

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE
ET L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE GRENOBLE

pour obtenir le titre

de DOCTEUR-INGENIEUR

par

Jacques BOJOLY

Ingénieur E.N.S.E.G.P.G.

SUJET

Etude d'un "effet de pic" dans
des alliages supraconducteurs

Pb-In-Na-

Soutenue le 24 Juin 1976 devant la commission d'Examen

A. LACAZE

Président

P. GUYOT

M. RENARD

Y.A. ROCHER

O. BETHOUX

Examineurs

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

Monsieur Gabriel CAU : Président
Monsieur Pierre JULIEN : Vice-président

MEMBRES DU CORPS ENSEIGNANT DE L'U.S.M.G.

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
ARNAUD Paul	Chimie
AUBERT Guy	Physique
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
BEAUDOING André	Clinique de Pédiatrie et Puériculture
BERNARD Alain	Mathématiques Pures
Mme BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM. BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Pures
BEZES Henri	Pathologie chirurgicale
BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
BONNET Georges	Electrotechnique
BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
BONNET-EYMARD Joseph	Clinique gastro-entérologique
Mme BONNIER Marie-Jeanne	Chimie Générale
BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques appliquées
BRAVARD Yves	Géographie
CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologique
CALAS François	Anatomie
CARLIER Georges	Biologie végétale
CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
CAUQUIS Georges	Chimie organique
CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
CHARACHON Robert	Clinique Oto-Rhino-Laryngologique
CHATEAU Robert	Clinique de Neurologie
CHIBON Pierre	Biologie animale
COEUR André	Pharmacie chimique et chimie analytique
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
DELORMAS Pierre	Pneumo-Phtisiologie
DEPORTES Charles	Chimie minérale
DESRE Pierre	Métallurgie

MM. DESSAUX Georges	Physiologie animale
DODU Jacques	Mécanique appliquée (IUT A)
DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
DREYFUS Bernard	Thermodynamique
DUCROS Pierre	Cristallographie
DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphiligraphie
GAGNAIRE Didier	Chimie physique
GALLISSOT François	Mathématiques Pures
GALVANI Octave	Mathématiques Pures
GASTINEL Noël	Analyse numérique
GAVEND Michel	Pharmacologie
GEINDRE Michel	Electroradiologie
GERBER Robert	Mathématiques Pures
GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
GIRAUD Pierre	Géologie
JANIN Bernard	Géographie
KAHANE André	Physique générale
KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
LACAZE Albert	Thermodynamique
LACHARME Jean	Biologie végétale
Mme LAJZEROWICZ Janine	Physique
M. LAJZEROWICZ Joseph	Physique
LATREILLE René	Chirurgie générale
LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
LEDRU Jean	Clinique médicale B
LLIBOUTRY Louis	Géophysique
LOISEAUX Pierre	Sciences Nucléaires
LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique nucléaire
LOUP Jean	Géographie
Mlle LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
BOUTET DE MONVEL Louis	Mathématiques Pures
MALINAS Yves	Clinique obstétricale
MARTIN-NOEL Pierre	Seméiologie médicale
MAZARE Yves	Clinique médicale A
MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
MICOUD Max	Clinique maladies infectieuses
MOURIQUAND Claude	Histologie
MOUSSA André	Chimie nucléaire
MULLER Jean-Michel	Thérapeutique (néphrologie)
NEEL Louis	Physique du Solide
OZENDA Paul	Botanique
PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
PEBAY-PEVIOULA Jean-Claude	Physique
RASSAT André	Chimie systématique
RENARD Michel	Thermodynamique
RINALDI Renaud	Physique
DE ROUGEMONT Jacques	Neuro-chirurgie
SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
SENGEL Philippe	Zoologie
SIBILLE Robert	Construction mécanique (IUT A)
SOUTIF Michel	Physique générale
TANCHE Maurice	Physiologie

MM. TRAYNARD Philippe	Chimie générale
VAILLANT François	Zoologie
VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme VERAÏN Alice	Pharmacie galénique
MM. VERAÏN André	Physique
VEYRET Paul	Géographie
VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
YOCCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM. CLARK Gilbert	Spectrométrie Physique
CRABBE Pierre	CERMO
ENGLMAN Robert	Spectrométrie Physique
HOLTZBERG Frédéric	Basses Températures
ROST Ernest	Sciences Nucléaires

