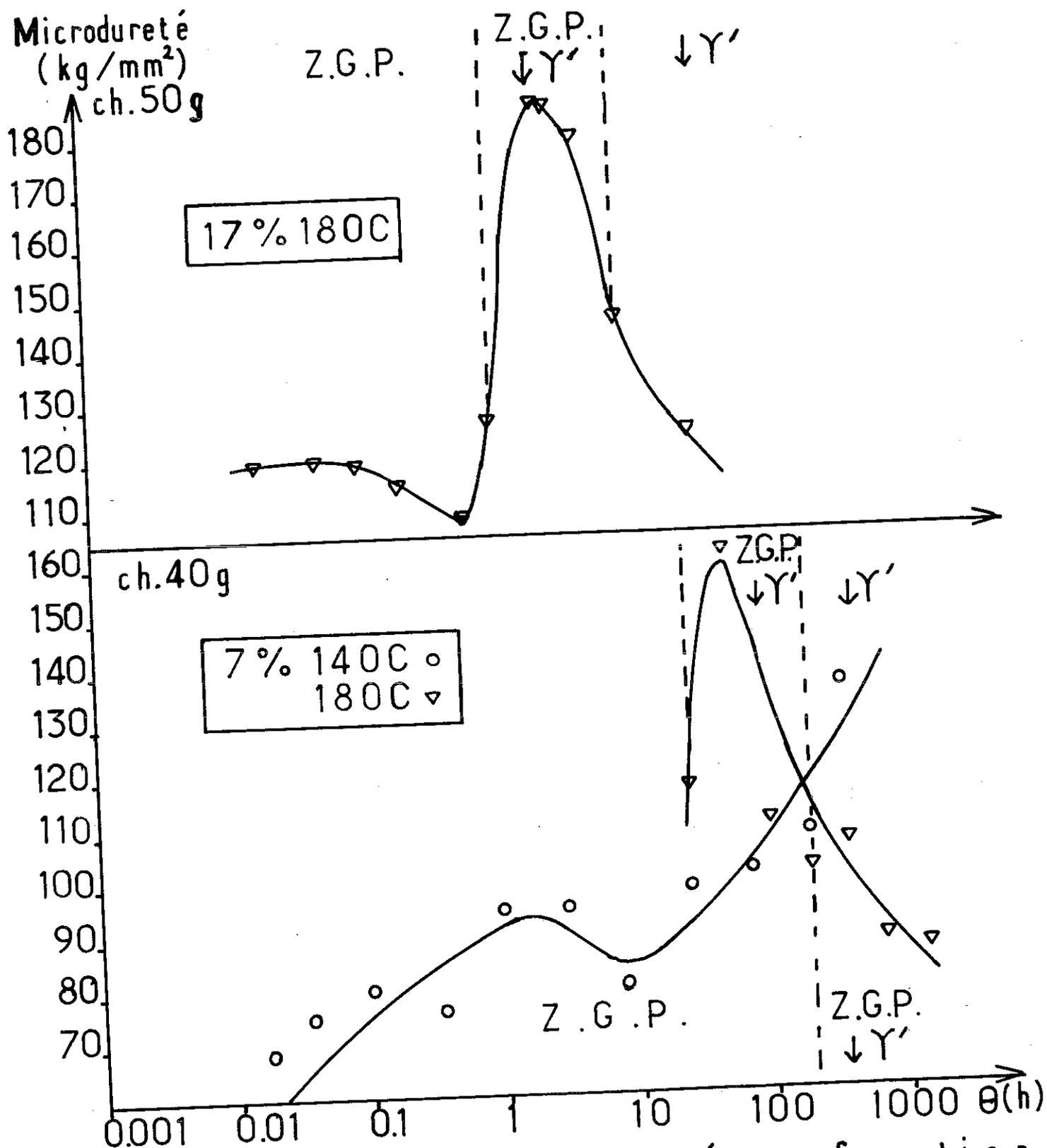
Pour l'alliage 7%, au cours du traitement à 140C apparaît un léger changement de pente au cours du 1° régime (avant la naissance des premiers $\downarrow \gamma'$). L'apparition de dislocations en assez grand nombre ralentit peut être le processus de dissolution des petites Z.G.P. au profit des grosses.

C - MICRODURETE

Le traitement à 140 C de l'alliage 7% at. (figure 7) présente comme nous l'avons indiqué pour l'alliage 10% at. un maximum dans l'augmentation de la microdureté due aux Z.G.P.

Les traitements à 180C sur les alliages 7 et 17% (figure 7) mettent en évidence le 2° maximum due au $\downarrow \gamma'$.

Notons que pour l'alliage 17% et pour les temps de revenu de plus de 1h à 180C, il faut être prudent au cours des mesures de microdureté. En effet, si la pointe au lieu de tomber dans une zone où se trouve le $\downarrow \gamma'$ tombe dans une cellule contenant la phase γ , la valeur trouvée est beaucoup plus faible. Il n'est évidemment possible de comparer les microduretés entre elles que si l'on reste dans des systèmes analogues. (voir la synthèse générale des résultats métallurgiques).



Al Ag 7-17% at. Microdureté en fonction du temps de revenu (θ) à différentes températures
Figure 7

CHAPITRE III - ESSAI DE SYNTHÈSE DES RESULTATS METALLURGIQUES

A - COURBES TRANSFORMATION - TEMPERATURE - TEMPS (T.T.T.)

Le but de notre travail n'étant pas une étude systématique de la cinétique des différentes transformations que subit au cours d'un revenu un système Al-Ag de composition donnée, nous ne pouvons apporter sur ce point que des résultats fragmentaires.

Malgré tout, pour l'alliage 10% at. nous avons fait des revenus à 3 températures différentes : 140 - 160 et 180C. Nous pouvons commencer à tracer une courbe T.T.T. pour l'apparition du $\downarrow \gamma'$ (figure 8). Elle a bien l'allure que l'on peut attendre d'un tel système. Nous avons aussi porté sur la figure 8, 2 points qui amorcent la courbe T.T.T. pour la position du maximum de serrage des $\downarrow \gamma'$.
On peut ainsi délimiter 3 zones.

Zone (I) - Seules se trouvent présentes les Z.G.P. dont le diamètre moyen va croissant.

Zone (II) - Les $\downarrow \gamma'$ naissent et vont ensuite en se serrant de plus en plus. Le diamètre moyen des Z.G.P. continus à croître.

Zone (III) - les $\downarrow \gamma'$ se dessèchent. La phase γ apparaît pour les temps de revenu très élevés. (plus de 300h à 180C).

Toutes les propriétés liées à l'état métallurgique du système : résistivité, microdureté, propriétés supraconductrices, vont suivre cette même évolution et l'on pourrait imaginer ainsi une succession de courbes T.T.T.

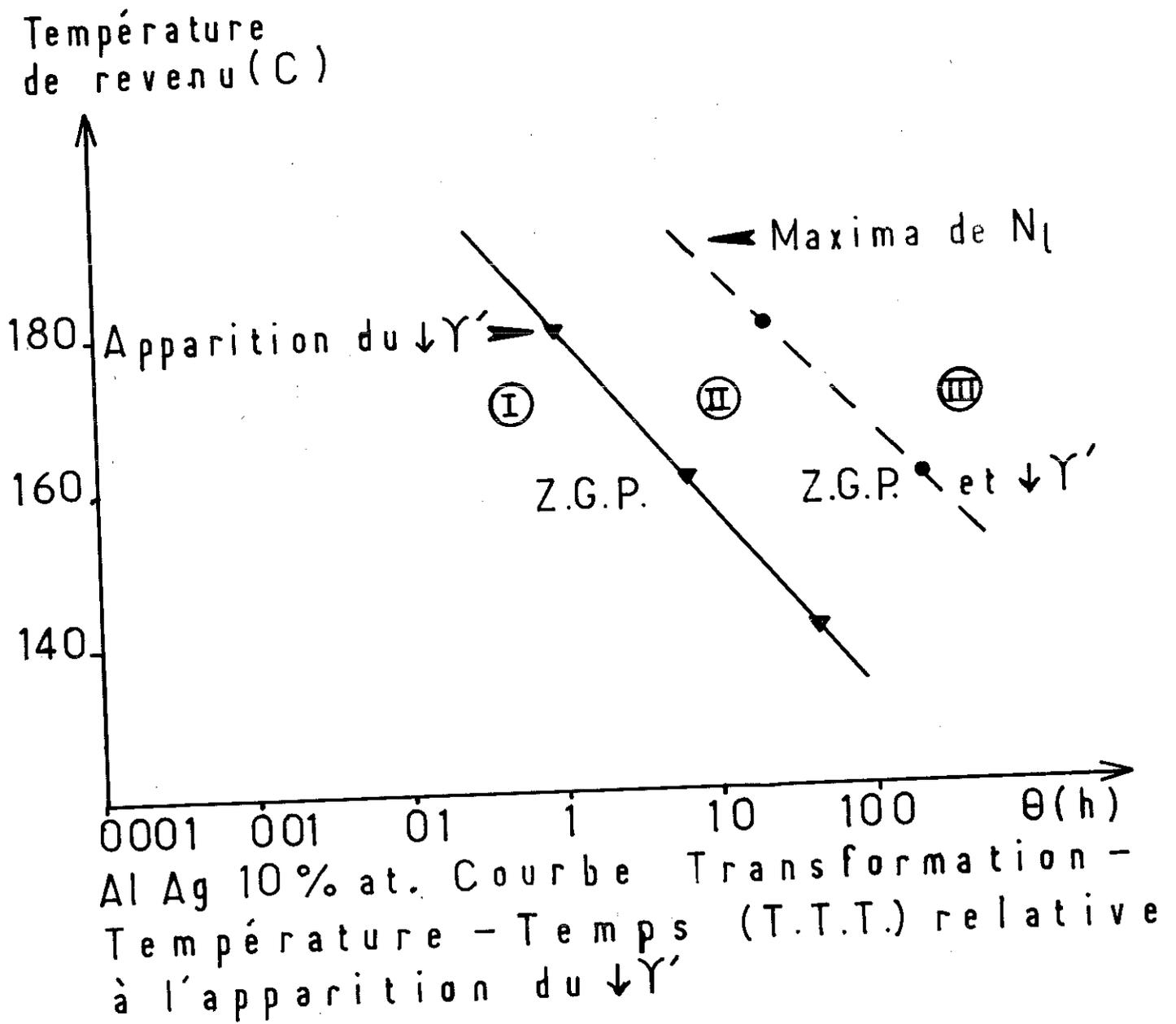


Figure 8

L'augmentation de la concentration en Ag a pour effet de déplacer vers les temps de revenu plus courts, toutes les courbes T.T.T.

B - MICRODURETE

L'interprétation des résultats sur la microdureté peut être ainsi proposée. Lorsqu'on mesure la microdureté, on relève la taille de l'empreinte faite par une pointe s'enfonçant dans le matériau, pour une charge donnée (figure 9). Cette taille fait intervenir à la fois la déformation plastique et la déformation élastique du matériau (Ref. 11 et 4). La force nécessaire pour produire une empreinte déterminée, va donc dépendre à la fois de la limite élastique et du taux de consolidation. Cette double dépendance est confirmée par le fait que pour une catégorie donnée de matériau, une bonne corrélation existe entre la microdureté et la résistance maximale de traction (Ref. 11). Or cette résistance maximale de traction dépend aussi de la limite élastique et du taux de consolidation.

Les résultats (figures 4 et 7) montrent un maximum de microdureté dans le domaine des Z.G.P. et un autre plus marqué dans le domaine du $\downarrow \gamma'$. Considérons successivement ces 2 domaines.

1°/ Domaine des Z.G.P.

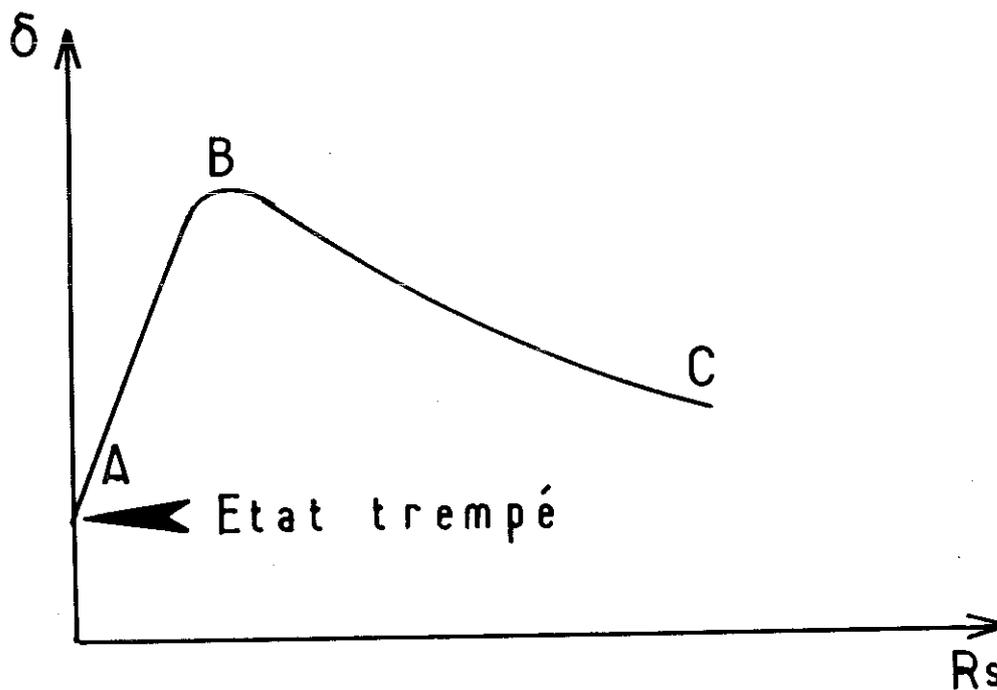
D'après R.L. Price et A. Kelly (Ref. 12) le taux de consolidation des alliages Al-Ag dans le domaine des Z.G.P. ne varie pas sensiblement avec le temps de revenu et reste voisin de celui de la solution solide homogène. On peut donc s'intéresser, dans le domaine des Z.G.P. seulement, à la déformation élastique.

On observe expérimentalement (Ref. 13) que pour des précipités cohérents et ordonnés à fraction en volume constante, l'augmentation de la limite élastique varie comme l'indique la figure 10. Nous nous trouvons bien dans le même cas, les Z.G.P. sont cohérentes avec la matrice,

— Surface du matériau avant essai
 Surface du matériau après essai



Déformation plastique au cours d'un essai de dureté Figure 9



Variation de la limite élastique (δ) d'un alliage avec la taille (R_s) des \downarrow cohérents (à fraction en volume Cte.)

Figure 10

la fraction en volume d'Ag ségrégué est très vite constante et le traitement à 140 C laisse les Z.G.P. dans l'état ordonné. Guyot (Ref. 14) interprète la courbe de la figure 10 en faisant appel à 2 mécanismes d'interaction des dislocations avec les précipités cohérents.

Dans la partie AB de la courbe le mécanisme principal est le cisaillement des précipités cohérents par les dislocations. Dans ce cas, on montre que l'augmentation de la constante élastique $\Delta\sigma$ croît avec R_S le rayon moyen des précipités.

Dans la partie BC les précipités étant plus gros, le mécanisme qui s'impose est leur contournement par les dislocations. C'est le processus d'Orowan (Ref. 15). Dans ce cas-là, on montre que $\Delta\sigma$ est inversement proportionnel à R_S . Or R_S continue à croître, il y a donc diminution de $\Delta\sigma$.

Si nous observons l'évolution de la micro-dureté des alliages 7 et 10 % at. en fonction du temps de revenu à 140 C (fig. 7 et 4) nous trouvons bien un maximum. Il pourrait correspondre au moment où les Z.G.P. d'abord cisailées par les dislocations, sont devenues trop grosses (et peu déformables) pour permettre ce mécanisme. Il y aura à partir de ce moment-là, contournement des Z.G.P. par les dislocations.

2°/ Domaine des $\downarrow\gamma'$

Il faut faire intervenir ici à la fois la déformation élastique et la déformation plastique.

- Déformation élastique

Le $\downarrow\gamma'$ est trop indéformable pour être cisailé par les dislocations qui doivent obligatoirement le contourner. On peut alors appliquer le mécanisme d'Orowan (Ref. 15) en tenant compte du fait que la distance moyenne entre les précipités est grande devant leur épaisseur.