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mlle AGNIUS-DELOD Claudine	Physique pharmaceutique
ALARY Josette	Chimie analytique
MM. AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
BELORIZKY Elie	Physique
BENZAKEN Claude	Mathématiques Appliquées
BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
BILLET Jean	Géographie
BOUCHET Yves	Anatomie
BRUGEL Lucien	Energétique (IUT A)
BUISSON René	Physique (IUT A)
CONTE René	Physique (IUT A)
DEPASSEL Roger	Mécanique des fluides
GAUTHIER Yves	Sciences Biologiques
GAUTRON René	Chimie
GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
GLENAT René	Chimie organique
GROULADE Joseph	Biochimie médicale
HACQUES Gérard	Calcul numérique
HOLLARD Daniel	Hématologie
HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine Préventive
IDELMAN Simon	Physiologie animale
JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
JULLIEN Pierre	Mathématiques appliquées
Mme KAHANE Josette	Physique
MM. KUHN Gérard	Physique (IUT A)
LE ROY Philippe	Mécanique (IUT A)
LUU DUC Cuong	Chimie organique
MAYNARD Roger	Physique du solide
PELMONT Jean	Biochimie
PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et Minéralogie
PFISTER Jean-Claude	Physique du Solide
Mlle PIERY Yvette	Physiologie animale
MM. RAYNAUD Hervé	M.I.A.G.
REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
REVOL Michel	Urologie
REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
RICHARD Lucien	Biologie végétale
Mme RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire

MM. ROBERT André	Chimie papetière
SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme SOTTIF Jeanne	Physique générale
MM. STREGLITZ Paul	Anesthésiologie
VIALON Pierre	Géologie
VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM. AMBLARD Pierre	Dermatologie
ARMAND Gilbert	Géographie
ARMAND Yves	Chimie (IUT A)
BACHELOT Yven	Endocrinologie
BARGE Michel	Neuro chirurgie
BARJOLLE Michel	MIAG
BEGUIN Claude	Chimie organique
Mme BERIEL Hélène	Pharmacodynamie
MM. BOST Michel	Pédiatrie
BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adultes
Mme BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM. BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
BUTEL Jean	Orthopédie
CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
CHARDON Michel	Géographie
CHERADAME Hervé	Chimie papetière
CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
COLOMB Maurice	Biochimie médicale
CONTAMIN Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire
CORDONNIER Daniel	Néphrologie
COULOMB Max	Radiologie
CROUZET Guy	Radiologie
CYROT Michel	Physique du Solide
DELOBEL Claude	M.I.A.G.
DENIS Bernard	Cardiologie
DOUCE Roland	Physiologie végétale
DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM. FAURE Jacques	Médecine légale
FAURE Gilbert	Urologie
FONTAINE Jean-Marc	Mathématiques Pures
GAUTIER Robert	Chirurgie générale
GENSAC Pierre	Botanique
GIDON Maurice	Géologie
GROS Yves	Physique (IUT A)
GUITTON Jacques	Chimie
HICTER Pierre	Chimie
IVANES Marcel	Electricité
JALBERT Pierre	Histologie
KOLODIE Lucien	Hématologie
KRAKOWIAK Sacha	Mathématiques appliquées
LE NOC Pierre	Bactériologie-virologie
LEROY Philippe	IUT A
MACHE Régis	Physiologie végétale
MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventive
MALLION Jean-Michel	Médecine du travail