L'augmentation de la contrainte élastique $\Delta\sigma$ est alors (Ref. 14) inversement proportionnelle à la distance moyenne entre les précipités. Elle est donc proportionnelle à N_1 .

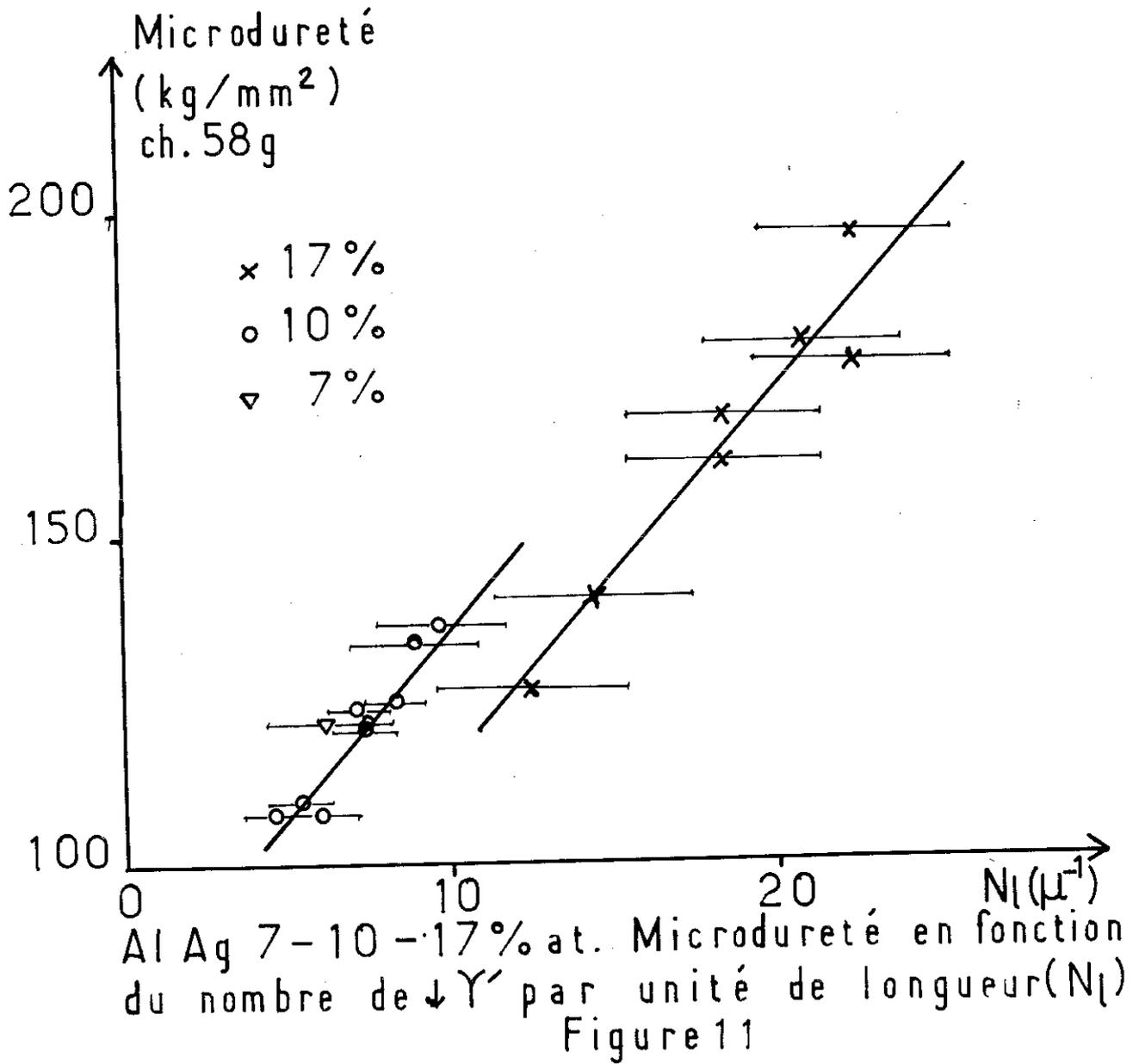
- Déformation plastique

D'après R.J. Price et A. Kelly (Ref. 12), le taux de consolidation décroît comme l'espacement entre les particules ($1/N_1$) non cohérentes ou semi-cohérentes et comme leur taille. Ici la taille (épaisseur) des $\downarrow\gamma'$ croît régulièrement et varie peu au regard de la variation de leur nombre par unité de longueur (N_1) qui passe par un maximum très net (Fig. 2 et fig. 5). Il semble donc que nous puissions très grossièrement dire que le taux de consolidation varie comme N_1 .

Finalement, l'accroissement de contrainte élastique (déformation élastique) et l'accroissement du taux de consolidation (déformation plastique) dus aux $\downarrow\gamma'$ varient comme leur nombre par unité de longueur N_1 .

Si nous faisons l'hypothèse, comme nous l'avons proposé, que la microdureté fait intervenir ici les 2 déformations : élastique et plastique, nous pouvons comparer l'augmentation de microdureté due aux $\downarrow\gamma'$ et leur nombre par unité de longueur N_1 .

Sur la figure 11 nous avons porté la microdureté en fonction de N_1 à partir du moment où les $\downarrow\gamma'$ se desserrent (N_1 décroît). En effet, pendant que les $\downarrow\gamma'$ se forment et se serrent, il y a encore beaucoup de Z.G.P. et les 2 phénomènes se superposant, la contribution de chacun est difficile à déterminer. Le résultat est net ; les points, compte tenu de la précision des mesures de N_1 , se placent sur une droite. La droite de l'alliage 17 % at ne prolonge pas celle du 10 % at est sans doute dû à un décalage d'ordonnée à l'origine où intervient l'augmentation de microdureté due aux Z.G.P.



Rappelons que nous n'avons pas étudié les zones cellulaires où apparaît la phase γ . Il semble seulement possible d'affirmer que ces zones sont de beaucoup plus faible dureté. On peut tenter une explication de ce phénomène en supposant que [les distances entre les lamelles de la phase γ étant du même ordre de grandeur que celles entre les $\downarrow \gamma'$] le contournement des lamelles γ par les dislocations est facilité par l'existence d'une seule orientation pour 4 orientations de γ' .

En conclusion de cette étude sur la microdureté, il semble que l'on puisse assez bien corrélérer sa variation avec celle de la déformation élastique dans le cas des Z.G.P. et avec celles des déformations élastiques et plastiques dans le cas du $\downarrow \gamma'$. Les allures de variation sont en bon accord avec la théorie des processus de cisaillement et de contournement des défauts par les dislocations.

D E U X I E M E P A R T I E

ETUDE DE L'IRREVERSIBILITE DE L'AIMANTATION DANS
LES ALLIAGES Al-Ag

Une courte présentation des 2 types de supraconducteurs (type I et type II) est faite dans la thèse de NEMOZ (Th. Nz. p. 10 et 12). Nous nous intéresserons dans cette deuxième partie à l'étude de l'influence de l'état métallurgique d'un supraconducteur de type II (Alliages Al-Ag) sur ses propriétés irréversibles.

La structure électromagnétique de l'état mixte des supraconducteurs de type II a été établie théoriquement en 1957 par ABRIKOSOV (Ref. 16 et 19). L'existence d'un réseau triangulaire de lignes de vortex a été trouvée expérimentalement par diffraction neutronique d'une part (Ref. 17) et par microscopie électronique d'autre part (Ref. 18).

Le réseau de lignes de vortex est à une échelle telle ; quelques centaines à quelques milliers d'Å , que son interaction est possible avec des inhomogénéités structurales ayant une échelle comparable. Cette interaction est responsable à la fois de l'hystérésis magnétique et de l'existence de courants critiques. L'intérêt de matériaux supportant de forts courants critiques est évident, c'est pourquoi depuis une dizaine d'années environ, l'ancrage des vortex est un problème qui est resté constamment à l'ordre du jour.

Les alliages Al-Ag ne supportent pas de fortes densités de courants critiques mais l'intérêt de leur étude

au regard de l'ancrage des lignes de vortex, réside dans la bonne connaissance que l'on peut avoir de leur état métallurgique.

Comme nous l'avons montré dans la première partie de ce mémoire, partant d'une solution solide homogène, on parcourt à l'aide de revenus isothermes le domaine des Z.G.P. puis celui des $\downarrow\gamma'$ et enfin celui de la phase γ .

L'aluminium est un supraconducteur de type I. La réalisation d'alliages Al-Ag ayant un comportement de type II est facile. En effet, on sait que (Ref. 20 et th. Nz. p. 12) le paramètre de GINZBURG et LANDAU χ est relié à la résistivité résiduelle ρ_0 par la relation

$$\chi_G = \chi_0 + 7,5 \cdot 10^{-3} \gamma^{1/2} \rho_0$$

χ_0 de l'aluminium pur : 0,03

γ chaleur spécifique électronique à l'état normal en $\text{erg} \times \text{cm}^{-3} \times \text{K}^{-2}$

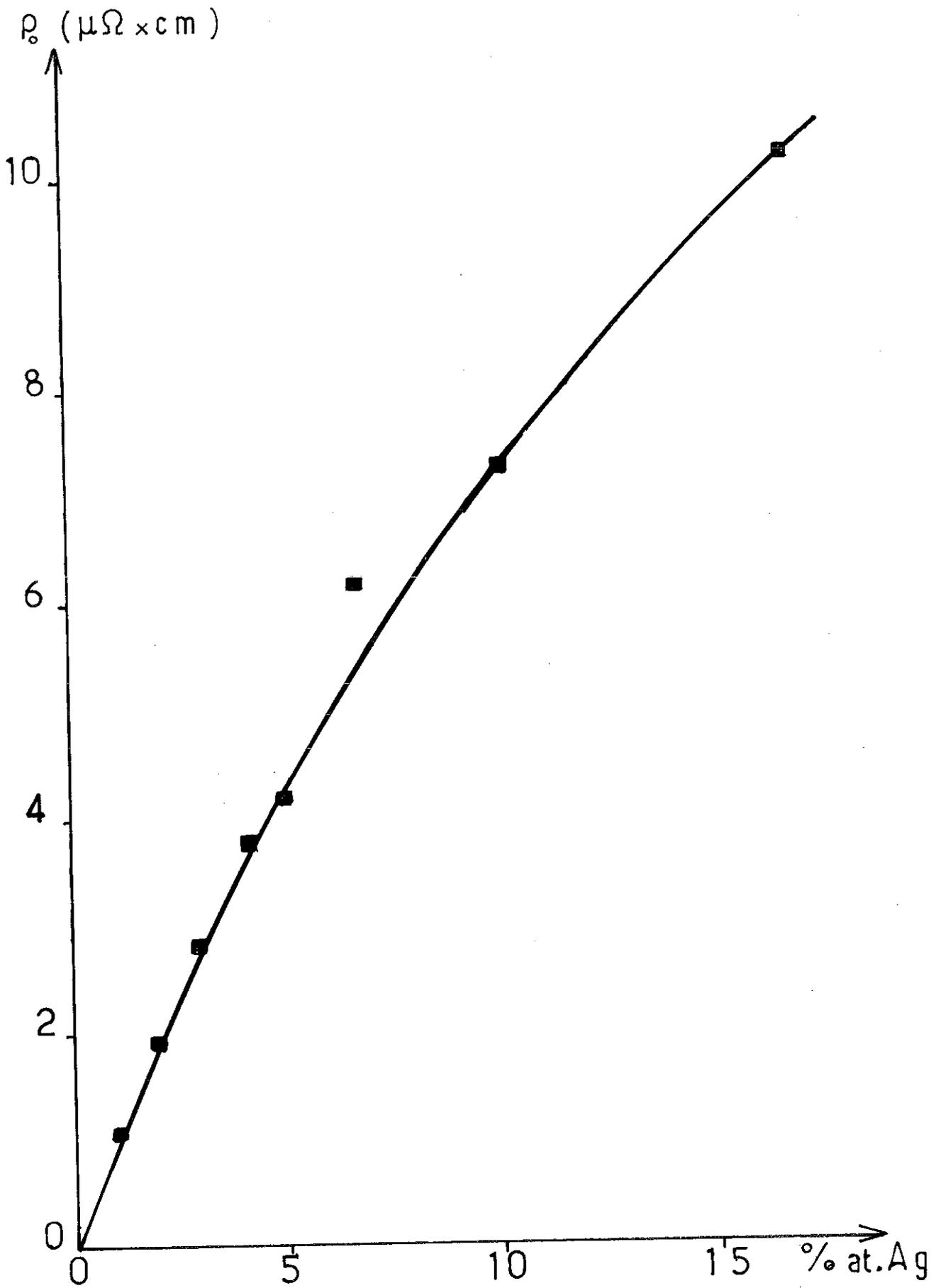
ρ_0 résistivité résiduelle en $\mu\Omega \times \text{cm}$.

La transition type I \rightarrow type II se fait pour $\chi = 1/\sqrt{2}$. Appellons ρ_0 critique la valeur de ρ_0 pour laquelle $\chi_G = 1/\sqrt{2}$. Pour toutes les valeurs supérieures à ρ_0 critique, l'alliage aura un comportement de type II. L'estimation de ρ_0 critique peut être faite en prenant comme valeur de γ la chaleur spécifique électronique de l'Al pur :

$$\gamma_{\text{Al}} = 1350 \text{ erg} \times \text{cm}^{-3} \times \text{K}^{-2} \quad (\text{Ref. 21})$$

Le problème du choix de la valeur γ sera discuté par NEMOZ (th. Nz. p. 37).

La figure 12 donne la valeur de la résistivité résiduelle ρ_0 mesurée pour des alliages bruts de trempe ayant des concentrations en Ag différentes. On voit que l'alliage 3 % at est déjà de type II à l'état brut de trempe. Mais, très rapidement au cours des revenus isothermes, ρ_0 va diminuer (Fig. 3 et 6). Si l'on veut étudier l'ancrage des lignes de vortex sur des $\downarrow\gamma'$, il faut choisir un alliage assez concentré en Ag afin qu'il reste



Al Ag Alliages bruts de trempe.

Fig. 12

de type II pendant toute la séquence métallurgique. Ce sera à peu près le cas pour l'alliage à 10 % at d'Ag.

L'étude de l'ancrage des lignes de vortex peut se faire soit à partir de mesures directes de densités de courants critiques, soit à partir de mesures d'aimantation. Nous avons choisi cette dernière méthode.

CHAPITRE I - MESURES MAGNETIQUES

Les mesures de l'aimantation (- 4 π M) ont été faites par extraction dans l'appareil de BONNIN (voir annexe II). Si la temp. critique de l'Al pur est de 1,180 K, celle des alliages Al-Ag s'abaisse nettement en-dessous de cette valeur par l'adjonction d'Ag (Th. Nz. p. 23). L'appareil de BONNIN conviendra bien aux mesures sur des alliages allant de 4 à 10 % at. L'alliage 17 % at. a une température critique T_c trop basse pour que des mesures le concernant puissent être faites dans cet appareil.

Pour chaque échantillon ayant eu un traitement thermique déterminé, nous avons fait une dizaine de mesures à des températures différentes. De ces mesures on peut déduire les différents champs critiques : H_c , H_{c1} , H_{c2} et la température critique T_c . Ces résultats sont exploités dans la thèse de NEMOZ.

Pour l'étude de l'ancrage des lignes de vortex, nous nous attacherons à l'irréversibilité des cycles d'hystérésis. Si l'on observe les résultats obtenus avec les alliages 4, 5 et 7 % at, on se rend compte qu'ils restent quasiment réversibles et n'évoluent pas avec les différents revenus isothermes. Nous nous bornerons donc à étudier dans le détail les résultats des mesures faites sur l'alliage 10 % at. pour lequel l'irréversibilité apparaît après certains traitements thermiques.

Si l'on^{se} reporte à la fig. 3 on voit que les valeurs de la résistivité résiduelle ρ_0 couvrent une gamme assez grande allant de 7,29 à 1,30 $\mu\Omega \times \text{cm}$. Nous aurons donc une variation des paramètres χ_G de 1,82 à des valeurs $< 1/\sqrt{2}$.

30

Cette variation de χ_G qui a lieu conjointement à celle de l'irréversibilité des cycles d'hystérésis, compliquera l'étude du problème de l'ancrage des lignes de vortex.

Dans une première approche, nous repèrerons les différents alliages ayant subi des traitements thermiques déterminés par leur valeur de ρ_0 bien que l'on puisse avoir deux états métallurgiques assez différents pour deux échantillons ayant le même ρ_0 s'ils ont été revenus à des températures différentes (voir première partie, page 14). Nous verrons plus loin que ce fait n'est pas gênant pour l'analyse finale des résultats. La gamme de $7,29$ à $1,30 \mu\Omega \times \text{cm}$ que nous venons d'évoquer est décrite à l'aide de 25 échantillons. Nous allons porter nos observations tout d'abord sur l'allure générale des cycles d'hystérésis puis plus particulièrement sur l'aimantation en champ nul (aimantation rémanente).

- Observation des Cycles

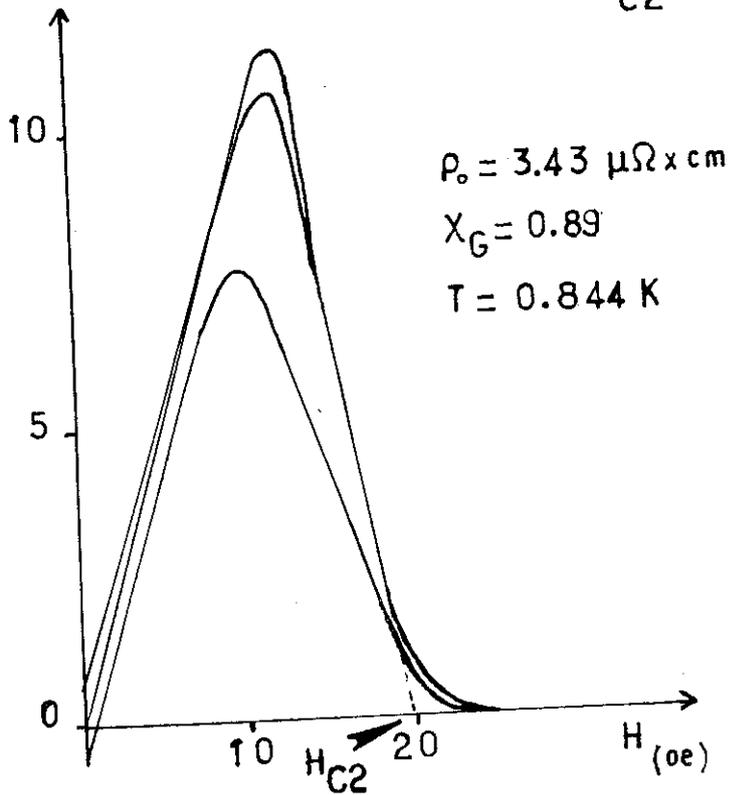
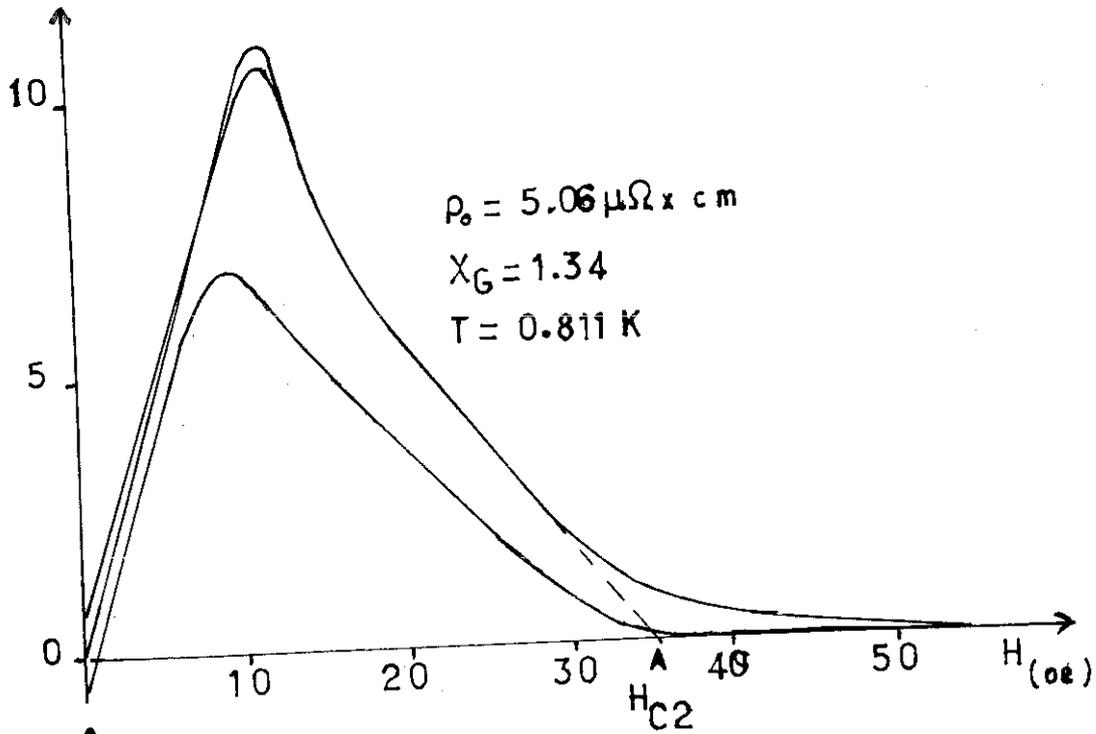
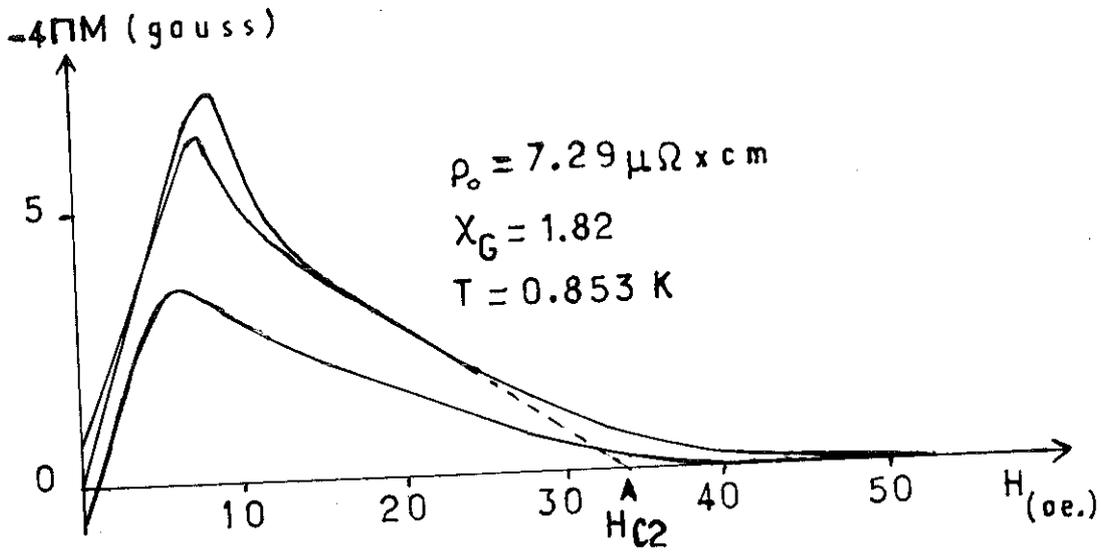
Sur la figure 13 en haut de la page, le cycle est fort peu irréversible et cette quasi-réversibilité est encore très nette en bas de page pour un échantillon dont la résistivité résiduelle et le paramètre de GINZBURG et LANDAU ont été divisés par 2. Nous sommes dans le domaine des Z.G.P. dont le diamètre augmente.

Sur la figure 14 on voit qu'assez brutalement alors que ρ_0 et χ varient peu, l'irréversibilité apparaît. Très vite ensuite elle croît et le cycle porté sur la fig. 15 montre une très grande irréversibilité.

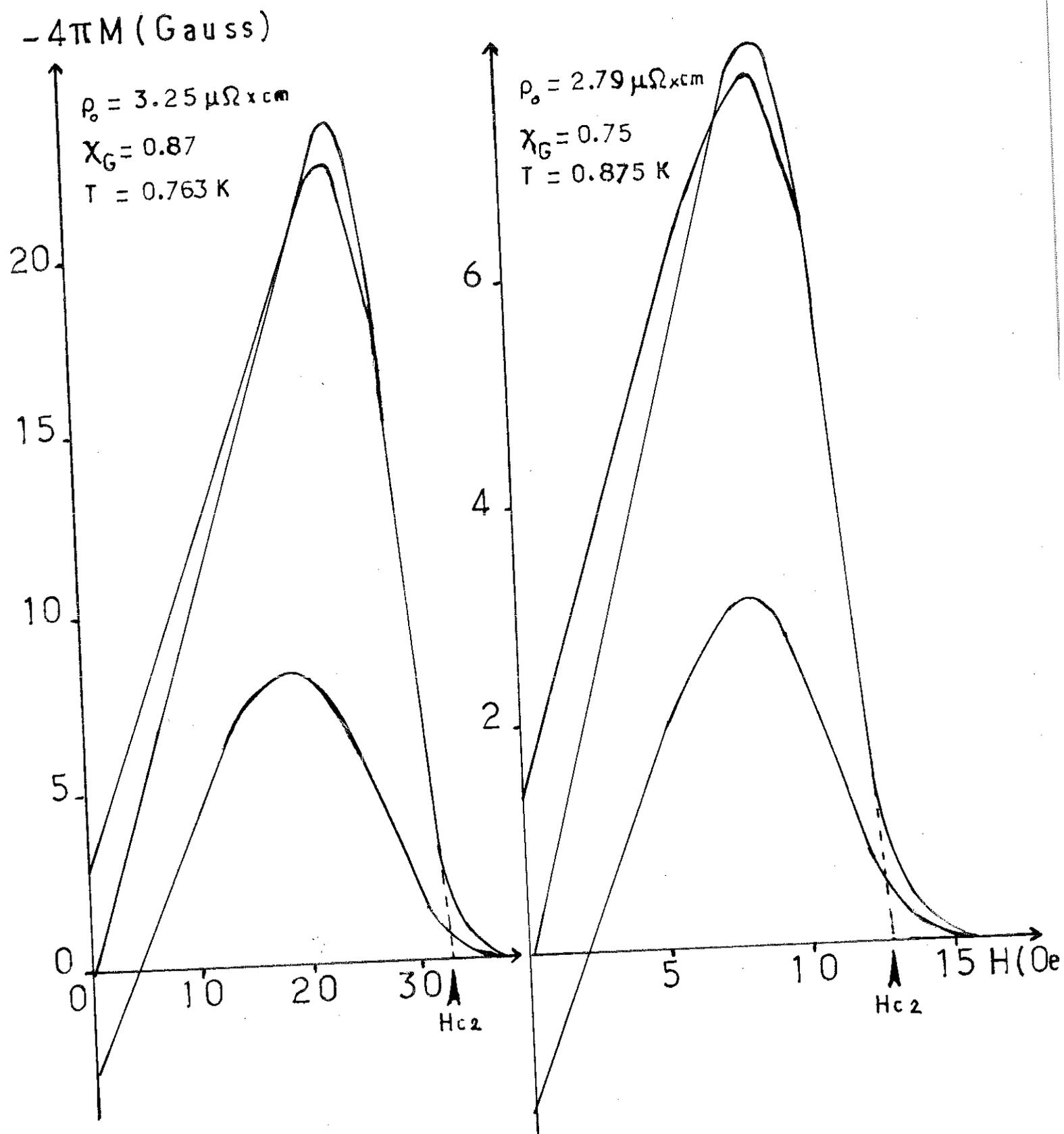
Les échantillons deviennent ensuite de type I avec une certaine irréversibilité comme en témoigne la fig. 16.

- Aimantation rémanente

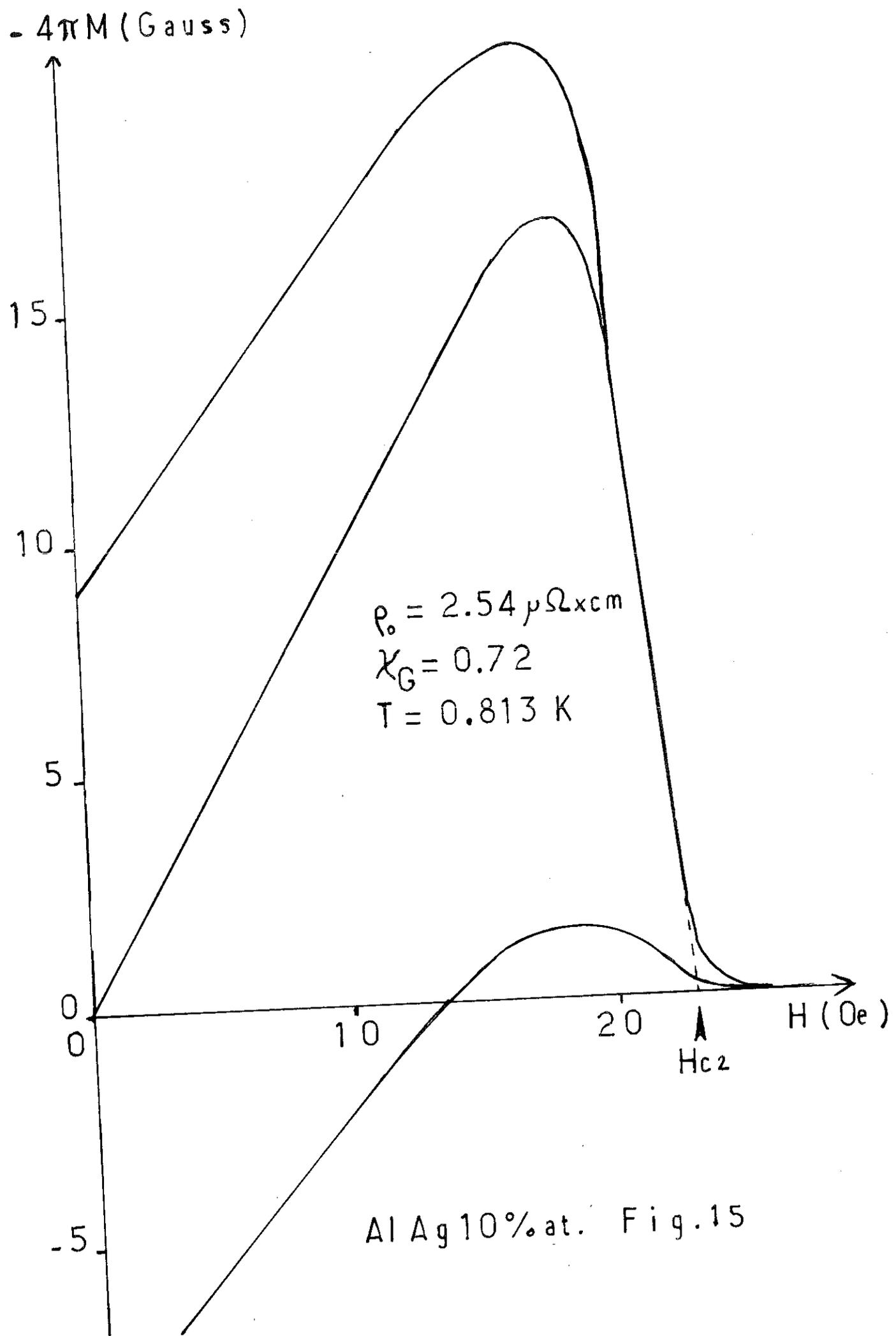
Afin de mieux situer l'évolution que nous venons de présenter, nous avons porté les valeurs de l'aimantation rémanente pour chaque échantillon en fonction de la température