MM. MARECHAL Jean	Mécanique (IUT A)
MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
MICHOULIER Jean	Physique (IUT A)
Mme MINIER Colette	Physique (IUT A)
MM. NEGRE Robert	Mécanique (IUT A)
NEMOZ Alain	Thermodynamique
NOUGARET Marcel	Automatique (IUT A)
PARAMELLE Bernard	Pneumologie
PECCOUD François	Analyse (IUT B)
PEFFEN René	Métallurgie (IUT A)
PERRET Jean	Neurologie
PERRIER Guy	Géophysique - Glaciologie
PHILIP Xavier	Rhumatologie
RACHAIL Michel	Médecine interne
RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
RAMBAUD André	Hygiène et Hydrologie
RAMBAUD Pierre	Pédiatrie
Mme RENAUDET Jacqueline	Bactériologie
MM. ROBERT Jean-Bernard	Chimie-Physique
ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
SHOM Jean-Claude	Chimie générale
STOEHNER Pierre	Anatomie pathologique
VROUSOS Constantin	Radiologie

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

M. COLE Antony Sciences Nucléaires

CHARGE DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

M. JUNIEN-LAVILLAVROY Paul O.R.L.

Fait à SAINT MARTIN D'HERES, DECEMBRE 1975.

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

Président : M. Philippe TRAYNARD
Vice-Président : M. Pierre-Jean LAURENT

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. BENOIT Jean	Radioélectricité
BESSON Jean	Electrochimie
BLOCH Daniel	Physique du solide
BONNETAIN Lucien	Chimie Minérale
BONNIER Etienne	Electrochimie et Electrometallurgie
BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
BRISSENEAU Pierre	Physique du solide
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
COUMES André	Radioélectricité
DURAND Francis	Métallurgie
FELICI Noël	Electrostatique
FOULARD Claude	Automatique
LESPINARD Georges	Mécanique
MOREAU René	Mécanique
PARIAUD Jean-Charles	Chimie-Physique
PAUTHENET René	Physique du solide
PERRÉ René	Servomécanismes
POLOUJADOFF Michel	Electrotechnique
SILBER Robert	Mécanique des Fluides

PROFESSEUR ASSOCIE

M. ROUXEL Roland	Automatique
------------------	-------------

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BLIMAN Samuel	Electronique
BOUVARD Maurice	Génie Mécanique
COHEN Joseph	Electrotechnique
LACOURE Jean-Louis	Géophysique
LANCIA Roland	Electronique
ROBERT François	Analyse numérique
VEILLON Gérard	Informatique Fondamentale et appliquée
ZADWORYN François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES

MM. ANCEAU François	Mathématiques Appliquées
CHARTIER Germain	Electronique
GUYOT Pierre	Chimie Minérale
IVANES Marcel	Electrotechnique
JOUBERT Jean-Claude	Physique du solide
MORET Roger	Electrotechnique Nucléaire
PIERRARD Jean-Marie	Mécanique
SABONNADIÈRE Jean-Claude	Informatique Fondamentale et appliquée
Mme SAUCIER Gabrièle	Informatique Fondamentale et appliquée

MAITRE DE CONFERENCES ASSOCIE

M. LANDAU Ioan	Automatique
----------------	-------------

.../...

CHERCHEURS DU C.N.R.S. (Directeur et Maîtres de Recherche)

MM. FRUCHART Robert

Directeur de Recherche

ANSARA Ibrahim

Maître de Recherche

CARRE René

Maître de Recherche

DRIOLE Jean

Maître de Recherche

MATHIEU Jean-Claude

Maître de Recherche

MUNIER Jacques

Maître de Recherche

Nous rapportons ici l'ensemble des résultats d'une étude entreprise depuis 1972, au Centre de Recherches sur Les Très Basses Températures de Grenoble, sous la responsabilité de O. BETHOUX. R. TUR a effectué une partie des mesures d'aimantation ; J. GENESTE a assuré les observations métallographiques des échantillons. Qu'il me soit permis de les remercier ici à l'aboutissement de cette étude, particulièrement Monsieur BETHOUX qui m'a guidé avec patience et dévouement sur les chemins de la physique par de nombreuses et fructueuses discussions. Ce travail doit beaucoup à son enthousiasme et je voudrais lui témoigner ici ma profonde reconnaissance.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur le Professeur LACAZE, Directeur du Centre de Recherches sur Les Très Basses températures, pour l'honneur qu'il m'a fait de me recevoir dans son Laboratoire et de présider le Jury de cette thèse.

Je remercie vivement Messieurs Les Professeurs GUYOT et RENARD ainsi que Monsieur ROCHET, Ingénieur au Laboratoire de la C.G.E. à Marcoussis de s'être intéressés à ce travail et de me faire l'honneur de participer au Jury.

Je tiens à témoigner particulièrement ma reconnaissance à Messieurs HAEN, CHAUSSY et NEMOZ dont l'aide sur le plan expérimental m'a été fort utile. Je remercie également Monsieur FRUCHART qui a bien voulu assurer l'étude aux Rayons X des échantillons et Monsieur DAVER du Groupe des Transitions de Phases qui m'a permis le traitement informatique des résultats.

Que l'ensemble du personnel du laboratoire trouve ici le témoignage de ma sympathie pour l'accueil amical et l'aide efficace qui m'ont été apportés en toutes occasions.

Je remercie enfin Mademoiselle MAHIEUX qui a assuré la dactylographie de ce mémoire avec dévouement.

ETUDE D'UN "EFFET DE PIC" DANS DES ALLIAGES SUPRACONDUCTEURS

Pb-In-Na

I N T R O D U C T I O N

L'origine de la présente étude remonte à des mesures d'aimantation effectuées par G. SCHUMACHER (réf. 1 et 2) sur un alliage supraconducteur Pb-In équiatomique contenant 2,53 at% de Na. Ces mesures avaient révélé la présence d'un pic important de l'hystérésis magnétique en fonction du champ appliqué. En comparant les courbes d'aimantation obtenues à différentes températures, il était apparu qu'il existait un domaine de champ et de température où l'hystérésis magnétique et la force de piégeage des vortex qui lui est proportionnelle augmentaient avec la température. Dans ce domaine, l'alliage était donc autostable (réf. 3). Ce phénomène observé pour la première fois par Livingston sur des alliages Pb-Sn (réf. 4 et 5) est relativement rare et ne se rencontre pas sur les alliages commerciaux actuels qui sont au contraire très instables. Dans ce cas, l'instabilité intrinsèque des alliages est palliée en réduisant au maximum le diamètre des fils et en les enrobant de cuivre ou d'aluminium, au détriment de la section utile pour le transport du courant ou le renforcement mécanique des conducteurs.

Il est clair que rendre autostable des supraconducteurs à hautes performances, présenterait un intérêt technique certain, en particulier dans les machines cryogéniques tournantes où le supraconducteur est soumis à des fluctuations de champ et éventuellement de température. Pour atteindre cet objectif, il est nécessaire d'abord, de comprendre à quoi est dû l'effet de pic et l'autostabilité dans les alliages qui les présentent et de déterminer les paramètres structuraux qui les gouvernent.

C'est dans ce but qu'a été entreprise la présente étude.

Les effets de pic observés jusqu'ici dont on trouvera une revue dans la référence (6) peuvent être classés en deux catégories suivant leur origine (réf. 7). D'une part, les pics dits "réguliers" qui résultent d'une résonance géométrique entre la maille du réseau de vortex, fonction du champ appliqué, et la maille d'un réseau périodique de pièges à deux dimensions, d'autre part les pics "irréguliers" provenant d'autres origines.

Les pics réguliers ont été bien étudiés (réf. 8 et 9) et sont bien compris. Ils apparaissent dans les échantillons où l'on a volontairement introduit un réseau régulier de pièges et sont caractérisés par le fait que le champ magnétique auquel se produit le pic, ne dépend pas de la température de mesure. Ils ne peuvent donc conduire à l'autostabilité et ce mécanisme ne peut être invoqué pour expliquer le pic dans nos échantillons.