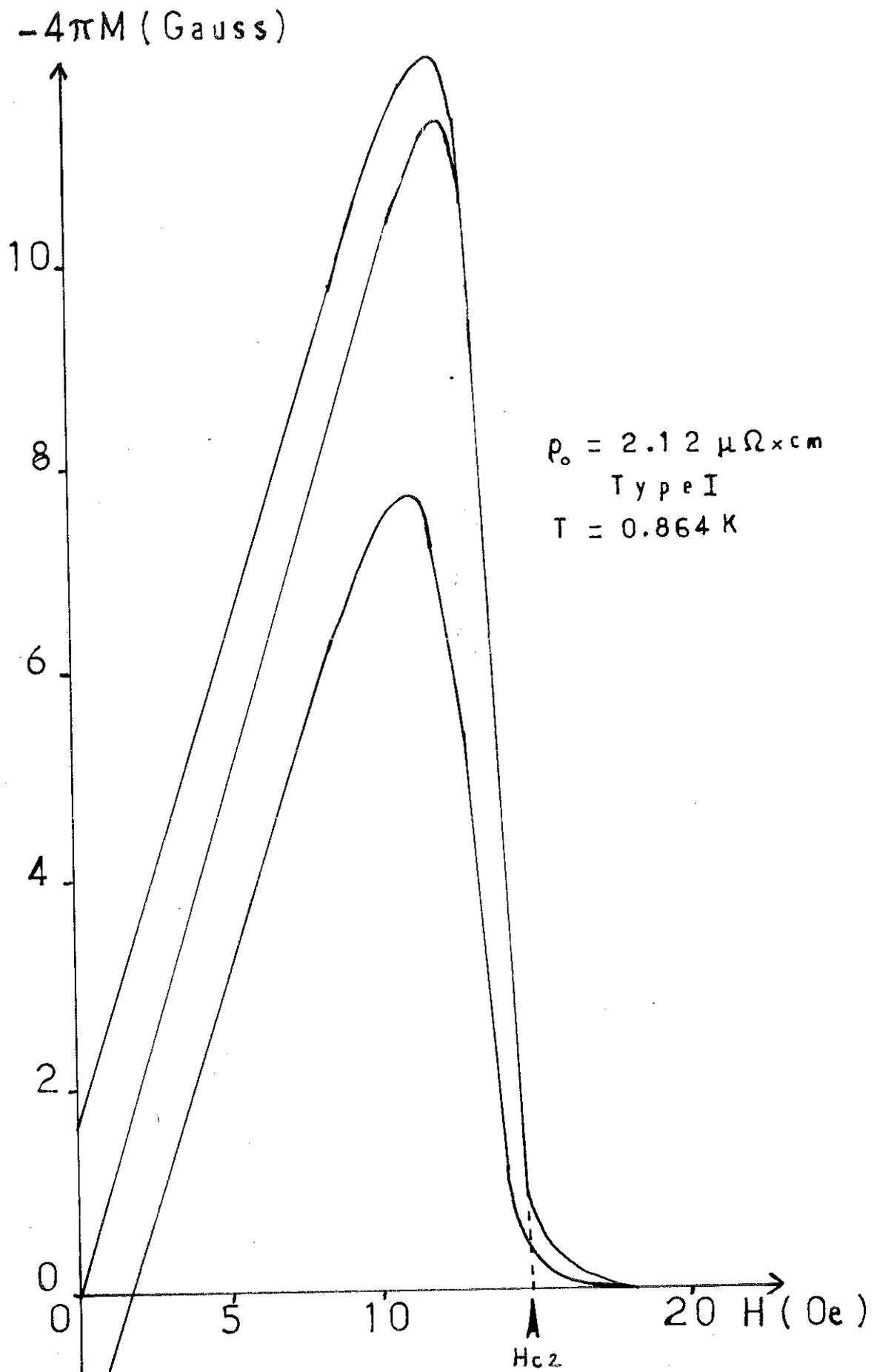


Al Ag 10% at. Fig. 13



Al Ag 10% at. Fig. 14





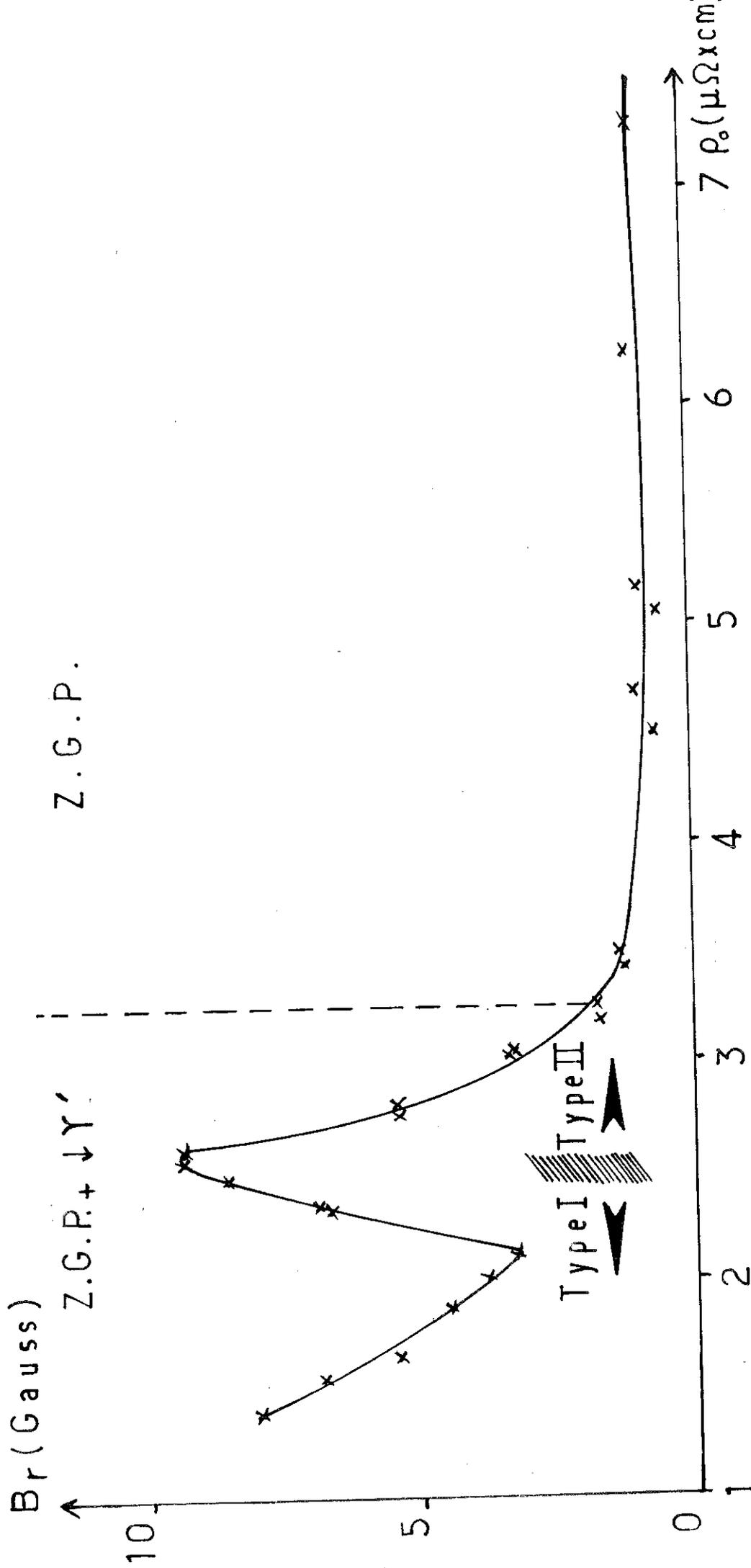
Al Ag 10% at. Fig. 16

réduite $t = T/T_c$. Nous avons ensuite relevé l'aimantation rémanente à $t = 0,85$ et nous l'avons portée en fonction de ρ_0 (fig. 17). On voit très nettement que tant que les Z.G.P. sont seules présentes, l'irréversibilité est faible. Dès qu'apparaissent les $\downarrow\gamma'$, elle croit très rapidement. Au passage type II \rightarrow type I il y a une chute de l'aimantation rémanente qui va croître à nouveau à l'intérieur même du type I. Notons que le passage type II \rightarrow type I que nous avons prévu à $2,47 \mu\Omega \times \text{cm}$ est assez flou et cela s'explique par l'inhomogénéité des échantillons.

Deux résultats sont donc acquis :

- LES Z.G.P. QUEL QUE SOIT LEUR DIAMETRE (il évolue ici de 40 à 150 Å) NE PARTICIPENT PAS A L'ANCRAGE DES LIGNES DE VORTEX.
- LES PRECIPITES DE LA PHASE γ' ENTRAINENT L'IRREVERSIBILITE DES CYCLES D'HYSTERESIS.

Ces résultats sont confirmés par les mesures faites sur un alliage de 7 % at. Dans le domaine où il est de type II, il présente des cycles réversibles. Dans ce domaine il ne contient pas de $\downarrow\gamma'$ (Z.G.P. seulement). Le moment où apparaît le $\downarrow\gamma'$ coïncide avec la transition type II \rightarrow type I. Cette transition masque l'apparition de l'irréversibilité observée sur le 10 % at.



Al Ag 10% at. Evolution de l'aimantation rémanente à $t = T/T_c = 0.85$

Fig. 17

CHAPITRE II - LA FORCE D'ANCRAGE

Le résultat qualitatif précédent appelle une relation quantitative. En effet, si les γ' sont responsables de l'irréversibilité, il semble nécessaire de relier leur nombre par unité de longueur N_l que nous avons déterminé dans la première partie et dont nous savons la corrélation avec la microdureté, à une variable caractéristique de l'ancrage des lignes de vortex.

Nous allons tout d'abord essayer de tirer des cycles d'hystérésis, une expression de la force d'ancrage. Rappelons de quoi il s'agit.

Lorsqu'un supraconducteur parfait de type II est placé dans un champ magnétique croissant H , l'induction magnétique B reste nulle à l'intérieur du supraconducteur jusqu'à la valeur H_{c1} du champ extérieur. $B = \mu_0 H + 4 \pi M$
 $B = 0$ $\mu_0 H = - 4 \pi M$

Puis s'établit un état mixte où le flux d'induction pénétrant le supraconducteur est porté par les lignes de vortex parallèles au champ extérieur, à raison d'un quantum de flux $\varnothing_0 = 2 \cdot 10^{-7}$ gauss \times cm² par ligne de vortex. L'induction vaut alors :

$$B = N \varnothing_0 \quad N \text{ densité de lignes de vortex}$$

A mesure que le champ magnétique extérieur augmente un nombre de plus en plus grand de lignes de vortex est créé jusqu'au moment où l'intensité d'aimantation s'étant annulée, $B = \mu_0 H$. Quand le champ magnétique extérieur décroît, le processus inverse s'engage, les lignes de vortex devant peu à peu "sortir" de l'échantillon.

Si l'échantillon contient des centres susceptibles d'entraver le mouvement des lignes de vortex (centres d'ancrage), il apparait un gradient de densité de lignes de vortex. Il lui correspond, puisque

$$B = N \Phi_0$$

un gradient d'induction. Les lignes de vortex sont alors soumises à une force F (par unité de volume). Dans le modèle de l'état critique (Ref. 22 et 23) on suppose que le gradient d'induction prend une valeur telle que la force F qui en résulte équilibre en tout point la force globale d'ancrage F_a qui lui a donné naissance, de sorte que

$$F_a = - F$$

Dans le cas particulier de lignes de vortex parallèles à l'axe d'un échantillon cylindrique (champ appliqué parallèle à l'axe du cylindre), FRIEDEL et al ont montré en traitant les lignes de vortex comme un fluide compressible que :

$$F_a = - F = \frac{B}{4\pi} \frac{\delta H(B)}{\delta r} \quad (1)$$

$$\text{soit encore } F_a = \frac{B}{4\pi} \frac{\delta H(B)}{\delta B} \frac{\delta B}{\delta r} \quad (2)$$

$\frac{\delta B}{\delta r}$ est le gradient d'induction suivant le rayon du cylindre.

$\frac{\delta H(B)}{\delta B}$ est la pente de la courbe $B(H)$ en l'absence de centre d'ancrage (courbe réversible)

$$\text{Puisque } B = H + 4 \pi M$$

$$\frac{\delta H}{\delta B} = \frac{1}{1 + 4\pi \frac{\delta M}{\delta H}} \quad (3)$$

La pente $4\pi \frac{\delta M}{\delta H}$ sera estimée à partir de courbes d'aimantation réversibles. Le terme $\frac{\delta B}{\delta r}$ peut être calculé à partir de l'hystérésis des courbes d'aimantation. En négligeant la variation de H dans l'échantillon ($H(r) \approx H$ appliqué), en supposant que B est linéaire en r (modèle de BEAN, Ref. 25) et que $\frac{\delta B}{\delta r}$ ne dépend pas de B on trouve (Ref. 26) :

$$\frac{\delta B}{\delta r} = \frac{3}{2r} \Delta(-4\pi M) \quad (4)$$

$\Delta(-4\pi M) = (-4\pi M)$ en champ croissant moins $(-4\pi M)$ en champ décroissant. R rayon du cylindre.

Finalement, compte tenu de ces approximations, on peut donner à F_a l'expression :

$$F_a = \frac{\mu_0 H + 4\pi M}{4\pi} \frac{1}{1 + 4\pi \frac{\partial M}{\partial H}} \frac{3}{2R} \Delta[-4\pi M] \quad (5)$$

F_a en dy/cm³

$\mu_0 H$ et $4\pi M$ en gauss

R en cm.

Si l'on veut ramener cette force F_a globale, par unité de volume, à une force par unité de longueur de ligne de vortex F_ℓ on écrira :

$$F_\ell = \frac{F_a \times \phi_0}{B}$$

soit encore :

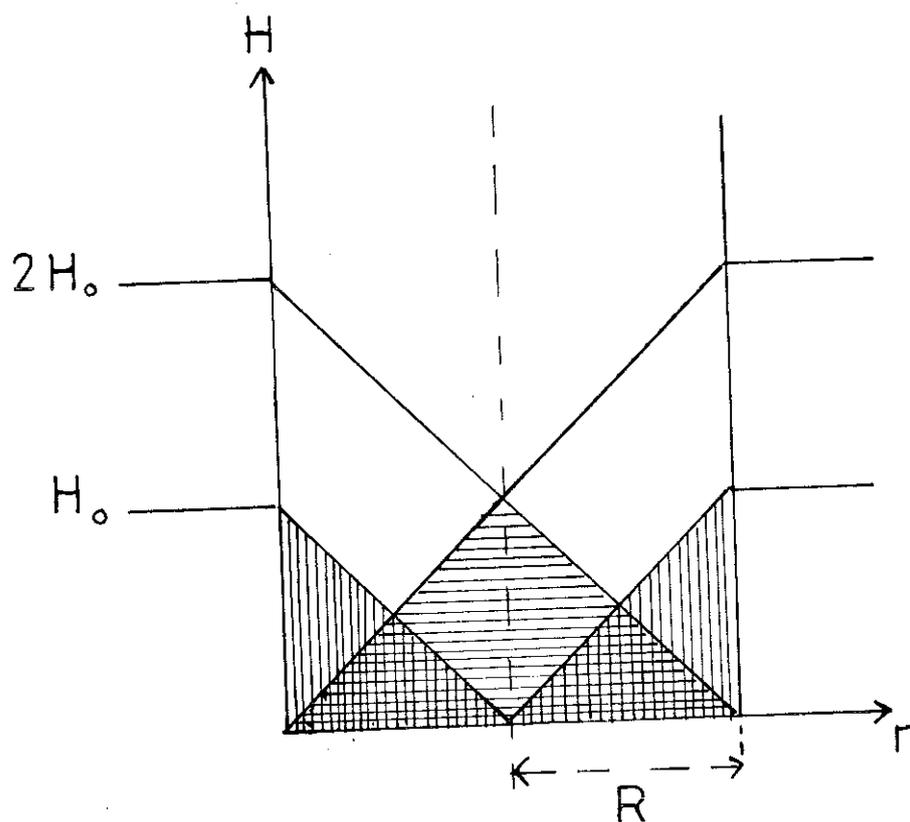
$$F_\ell = \frac{\phi_0}{4\pi} \frac{1}{1 + 4\pi \frac{\partial M}{\partial H}} \frac{3}{2R} \Delta[-4\pi M] \quad (6)$$

F_ℓ en dy/cm.

Dans le cas qui nous intéresse, l'application de cette formule est délicate et doit être faite avec prudence. Il faut tout d'abord déterminer la pente $\frac{\delta M}{\delta H}$ pour un cycle réversible. Nous avons choisi de prendre la pente d'une courbe de première aimantation d'un échantillon 7 % at ayant le même χ_G que l'échantillon 10 % at correspondant. En effet on peut trouver un échantillon 7 % at. ne contenant pas de $\downarrow \gamma'$, ayant donc un cycle réversible et possédant la même résistivité résiduelle que l'échantillon 10 % at considéré. Cette méthode est, bien entendu, assez imprécise. De plus nous allons supposer que cette pente est constante ce qui n'est vrai qu'assez loin de H_{C1} . Nous ne relèverons donc les valeurs de $-4 \pi M$ en champ croissant et décroissant qu'assez loin de H_{C1} . Mais nos χ étant faibles, le domaine où l'on peut relever ces valeurs est petit. C'est une nouvelle cause d'imprécision.