Les pics irréguliers sont nettement moins bien compris et de nombreux modèles et hypothèses ont été avancés pour tenter de les expliquer (réf. 6 et 7). En général, les résultats expérimentaux sont trop partiels et les structures des échantillons trop mal connues ou trop compliquées pour que ces modèles et hypothèses puissent être confirmés expérimentalement d'une manière convaincante. Pour tenter d'éviter cette situation expérimentale ambiguë, nous avons largement fait varier les paramètres physiques tels que le champ magnétique et la température. Par ailleurs, les mesures préliminaires avaient montré que l'hystérésis magnétique et la position du pic variaient en fonction du maintien des échantillons à la température ambiante et qu'en conséquence, le piégeage des vortex était lié à l'évolution structurale de précipités présents dans l'alliage (réf. 1). Nous avons donc utilisé ce traitement thermique pour faire varier la structure des pièges d'une manière sinon observable comme nous le verrons plus loin, du moins prévisible métallurgiquement, en espérant que la masse de résultats expérimentaux et d'observations structurales nous permettrait de tester utilement les hypothèses et modèles physiques proposés pour expliquer l'effet de pic irrégulier et l'autostabilité de ces alliages.

PREMIERE PARTIE

E X P E R I M E N T A T I O N

CHAPITRE I

LES ECHANTILLONS

L'étude de l'effet de pic a porté essentiellement sur deux alliages Pb-In-Na équiatomiques en Pb et In contenant respectivement :

- alliage A : 1,93 % atomique de Na (soit 0,28 % en poids)
- alliage B : 3,60 % atomique de Na (soit 0,531% en poids).

Le sodium a été dosé par spectrométrie d'absorption atomique sur les alliages après les traitements thermiques.

1 - PREPARATION

Les alliages ont été préparés par fusion des constituants (pureté 5N) dans un creuset de pyrex et coulés en lingotière de cuivre refroidie à l'eau. La fusion rapide par chauffage haute fréquence et la coulée ont été effectuées sous vide poussé (quelques 10^{-6} torr). Les lingots obtenus mesurent 10 mm de diamètre et 50 mm de long.

La partie centrale de chaque lingot (longueur 15 mm) a été ensuite laminée à 0,5 mm d'épaisseur et plusieurs lamelles ont été découpées dans la feuille obtenue après laminage, aux dimensions des échantillons pour mesures d'aimantation : 25 mm x 7,5 mm x 0,5 mm.

Les différentes mesures et observations métallographiques effectuées après traitements thermiques, ont été effectuées sur ces lamelles.

2 - TRAITEMENTS THERMIQUES

La plupart des lamelles (comprenant les échantillons de mesure) ont été ensuite homogénéisées par recuit en ampoules scellées sous vide, pendant une semaine, à 200°C, soit 20 à 25°C au dessous du point de fusion des alliages. Le recuit d'homogénéisation a été suivi d'une trempe en immergeant et brisant rapidement l'ampoule dans le toluène, à la température ambiante. Le toluène a été choisi comme liquide de trempe en raison de son inertie chimique vis-à-vis du sodium. Les lamelles sont ensuite extraites du toluène, rincées rapidement à l'acétone et immergées dans l'azote liquide pour bloquer leur évolution structurale. Il s'agit donc là d'une trempe étagée à 77 K. Nous désignerons par la suite cet "état" métallurgique par "état trempé".

Nous avons vérifié qu'à l'état trempé les différentes lamelles d'un même alliage ont bien des courbes d'aimantation identiques, et que le temps de conservation des lamelles dans l'azote liquide ne modifie pas leur aimantation.

Les revenus à la température ambiante ont été effectués dans l'alcool pour les temps courts (jusqu'à quelques heures) et dans un dessiccateur sous vide primaire pour les temps plus longs. Les températures de revenu ont été comprises entre 20 et 25°C. Les temps de revenu à la température ambiante indiqués plus loin sont des temps cumulés, les périodes de revenu étant séparées par des périodes de conservation dans l'azote liquide ou dans les cryostats pendant les mesures d'aimantation.

Nous avons constaté qu'après des recuits de l'alliage B, effectués dans l'huile à différentes températures, comprises entre 100 et 60°C, suivis de trempes au toluène et à l'azote liquide, les courbes d'aimantation des échantillons à l'état trempé n'étaient pas modifiées. Ce résultat montre qu'il n'y a pas de transformation structurale des alliages au-dessus de 60°C et que l'état trempé représente bien l'état haute température de l'alliage, c'est-à-dire, comme nous le verrons plus loin d'après les examens aux Rayons X et les évolutions des

propriétés supraconductrices d'équilibre, une solution solide Pb-In-Na.

Remarque :

Nous avons pu constater que les courbes d'aimantation obtenues à l'état supraconducteur, dépendent de la vitesse à laquelle l'échantillon est refroidi aux environs de 0°C, en particulier, le champ critique H_{c2} . Si, par exemple, on laisse refroidir l'échantillon depuis la température ambiante dans l'appareil de mesure d'aimantation qui met de l'ordre de 24 h pour se refroidir jusqu'à la température de l'azote liquide, le H_{c2} de l'échantillon à 4,2 K est plus faible (environ de 10%) que celui de l'échantillon introduit dans l'appareil déjà froid. Cet effet est dû à une transformation structurale de l'alliage au-dessous de 0°C. Le même effet a été obtenu avec un alliage Pb-In 50% atomique, montrant ainsi que la transformation n'est pas liée à la présence de sodium. Si on maintient pendant 3 jours un échantillon Pb-In 50% atomique à - 19°C, son H_{c2} à 4,2 est 30% plus faible que celui du même échantillon refroidi rapidement à partir de la température ambiante. Ce résultat indique que les limites des phases (Pb) (c.f.c.) et α_1 (tétragonale) suggérées par HANSEN (réf.10) sont incorrectes et que le domaine d'existence de la phase α_1 est plus large que prévu à la température ambiante et à basse température.

Nous avons pu constater aussi que la réversion de la phase α_1 en phase (Pb) à la température ambiante est rapide : il suffit de 2 heures de maintien à la température ambiante d'un échantillon Pb-In 50% atomique préalablement transformé à - 19°C, pour récupérer l'aimantation et le H_{c2} qu'il avait avant transformation.

Nous avons systématiquement évité cette transformation parasite en franchissant rapidement le domaine de température où elle existe et où sa cinétique est appréciable, c'est-à-dire les températures comprises entre 77 K et 300 K. Pour cela, nous avons toujours refroidi rapidement les échantillons en les immergeant dans l'azote liquide et en les introduisant froids dans les appareils de mesure d'aimantation qui ont été modifiés dans ce but. De même, nous avons toujours réchauffé

rapidement les échantillons entre 77 et 300 K en les transférant de l'azote liquide dans de l'alcool à la température ambiante.

3 - ETUDE STRUCTURALE

Les diagrammes d'équilibre ternaires Pb-In-Na ne sont pas connus. Parmi les diagrammes d'équilibre binaires qui permettraient d'éclairer le comportement du ternaire Pb-In-Na, seuls les diagrammes Pb-In et Pb-Na sont connus, le diagramme In-Na n'ayant pas été établi. Les alliages Pb-In forment à haute température (175°C) des solutions solides jusqu'à 70% atomique d'In environ. En particulier, l'alliage Pb-In 50% atomique est une solution solide ayant la structure cristalline c.f.c. du Pb à la température ambiante et au-dessus. Compte-tenu de la similitude des structures cristallines du Pb et de la solution solide Pb-In 50% atomique, on peut s'attendre à ce que la solubilité du sodium soit du même ordre de grandeur dans les deux cas. De même, on peut s'attendre à une certaine similitude dans les mécanismes de décomposition des solutions solides sursaturées en sodium, par précipitation d'une phase riche en Na.

Le sodium est soluble dans le Pb d'une manière appréciable : 7% atomique à 200°C d'après HANSEN, 11,3% atomique environ à la même température d'après PETERMAN (réf 11). Comme nous le verrons plus loin, les mesures de H_{c2} et la bonne réversibilité des courbes d'aimantation obtenues avec les échantillons trempés, montrent que la solubilité de Na dans Pb-In 50% atomique à 200°C (température du recuit d'homogénéisation) est supérieure à 4,8% atomique, concentration de notre alliage le plus concentré. La décomposition des solutions solides Pb-Na sursaturées a été étudiée en détail par PETERMAN (réf 11). Dans ces alliages, Na précipite sous forme de Pb_3Na de trois manières différentes selon les températures et les temps de revenu. La décomposition de la solution solide commence par une précipitation continue conduisant à la formation de précipités sphériques, cohérents avec la matrice, et distribués au hasard, qui grossissent par la suite en s'alignant selon les directions $\langle 100 \rangle$, puis coalescent pour les temps de revenu élevés

en donnant des bâtonnets orientés selon ces mêmes directions. Les précipités sont sphériques jusqu'à un rayon de $r = 300 \text{ \AA}$ environ, s'orientent pour $300 < r < 400 \text{ \AA}$ et coalescent en bâtonnets pour $r > 400 \text{ \AA}$ environ.