D'autre part pour que le modèle soit valable il faut être assuré que la pénétration des lignes de vortex est complète jusqu'à l'axe de l'échantillon au moment où l'on relève $\Lambda(-4 \pi M)$. Il faut pour cela que H soit supérieur à H_0 . En se basant sur la répartition de l'induction à l'intérieur de l'échantillon suivant le modèle de BEAN (Ref. 25) on peut, sur les courbes d'aimantation, déterminer H_0 . Il suffit de remarquer que l'induction moyenne est la même en champ croissant pour la valeur H_0 que l'induction moyenne B_T en champ nul (fig. 18). On portera la valeur de B_T suivant AB et l'on trouvera la valeur de H_0 correspondante.

Nous avons appliqué la formule 6 à nos cycles d'hystérésis compte tenu des remarques précédentes. Nous avons porté (fig. 19 et 20) les valeurs de F_2 pour un échantillon donné et une température donnée en fonction de B/B_{C2} . La variation semble linéaire. Le petit nombre de cycles complets relevés pour chaque échantillon à des températures différentes, ne nous permet pas de trouver une loi très nette pour la variation de la pente des droites précédentes avec $t = T/T_c$ (fig. 21).



Pénétration du champ à l'intérieur d'un échantillon (modèle de Bean)

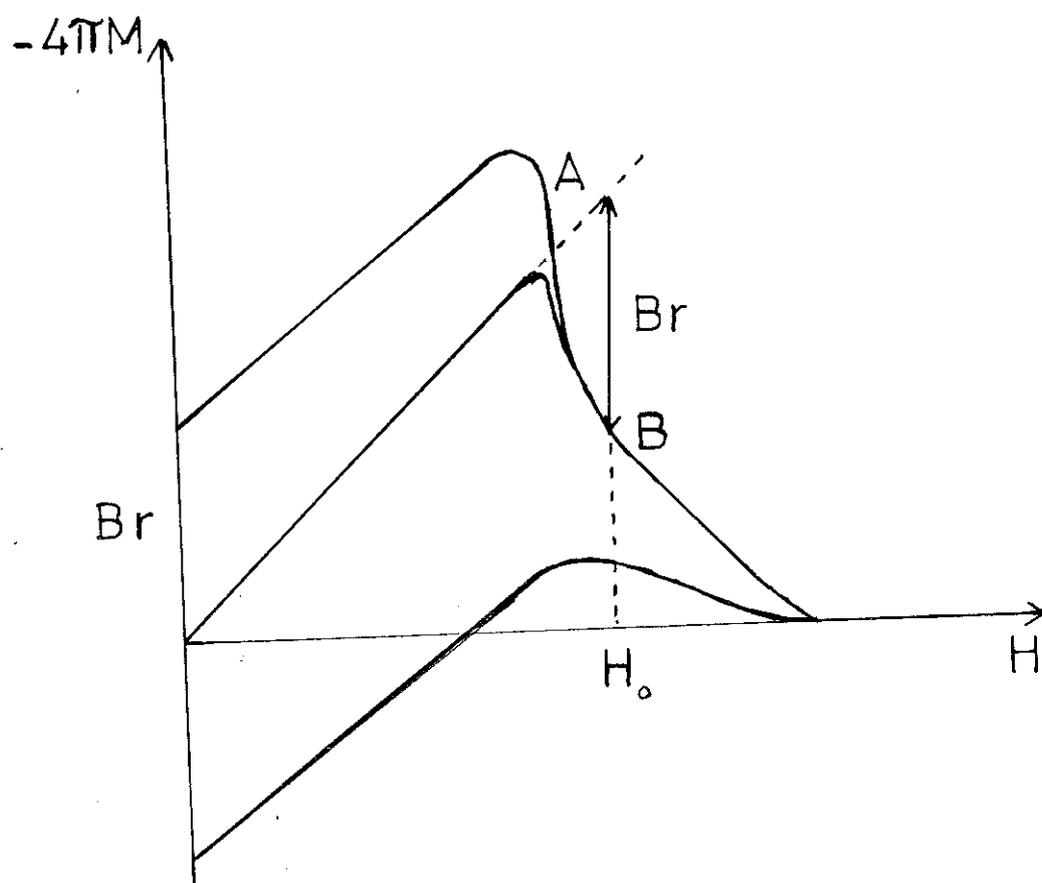
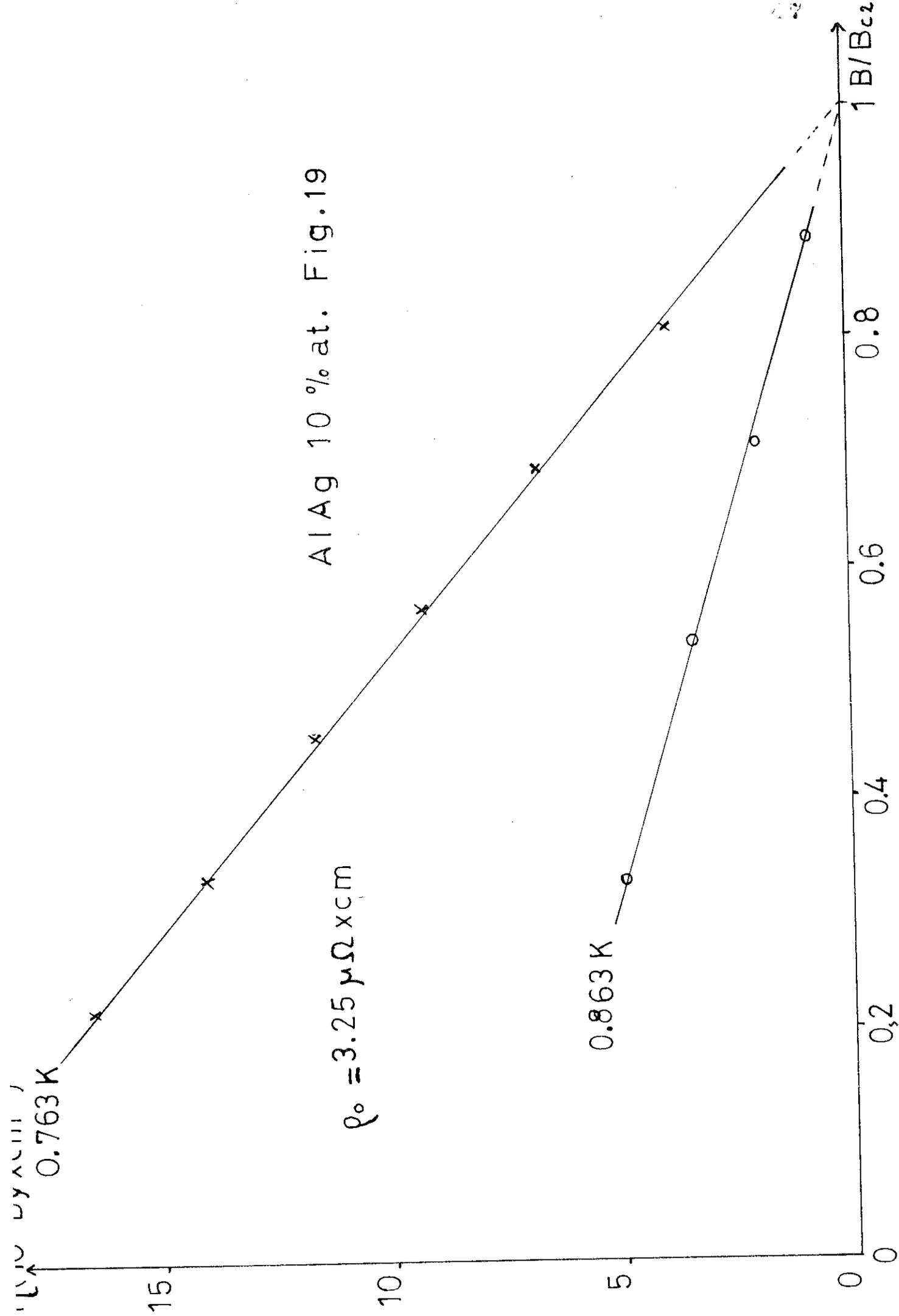


Fig.18

Determination de H_0 .



AlAg 10% at. Fig. 19

$F_L (10^{-7} \text{ Dy x cm}^{-1})$

0.767 K

$\rho_0 = 2.54 \mu\Omega \text{ x cm}$

Al Ag 10% at. Fig. 20

0.813 K

0.838 K

0

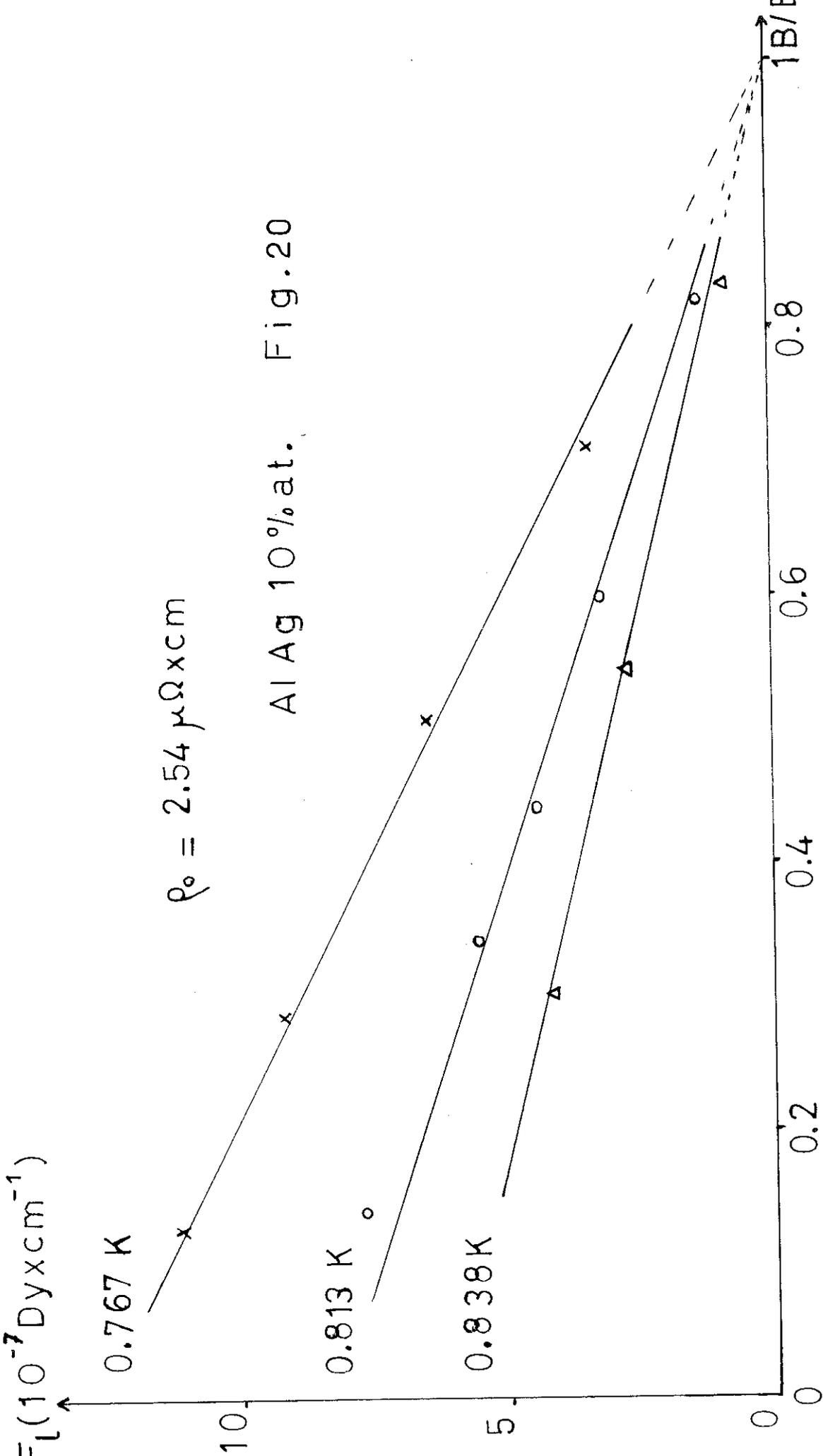
0.2

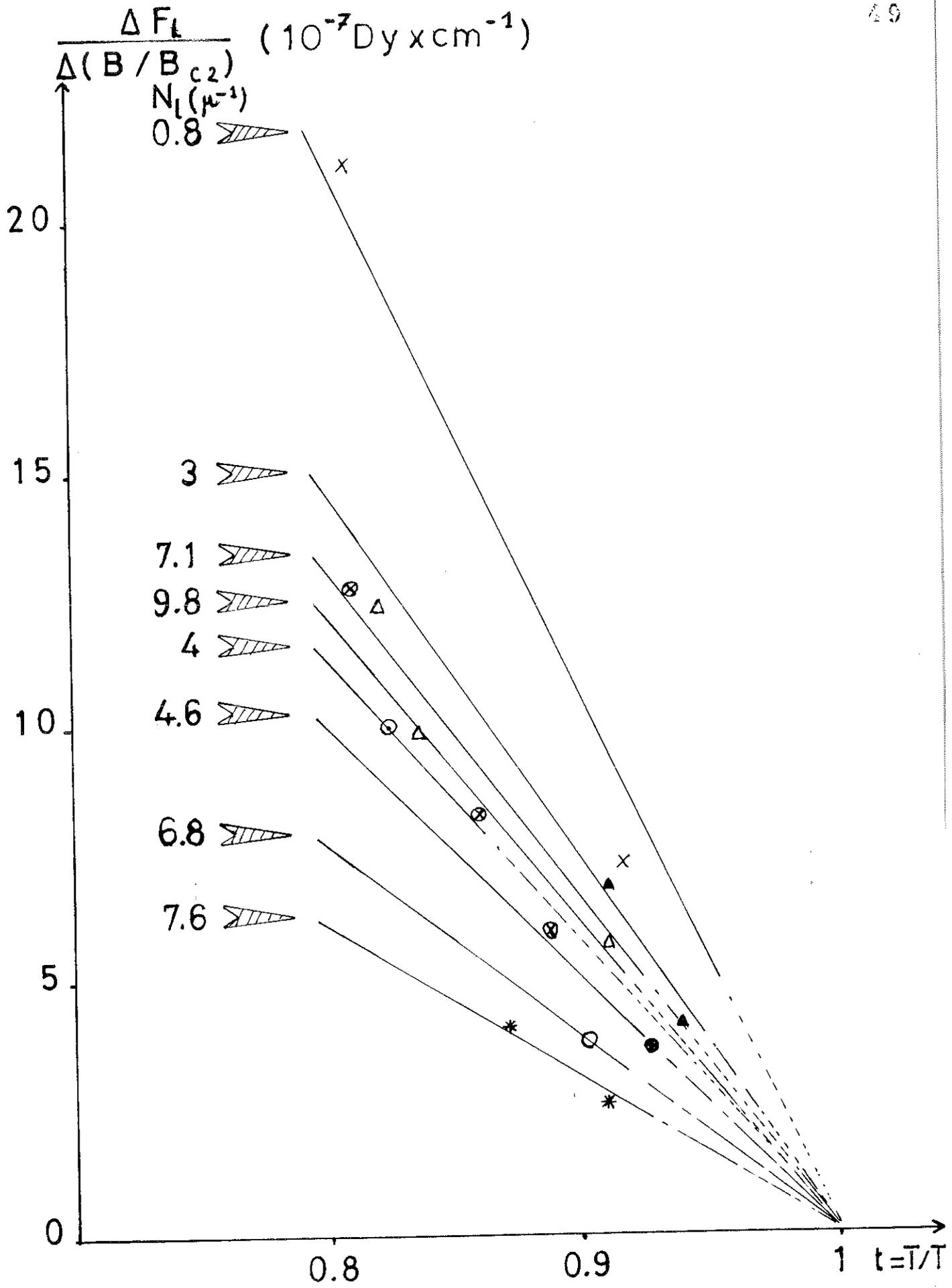
0.4

0.6

0.8

$1/B_{c2}$





Al Ag 10 % at. Fig. 21

Certains auteurs (Ref. 27) en effet, considèrent que cette pente, prise à t constant peut être caractéristique de l'ancrage des lignes de vortex, et peut être comparée à une variable de structure. La figure 21 montre que l'on ne peut pas trouver de relation entre cette pente et le nombre N_{ℓ} de $\downarrow\gamma'$ par unité de longueur.

Il semble donc que cette méthode de dépouillement des résultats soit difficile à appliquer valablement dans notre cas, à cause sans doute des approximations faites sur la pente $\frac{\delta H}{\delta B}$, du faible χ de nos échantillons et du petit nombre de cycles d'hystérésis à notre disposition.

CHAPITRE III - L'INDUCTION REMANENTE

Les résultats portés sur la fig. 17 et relatifs à l'aimantation en champ nul B_r , nous ont incités à faire un dépouillement plus simple que le précédent en utilisant essentiellement B_r (Ref. 30 - 31). En effet, nous avons systématiquement mesuré les valeurs de B_r en fonction de la température pour chaque échantillon. Nous avons donc une information plus importante que dans le cas précédent.

On sait que (Ref. 23 - 25 - 28), dans le modèle de l'état critique, la densité de courant critique J_c est reliée au gradient de champ par la relation :

$$J_c = \frac{10}{4\pi} \frac{\delta H}{\delta r} = \frac{10}{4\pi} \frac{\delta H(B)}{\delta B} \frac{\delta B}{\delta r} \quad (7)$$

Nous avons vu précédemment la difficulté que nous avons pour chiffrer valablement $\frac{\delta H(B)}{\delta B}$. C'est pourquoi nous poserons :

$$J_c = J_c^* \frac{\delta H(B)}{\delta B}$$

avec $J_c^* = \frac{10}{4\pi} \frac{\delta B}{\delta r} \quad (8)$

et nous nous contenterons d'étudier l'évolution de J_c^* . Si nous nous reportons à la figure 18 nous voyons que l'on peut écrire :

$$B_r = \frac{\int_0^R B dr}{\int_0^R dr} = \frac{4\pi}{10} J_c^* \frac{R}{2}$$

$$\text{Soit } Br = \frac{2\pi}{10} J_c^* R$$

ou encore :

$$J_c^* = \frac{10 Br}{2\pi R} \quad (9)$$

J_c^* en A x cm⁻²

Br en gauss

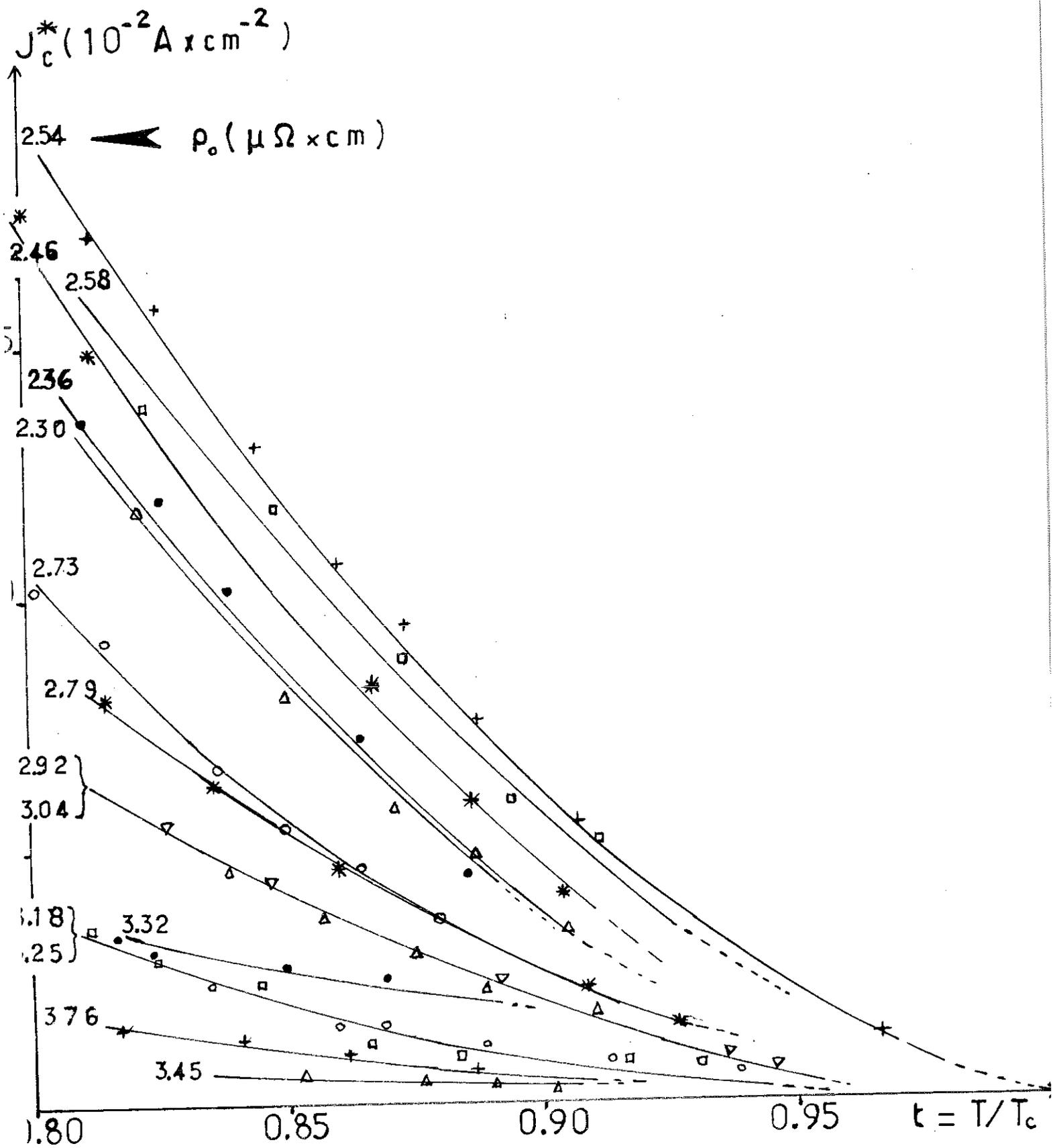
R en cm.

Pour être rigoureux au regard des dimensions il faut remarquer que c'est J_c^*/μ_0 qui s'exprime en A x cm⁻². La valeur de μ_0 étant 1, le même nombre exprime J_c^* et J_c^*/μ_0 .

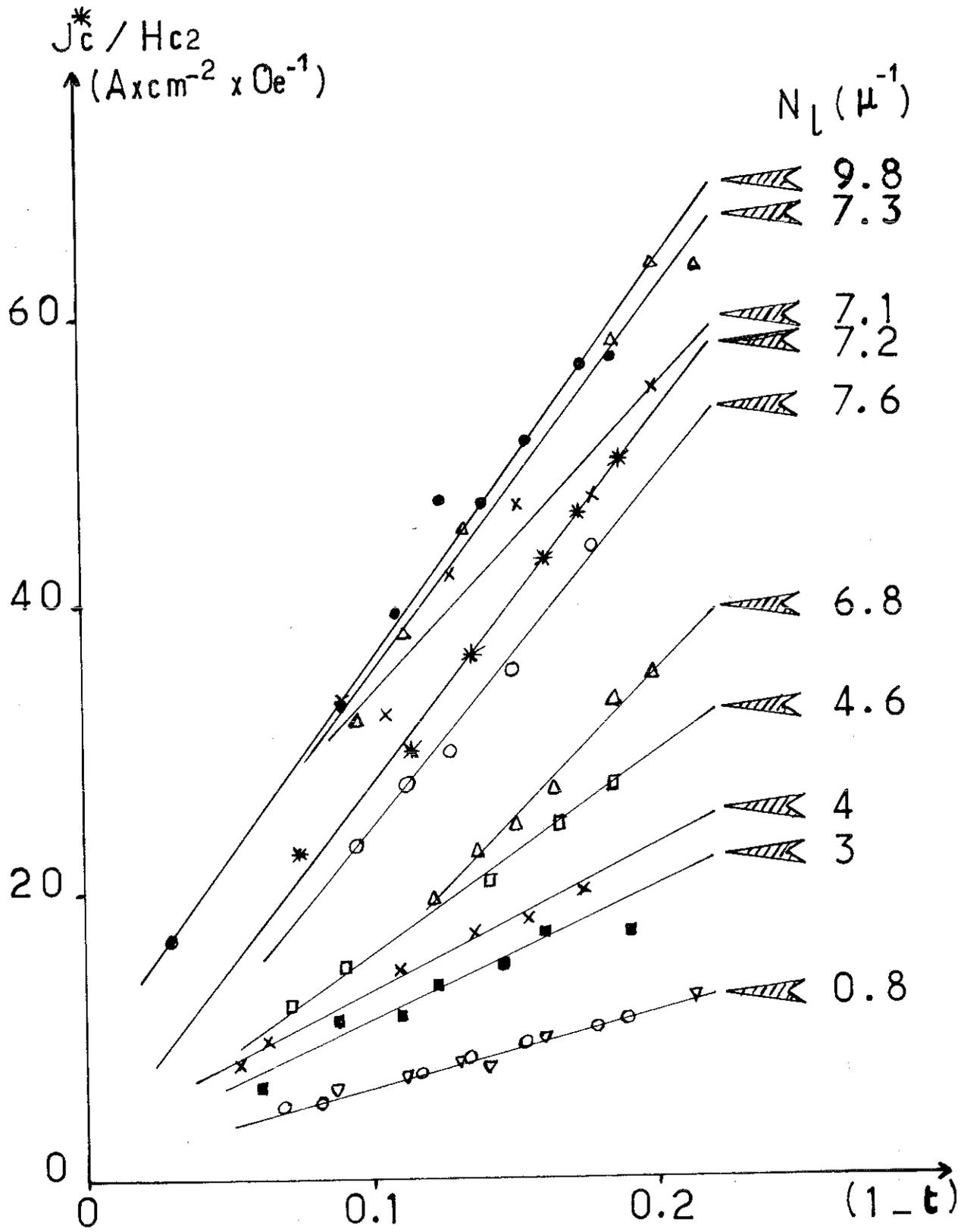
Pour chaque échantillon nous avons évalué J_c^* à chaque température. La figure 22 montre l'évolution de J_c^* en fonction de $t = T/T_c$. On remarque que J_c^* n'est pas, pour un échantillon donné, linéaire en t . De plus, nous ne tenons pas compte ici de l'évolution de χ entre chaque échantillon. Afin d'éliminer ce facteur et pour pouvoir mieux comparer les échantillons entre eux, nous avons divisé J_c^* par H_{c2} . Le résultat se trouve sur la figure 23. On remarque la bonne linéarité de J_c^*/H_{c2} en fonction de $(1-t)$. Remarquons que la courbure relevée sur la figure 22 est en bon accord avec un calcul de GOODMAN (Ref. 29) montrant que près de T_c , H_{c2} varie comme $(1-t)^{1,5}$.

Sur la fig. 23, nous avons aussi porté les valeurs de N_ℓ (nombre de γ' par unité de longueur). Il apparaît nettement que la pente des droites J_c^*/H_{c2} en fonction de $(1-t)$ croît avec N_ℓ . Nous avons porté cette pente $\frac{\Delta(J_c^*/H_{c2})}{\Delta(1-t)}$

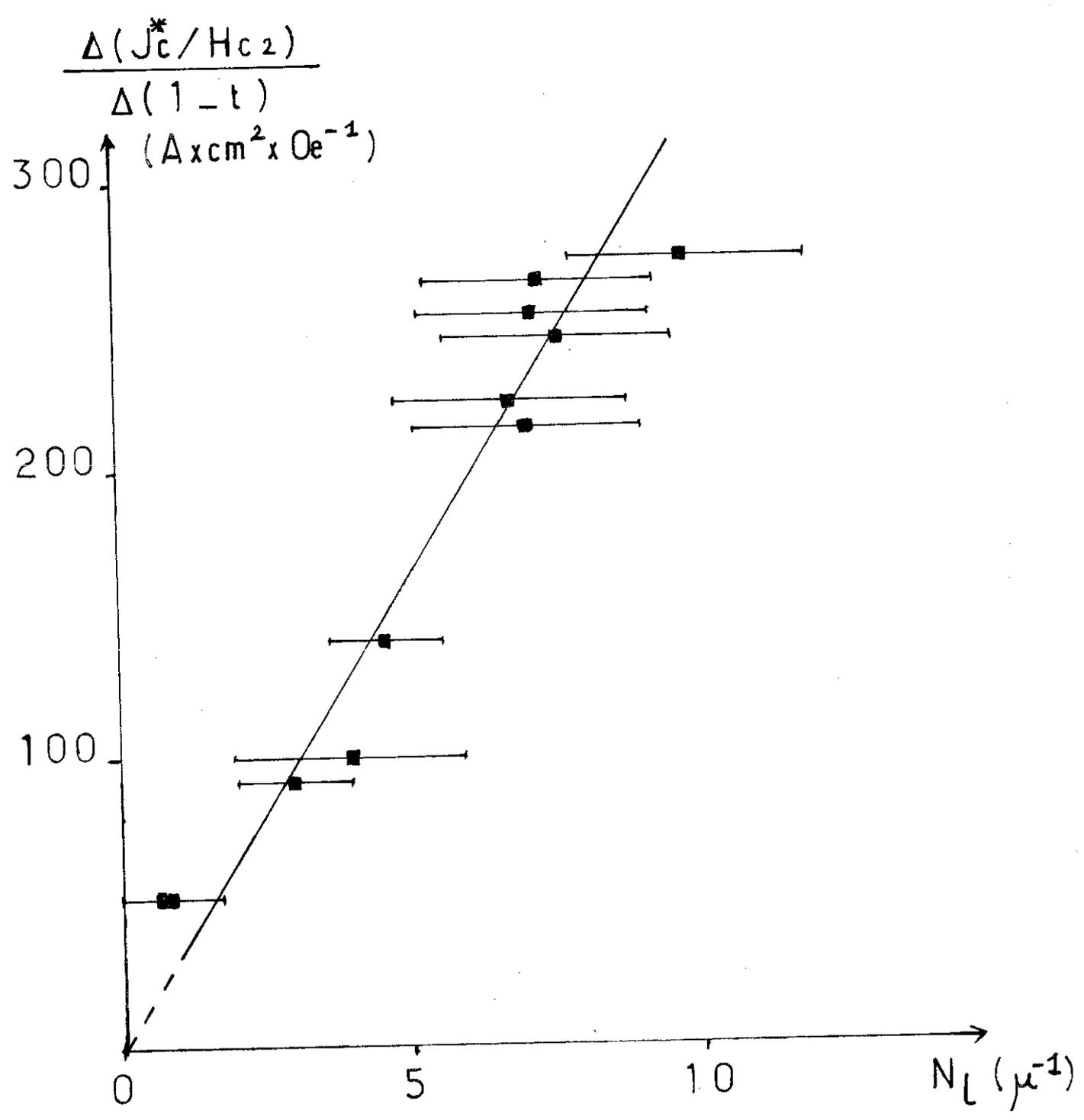
en fonction de N_ℓ sur la figure 24. Il est net que la variation de cette pente peut être considérée comme linéaire en N_ℓ .



Al Ag 10% at. Fig. 22



Al Ag 10 % at. Fig.23



Al Ag 10 % at. Fig .24

Nous avons porté sur la figure 24 tous les résultats correspondants aux échantillons contenant des $\downarrow \gamma'$ et qui sont sûrement de type II ($\rho_0 > 2,47 \mu\Omega \times \text{cm}$). Mais nous avons aussi porté ceux qui correspondent aux échantillons placés à la limite entre le type II et le type I jusqu'à des valeurs de la résistivité résiduelle de $2,30 \mu\Omega \times \text{cm}$. Ils ne se distinguent pas des autres échantillons. Le début de la diminution de B_r remarquée sur la fig. 17 peut donc très bien s'expliquer uniquement par la diminution de N_ℓ dont nous avons parlé dans la première partie. Bien entendu, plus loin vers les ρ_0 décroissants les échantillons sont nettement de type I.

Finalement, nous pouvons proposer pour relier l'ancrage des vortex à la structure métallurgique des alliages Al-Ag, la relation suivante :

$$\boxed{\frac{\Delta (J_c^* / H_{c2})}{\Delta (1-t)} = A \cdot N_\ell} \quad (10)$$

J_c^* en $\text{A} \times \text{cm}^{-2}$

H_{c2} en Oe

N_ℓ en μ^{-1}

$A \neq 33$ avec les unités choisies.

La méthode de dépouillement en J_c^* bien que très simpliste, présente l'intérêt d'aboutir à une relation simple entre les propriétés supraconductrices (ancrage des lignes de vortex) et les inhomogénéités de structure des alliages Al-Ag. Nous utiliserons la relation (10) pour la discussion qui va suivre.

CHAPITRE IV - DISCUSSION

Il nous faut essayer d'expliquer maintenant pourquoi les Z.G.P. donnent aux alliages Al-Ag un comportement réversible, d'une part, et les précipités γ' provoquent leur irréversibilité, d'autre part.

A - LE ROLE DES Z.G.P.

L'argent n'est pas un métal supraconducteur. Les Z.G.P. sont des zones riches en Ag et devraient donc être des zones à l'état normal. Or, nous avons montré dans la première partie de ce mémoire que les diamètres des Z.G.P. évoluent, pour l'alliage 10 % et, de 40 à 150 Å, leur distance moyenne étant du même ordre de grandeur (Ref. 34). Le rayon moyen d'une ligne de vortex est de l'ordre de la longueur de cohérence ξ . Les champs critiques H_{c2} de nos échantillons sont inférieurs à 40 Oe (fig. 13). Il s'en suit que les longueurs de cohérence de ces échantillons sont supérieures à :

$$\xi = \sqrt{\frac{\Phi_0}{\mu_0 H_{c2}}} = 2\ 200 \text{ \AA}$$

ξ est donc toujours plus grande que les Z.G.P. et que les distances qui les séparent. Il y aura donc un effet de proximité très net. (Th. Nz. p. 26 et Ref. 32).

Les échantillons ne comptant que des Z.G.P. vont se comporter comme un supraconducteur homogène. En effet, ils ont des propriétés d'équilibre (H_c , H_{c2} , H_{c3}) qui peuvent se déduire des équations de GINSBURG et LANDAU valables pour les supraconducteurs homogènes (Th. Nz.p.32 et 42). Cela explique qu'il n'y ait pas d'ancrage des lignes de vortex, aucune région n'étant énergétiquement plus favorable qu'une autre à leur localisation (Ref. 35).

Il serait trop hâtif de conclure que seule la taille et la distance moyenne des Z. G. P. est en cause et que des défauts beaucoup plus petits que ξ ne doivent pas ancrer les lignes de vortex. En effet l'homogénéité de la répartition de ces défauts peut intervenir. ULLMAIER et al (Ref. 33) produisent par irradiation électronique à basse température (3 MeV) des lacunes et des interstitiels dans du niobium. Comme c'est le cas pour nos échantillons il y a un grand nombre de défauts à l'intérieur d'une ligne de vortex (20 à 500 défauts dans un volume égal à ξ^3). Pourtant l'irradiation entraîne une assez forte irréversibilité des cycles d'aimantation. Les auteurs concluent que l'ancrage des lignes de vortex n'est pas dû à une interaction directe entre les lignes de flux et les défauts individuels mais plutôt à des fluctuations dans la densité des défauts.

Les Z.G.P. sont réparties d'une manière homogène (photos 11,12,18).

Il semble donc que si les Z.G.P. ne bloquent pas les lignes de vortex, c'est à la fois parce qu'elles sont de faible taille et assez rapprochées au regard de ξ et parce qu'elles sont réparties d'une manière homogène.

B - LE ROLE DES PRECIPITES DE LA PHASE γ'

Pour des raisons analogues à celles que nous venons d'évoquer pour les Z.G.P., les précipités de la phase γ' qui à l'état massif serait sûrement normale, vont subir un vigoureux effet de proximité. Leurs épaisseurs sont de l'ordre de 100 à 150 Å (photo n° 22), c'est-à-dire très proches du diamètre moyen des Z.G.P. leur distance moyenne varie de 10^4 à 10^3 Å, elle est de l'ordre de ξ . On ne sera plus tout à fait dans le cas de la limite de Cooper (Th. Nz. p. 14). Il n'y a donc aucune raison pour que les γ' pris individuellement soient des centres d'ancrage pour les lignes de vortex. Il nous faut chercher les raisons de cet ancrage dans l'inhomogénéité de leur répartition.

Si une ligne de vortex traverse un grand nombre de $\downarrow\gamma'$ l'énergie de condensation des paires de Cooper récupérée sera plus grande que si elle ne traverse que peu ou pas de $\downarrow\gamma'$: il y aura donc tendance à l'ancrage des lignes de vortex sur les zones à fortes densités de $\downarrow\gamma'$.

Si l'on observe attentivement les photographies de microscopie électronique (photo 22), on se rend compte que les $\downarrow\gamma'$ sont groupés par colonies. Sur une coupe d'orientation (110) si l'on compte les $\downarrow\gamma'$ perpendiculaires à une direction donnée (annexe 1), on peut en rencontrer une dizaine sur une longueur de 2 000 à 10 000 Å puis en rencontrer seulement 1 ou 2 sur une longueur du même ordre de grandeur. Ce phénomène se rencontre d'une manière très générale.

Les résultats expérimentaux montrent que $\frac{\Delta J_c^* / H_{c2}}{\Delta(1-t)}$ est proportionnel à N_ℓ . Comment l'expliquer ?

Nous venons de proposer comme centre d'ancrage une zone à forte densité de $\downarrow\gamma'$. L'efficacité de ce centre d'ancrage sera d'autant plus grande que le gain en énergie de condensation par unité de volume du centre d'ancrage sera plus grand (Ref. 28). Or, ce gain d'énergie dépend de la quantité de phase γ' par centre d'ancrage. Nous supposons qu'au cours d'un revenu isotherme, que l'on soit en régime de germination ou de coalescence, les zones de plus forte densité en phase γ' ne se multiplient pas. On peut alors prévoir qu'au sein même d'une zone à forte densité de $\downarrow\gamma'$ la densité en volume de phase γ' sera proportionnelle au N_ℓ moyen de l'échantillon. L'efficacité des centres d'ancrage sera donc proportionnelle à N_ℓ . Ce n'est donc pas le nombre de centres d'ancrage qui varie mais leur efficacité.

Pour expliquer l'irréversibilité due aux $\downarrow\gamma'$ il faut tenir compte de :

- l'inhomogénéité de la distribution de $\downarrow\gamma'$; cette hypothèse

est à rapprocher de celle de ULLMAIER et al (Ref. 33) et de celle de SCHUMACHER (Ref. 36) pour des alliages Pb In contenant de faibles concentrations de billes de verre.

- la concentration linéaire moyenne de $\downarrow\gamma'$ le long d'une ligne de vortex.

En ce qui concerne la proportionnalité de J_c^x avec N_l , elle est à rapprocher de la dépendance linéaire trouvée par certains auteurs entre la force d'ancrage ou l'aimantation rémanente et le nombre d'interfaces par unité de longueur N_l (Ref. 37 - 38 - 39 - 40). L'originalité de la relation que nous proposons est qu'elle est relative à des précipités.

Pour conclure, nous comparerons les figures 11 et 24. Les lois de variation de la microdureté et du blocage des lignes de vortex par les $\downarrow\gamma'$ paraissent analogues. Le maximum de microdureté (durcissement structural maximal) et le maximum d'irréversibilité sont sensiblement confondus (fig. 4 et fig. 24). Malheureusement dans l'alliage 10 % at la transition type II \rightarrow type I se situe au moment même où le durcissement structural est maximal. Il serait donc intéressant de faire des mesures magnétiques sur un alliage de 12 à 14 % at afin que le maximum de durcissement structural se situe dans la zone où l'échantillon est de type II.

TECHNIQUES D'OBSERVATIONS METALLURGIQUES

Nous décrirons d'abord les techniques de préparation de nos échantillons en vue de leur observation au microscope métallographique et au microscope électronique. Ensuite nous préciserons comment nous avons dépouillé les clichés pris au microscope électronique.

I - PREPARATION DES SURFACES D'ECHANTILLONS

A) MICROSCOPIE METALLOGRAPHIQUE

Les échantillons d'alliage Al-Ag sont tout d'abord polis mécaniquement sur du papier au carbure de silicium puis sur du feutre enduit de pâte diamant de 8 puis de 3 μ . La révélation de la structure (mise en évidence des joints de grains ou de la phase γ cellulaire), se fait par oxydation anodique.

Le bain électrolytique est de l'acide fluoborique à 3,5 % de concentration. Tension à vide : 30 V. Courant : inférieur à 1 A/cm². Durée d'oxydation : 80 s. La surface ainsi préparée permet à la fois l'observation au microscope métallographique et la mesure de microdureté.

B) MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

L'observation au microscope électronique réclame des échantillons bien polis et d'épaisseur 1000 à 2000 Å. Les

échantillons d'Al-Ag sont d'abord amincis et polis mécaniquement sur les 2 faces (pâte diamant 3 μ). Le polissage électrolytique mis au point par Geneste utilise la méthode de la fenêtre. Cette méthode évite de mettre l'interface liquide-air au contact de l'alliage ce qui entraînerait un trop grand courant et une rupture de l'échantillon à la surface libre du liquide. D'autre part, elle permet de diminuer les effets de bords. L'échantillon (fig. 1 a) est partiellement recouvert d'un vernis utilisé en galvanoplastie (vernis Laconit). Il ne reste qu'une fenêtre entièrement située dans le liquide.

Le bain électrolytique se fait en plusieurs temps :

- mélange de 450 cm³ d'alcool méthylique et de 150 g de nitrate de cuivre.
- filtrage.
- mélange de 30 cm³ de la solution filtrée et de 1 cm³ d'acide nitrique.

Tension à vide : 76 V. Courant 12 mA.

Après quelques dizaines de minutes d'attaque, de petits morceaux d'échantillon se détachent (fig. 1 b). Quand l'attaque est terminée, ils sont rincés à l'alcool méthylique, séchés et observés à la loupe binoculaire (grossissement X 80). Avec un peu d'habitude on peut ainsi déterminer quels sont ceux qui sont à la fois assez minces et bien polis pour être disposés sur le porte-objet en vue d'une observation.

Le système Al-Ag évoluant d'une manière non négligeable dès que l'on dépasse de quelques degrés la température ambiante, il est nécessaire d'assurer un refroidissement du bain électrolytique. A cet effet Geneste maintient le creuset de platine servant de cathode dans un mélange de carboglace et d'acétone assurant au bain une température de - 60°C environ (fig. 2).

La préparation des lames minces pour l'observation au microscope électronique devient de plus en plus délicate

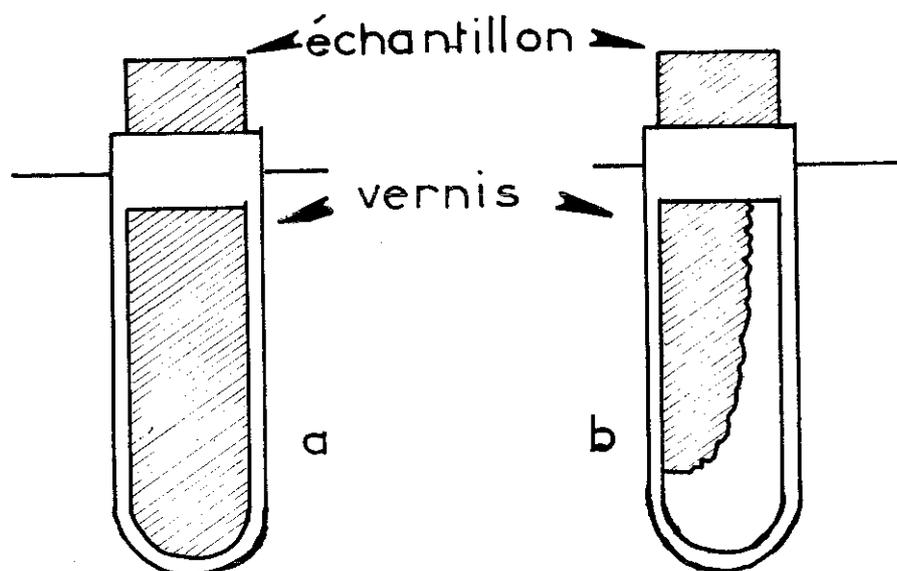


Fig.1 Méthode de la fenêtre

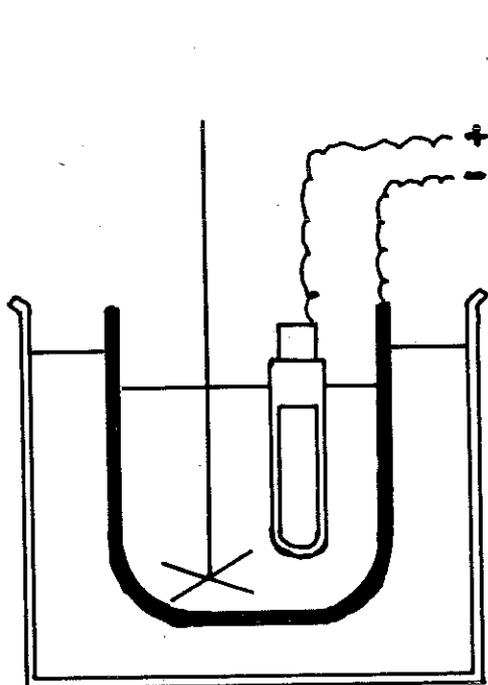


Fig.2 Polissage
électrolytique

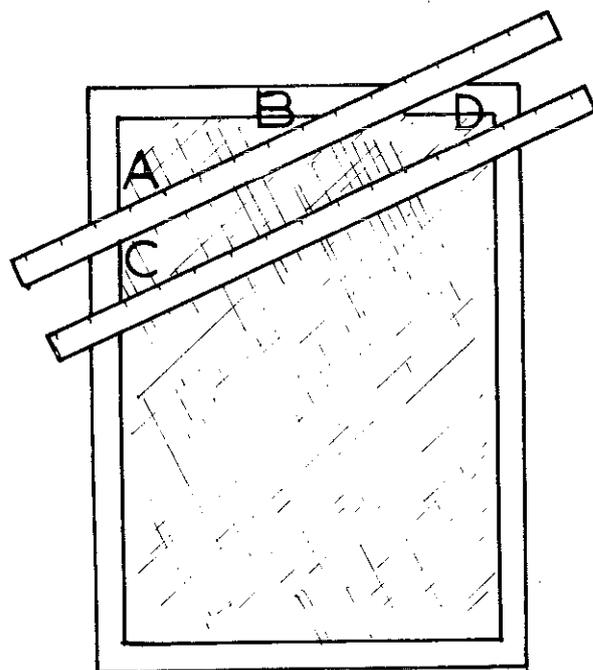


Fig.3 Comptage
des γ'

à mesure que la concentration en Ag augmente ainsi que les temps de revenu. Les échantillons sont en effet plus cassants et s'oxydent plus rapidement.

Lorsque les coupes minces sont bien réalisées, l'observation au microscope électronique du système Al-Ag ne présente pas de difficultés particulières. Nous avons vérifié qu'il n'y a pas d'évolution notable du système Al-Ag sous le faisceau électronique, même pendant une très longue observation.

II - EXPLOITATION DES PHOTOGRAPHIES DE MICROSCOPE ELECTRONIQUE

Nous avons pu à l'aide des photographies prises au microscope électronique, déterminer le diamètre moyen des Z.G.P. et l'écartement des plaquettes du γ' , cela pour chaque échantillon.

A) EVALUATION DU DIAMETRE MOYEN DES Z.G.P.

Pour chaque échantillon nous prenons une douzaine de clichés en plusieurs endroits de la coupe mince. Les photographies sont tirées sur papier, le grossissement final variant entre 57.000 et 276.000.

Le diamètre des Z.G.P. est mesuré sur la photographie à l'aide d'une règle graduée, transparente, au 1/10 mm, lue à la loupe. Sur chaque photographie on fait une dizaine de mesures pour des Z.G.P. prises au hasard.

Ces mesures sont rendues délicates par plusieurs facteurs :

- difficulté de délimitation des Z.G.P.
- contraste variant d'une photographie à l'autre
- faible pouvoir séparateur du microscope utilisé.

Malgré ces difficultés le diamètre de chaque Z.G.P. peut être mesuré à 10 % près pour des Z.G.P. d'environ 100 Å.

D'autre part dans un échantillon donné, la taille des Z.G.P. varie suivant les lieux de l'observation d'environ 30 %. Finalement pour évaluer le diamètre moyen des Z.G.P. correspondant à un échantillon, nous faisons la moyenne de tous les diamètres relevés sur tous les clichés correspondant à cet échantillon.

B) EVALUATION DE LA DISTANCE MOYENNE ENTRE LES $\downarrow\gamma'$

Afin de pouvoir évaluer la distance moyenne entre les $\downarrow\gamma$, ou ce qui revient au même le nombre de $\downarrow\gamma'$ par unité de longueur (N_{ℓ}), nous avons essayé de prendre pour chaque échantillon des clichés qui puissent être dépouillés simplement.

Lorsque le plan (110) de la matrice cubique faces centrées est parallèle à la surface de la coupe mince et perpendiculaire au faisceau électronique, l'image obtenue est la figure classique de Widmanstätten (ref. 6). On voit 2 groupes d'aiguilles parallèles, qui sont les intersections des plans (111) et (11 $\bar{1}$) avec le plan (110), faisant entre eux un angle de 109°28' (photo 22 et fig. 4). Les autres $\downarrow\gamma$ n'étant pas perpendiculaires au plan (110), mais faisant avec lui un angle de 35°16', apparaissent sur les clichés comme des plaquettes peu nettes.

Méthode de dépouillement d'un cliché (110)

Sur la photographie prise au microscope électronique et présentant l'aspect de Widmanstätten nous plaçons une règle graduée perpendiculairement à la direction d'un groupe d'aiguilles (111 par exemple). Nous comptons le nombre d'intersections des aiguilles du groupe avec la règle et mesurons la longueur de la partie AB explorée (fig. 3). Nous déplaçons de 2 cm environ la règle et recommençons le comptage sur la longueur CD. Nous balayons ainsi toute la photographie. Nous obtenons un nombre a_1 d'intersections sur une longueur $\ell_1 = AB + CD + \dots$

Nous plaçons ensuite la règle graduée perpendiculairement à la direction du 2e groupe d'aiguilles (11 $\bar{1}$ par exemple) et nous balayons à nouveau la photographie. Nous obtenons un nombre a_2 d'intersections sur une longueur ℓ_2 .

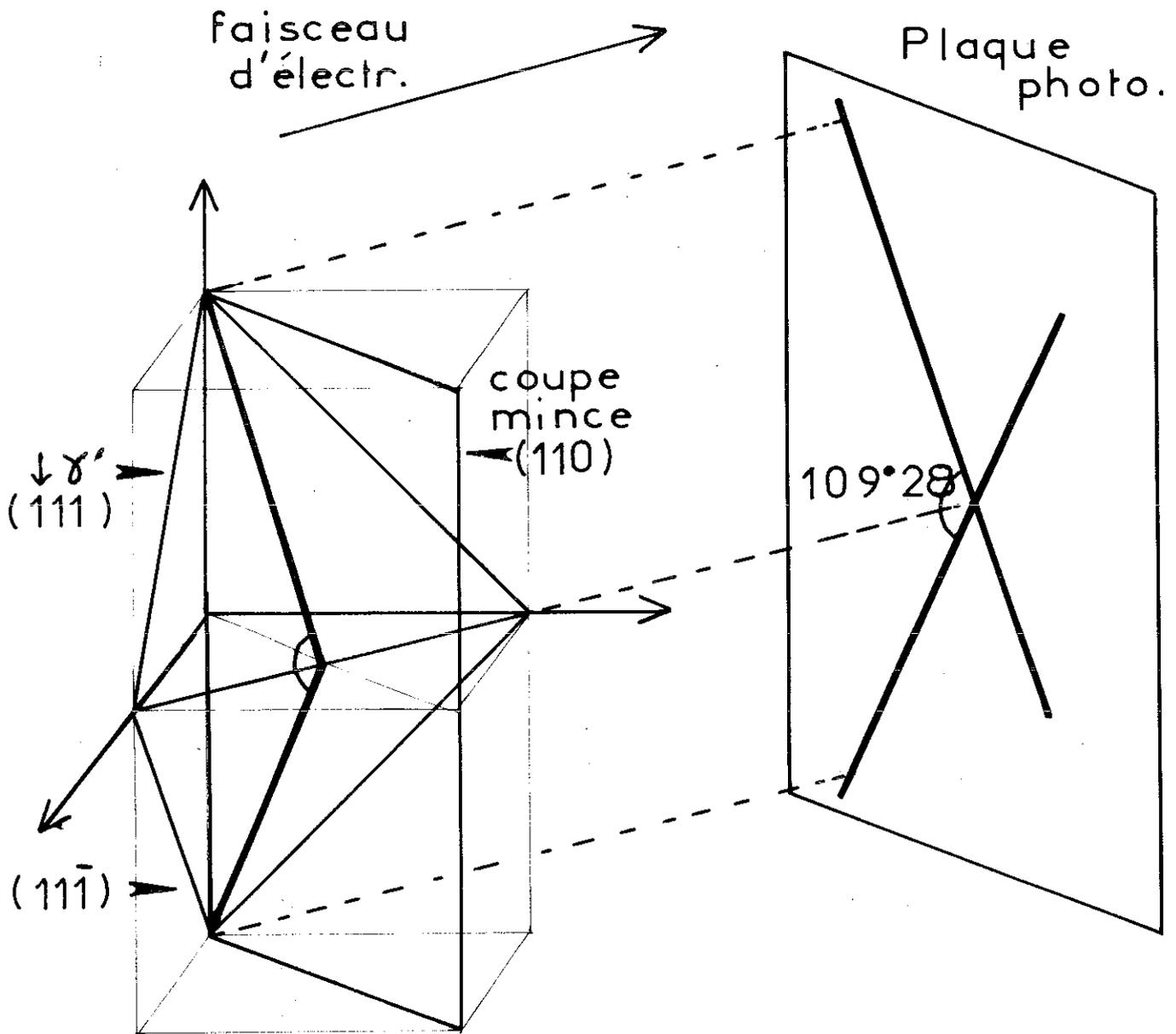


Fig.4 Formation d'une figure de Widmanstätten

Si nous supposons que la répartition moyenne des γ' est la même suivant les 4 paires de plans appartenant à la direction $\{111\}$, nous pouvons en déduire la valeur de N_1 pour le grain photographié :

$$N_1 = \frac{(a_1 + a_2) \times G}{l_1 + l_2}$$

G étant le grossissement final.

Nous faisons ce même comptage pour 5 à 10 photographies par échantillon (5 à 10 grains). Les valeurs de N_1 varient de 20 à 30 %. Nous prenons pour valeur du N_1 moyen, la valeur moyenne des N_1 trouvés pour chaque photographie.

Ces mesures sont rendues délicates par la difficulté de trouver - surtout pour les alliages très concentrés en Ag - de bonnes figures de Widmanstätten. Malgré tout, le dépouillement ayant toujours été fait rigoureusement de la même façon, l'évolution de N_1 suivant les échantillons est évaluée avec une bonne fiabilité même si les valeurs absolues sont données à 30 % près.

TECHNIQUES DES MESURES MAGNETIQUES

La température critique de l'aluminium est 1.180 K mais comme nous l'avons signalé dans la IIe partie de ce mémoire, l'adjonction d'Ag abaisse cette température critique.

Le cryostat construit par BONNIN (Ref. 29 et fig. 5) comporte un double bain d'hélium 4 :

- le bain extérieur qui reste à 4,2 K
- le bain intérieur qui peut atteindre la température minimale de 0.75 K en pompant vigoureusement à l'aide d'un Booster relié en série à une pompe primaire.

Nous mesurons la température en évaluant la contribution d'un sel paramagnétique (alun de fer et d'ammonium) à l'inductance mutuelle de deux enroulements placés dans le bain à 4.2 K. Un étalonnage de cette inductance mutuelle, à partir de la température donnée par la tension de vapeur d'He 4 est, bien entendu, nécessaire.

Nous plaçons nos échantillons dans un champ magnétique constant produit par une bobine située dans l'enceinte d'azote liquide. Pour mesurer leur aimantation nous disposons dans le bain à 4.2 K d'une bobine ayant 2 enroulements montés en série-opposition. L'échantillon passe du centre d'un enroulement au centre de l'autre enroulement (méthode d'extraction). La variation de flux produite par l'extraction est mesurée par un galvanomètre balistique. Elle est proportionnelle à l'aimantation M de l'échantillon.

- Pour chaque échantillon nous réalisons la suite de manipulations suivantes :
 - stabilisation de la température
 - courbe de première aimantation
 - relevé de l'aimantation rémanente après avoir rendu l'échantillon normal sous champ.

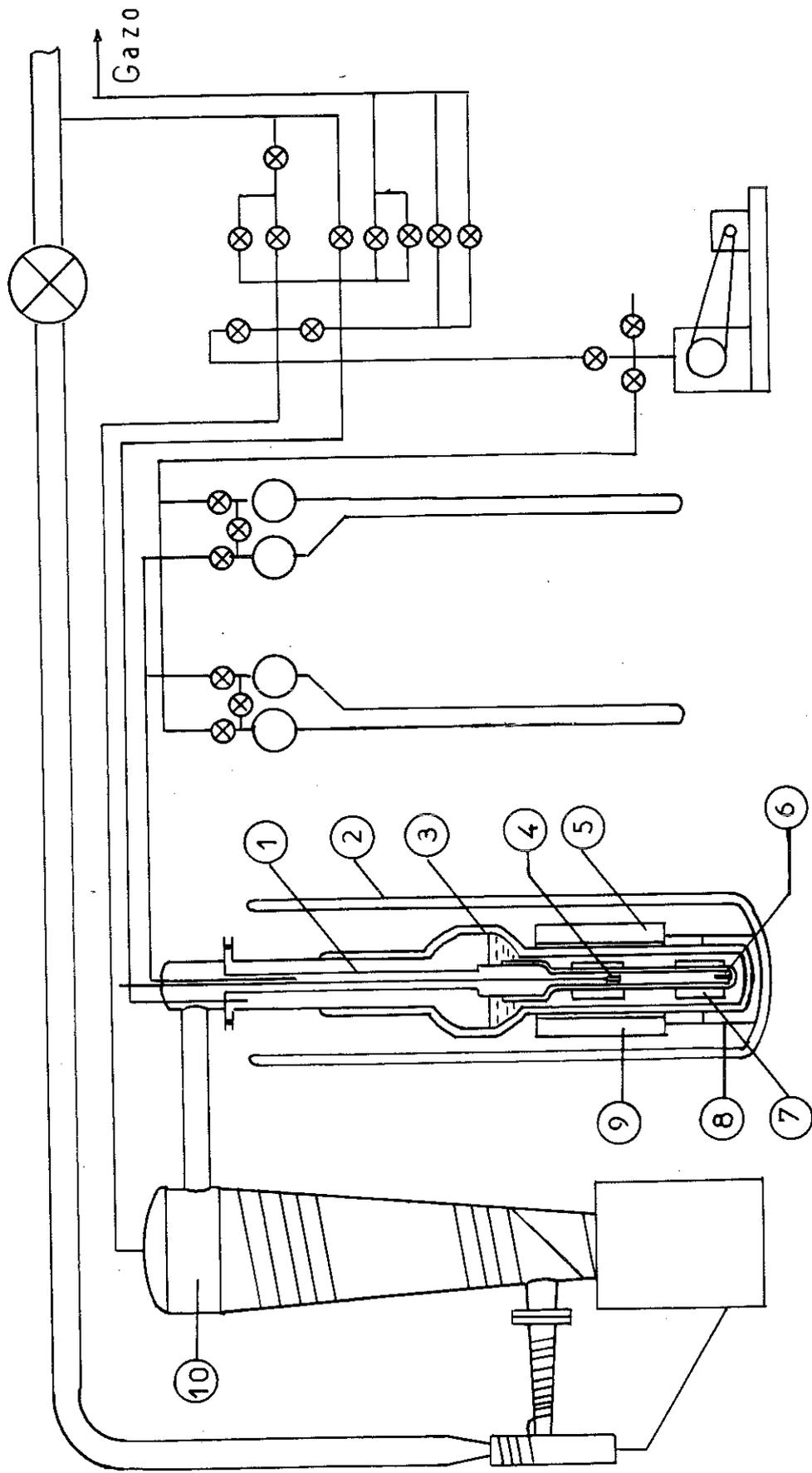


Fig. 5

- ① Double bain
- ② Enceinte azote
- ③ Vase hélium
- ④ Porte-échantillon
- ⑤ Bobine de champ
- ⑥ Sel paramagnétique
- ⑦ Bobine mutuelle
- ⑧ Support de bobine
- ⑨ Bobine de mesure
- ⑩ Booster

- parfois relevé d'un cycle d'hystérésis complet.

Nous sortons ensuite l'échantillon du bain d'He (bain intérieur) pour le rendre normal en champ nul et nous recommençons la séquence précédente à une autre température.

R E F E R E N C E S

- 1 - GUINIER A. Solid State Physics, Vol. 9 p. 294, Academic Press 1959
- 2 - GUINIER A. J. phys. Rad. 8 (1942) 124
- 3 - NICHOLSON R.B., NUTTING J. Acta. Met. 9 (1961) 332
- 4 - KELLY A., NICHOLSON R.B. Progress in Materials Science Vol. 10 p. 151 Pergamon Press Oxford 1963
- 5 - AARONSON H.I., CLARK J.B. Acta. Met. 16 (1968) 845
- 6 - TAKAHASHI N. Les mémoires scientifiques de la Revue de Métallurgie 11 (1964) 805
- 7 - LAIRD C., AARONSON H.I. Acta. Met. 17 (1969) 505
- 8 - BEAL M.T., FRIEDEL J. Phys. Rev. 135 (1964) A 466
- 9 - GEROLD V. La structure des solutions solides métalliques Editions du C.N.R.S. n° 118 (1962) 220
- 10 - BAUR R., GEROLD V. Acta. Met. 10 (1962) 637
- 11 - CHALMERS B. Metallurgie Physique p. 198, Dunod Paris 1963
- 12 - PRICE R.J., KELLY A. Acta. Met. 10 (1962) 980
- 13 - PINEAU A., LECROISEY F., CASTAGNE J.L., SINDZINGRE M. Acta. Met. 17 (1969) 905
- 14 - GUYOT P. Phil. Mag. 24 (1971) 987
- 15 - DROWAN E. Symposium on internal stresses in Metals and Alloys. London Inst. Met. (1948) 451
- 16 - ABRIKOSOV A.A., Soviet Phys. J.E.T.P. 7 (1958) 505
- 17 - CRIBIER D., JACROT B., MADHAVRAO L., FARNOUX B. Physics Letters 9 (1964) 106
- 18 - TRAUBLE H., ESSMANN U. Phys. Stat. Sol. 25 (1968) 373
- 19 - De GENNES P.G. Supraconductivity of metals and alloys Benjamin 1966
- 20 - GORKOV L.P., J.E.T.P. 10 (1960) 998
- 21 - PHILLIPS N.E. Phys. Rev. 114 (1959) 676
- 22 - BAU C.P., Phys. Rev. Letters 8 (1962) 250
- 23 - KIM Y.B., HEMPSTEAD C.F., STRNAD A.R. Phys. Rev. Letters 9 (1962) 306
- 24 - FRIEDEL J., De GENNES P.G., MATRICON J. Appl. Phys. Letters 2 (1963) 119

25 - BEAN C.P. Rev. of Mod. Phys. 36 (1964) 31

26 - GUERIN J.Y. Thèse Grenoble 1970

27 - FREYHARDT H. Phil. Mag. 23 (1971) 345

28 - ANDERSON Phys. Rev. Letters 9 (1962) 309

29 - BONNIN B. Thèse Grenoble 1965

30 - BLANC J., GENESTE J., NEMOZ A., Colloque franco-russe
Bakouriani, Georgie, U.R.S.S. Fev. 68

31 - BLANC J., GOODMAN B.B., NEMOZ A., Proceedings of the Xth
International on Low Temp. Phys. Moscow 1966

32 - BLANC J., SOLECKI J.C., NEMOZ A., Rev. Phys. Appli.
(à paraître)

33 - ULLMAIER H., PAPASTAIKOU DIS K., TAKACS S., SCHILLING W.
Phys. Stat. Sol. 41 (1970) 671

34 - SOLECKI J.C. Thèse 3e Cycle Grenoble 1970

35 - BETHOUX O. Communication au Colloque d'Aussois (France)
1971 (à paraître au Journal de Physique)

36 - SCHUMACHER G. Thèse docteur-ingénieur, Grenoble 1972

37 - CAMPBELL A.M., EWETTS J.E., DEW-HUGUES D. Phil. Mag.
18 (1968) 313

38 - LEVY S.A., KIM Y.B., KRAFT R.W., J. Appl. Phys. 37 (1966)
3659

39 - GIFKINS J., MALSEE D.C., RACHINGER W.A. Scripta Metal. 2
(1968) 141

40 - MCGINLEY P.L., NETHERCOTT R.B., RACHINGER W.A., Scripta
Metal. 3 (1969) 197