Parallèlement à cette précipitation continue, on observe une précipitation discontinue, cohérente, rapide, partant des joints de grains, avec une vitesse qui décroît rapidement avec le temps. Les précipités sont ici lamellaires et cohérents avec la matrice avec un espacement interlamellaire compris entre 120 et 2000 $\text{\AA}$.

Enfin, pour les temps de revenus longs, une nouvelle réaction discontinue, incohérente, démarre aux joints de grains et se développe à travers l'alliage déjà décomposé par les deux réactions précédentes. Cette réaction conduit à des précipités lamellaires, incohérents avec la matrice, les distances interlamellaires étant dix fois plus grandes et la vitesse de progression mille fois plus petite que pour la réaction discontinue cohérente.

Nous avons cherché à observer la précipitation dans nos alliages par métallographie optique et électronique.

Métallographie

Un polissage convenable pour l'observation métallographique des alliages est extrêmement difficile à réaliser. Les alliages sont trop mous pour pouvoir être polis mécaniquement ; les polissages chimiques et électrolytiques, efficaces pour le Pb et les alliages Pb-Na, ne sont pas utilisables ici en raison de la présence de l'indium qui a des propriétés chimiques très différentes de celles du Pb. Après de longs et nombreux essais nous avons pu mettre au point un polissage électrolytique au tampon très violent qui conduit à des résultats acceptables, au moins pour la métallographie optique.

Pour préparer des lames minces pour la microscopie électronique en transmission, nous avons utilisé la même solution de polissage électrolytique, associée à la technique des deux jets électrolytiques opposés permettant d'amincir la lame sur ses deux faces ; l'amincissement

est arrêté lorsqu'un trou apparaît dans la lame. Une cellule spéciale d'amincissement a été construite à cet effet, l'apparition du trou étant détectée optiquement avec une loupe binoculaire grâce à une fibre optique permettant un éclairage intense de la région du trou.

De très nombreuses observations en métallographie optique et électronique par transmission, réplique ou balayage, ont été effectuées en majorité sur l'alliage A. Les résultats de ces observations peuvent être résumés comme suit :

1) Il n'a été observé, sur les échantillons de mesure d'aimantation ou sur des échantillons ayant subi des traitements thermiques rigoureusement identiques (succession de revenus à la température ambiante et de périodes de conservation dans l'azote liquide), aucune figure qui puisse être attribuée aux précipités cherchés, ni en métallographie optique, ni en métallographie électronique. Ceci peut être dû au fait que les précipités sont trop petits pour être observés en métallographie optique (grandissement maximum 1300), que le polissage électrolytique n'est pas assez sélectif pour les révéler en surface (métallographie électronique par réplique), et qu'ils n'offrent pas un contraste suffisant en transmission électronique.

2) Des précipités relativement gros, à plusieurs branches, ont été observés sur des échantillons d'essais dont les traitements thermiques et mécaniques initiaux sont mal définis, et qui ont été maintenus entre 70 et 320 jours à la température ambiante. L'épaisseur des branches varie entre 400 et 5000 Å et leur distribution est au hasard. Ces précipités n'ont jamais été retrouvés dans les échantillons de mesure d'aimantation ayant subi des revenus à la température ambiante de durée analogue.

3) Aucune figure caractéristique d'une précipitation discontinue autour des joints de grain n'a été observée sur l'ensemble des échantillons étudiés.

Rayons X

Des diagrammes de rayons X ont été effectués sur l'alliage

B revenu 15 jours et 85 jours à la température ambiante, et comparés au diagramme d'un alliage Pb-In 50% atomique effectué dans les mêmes conditions. Il s'agit de diagrammes de poudre obtenus à partir de limaille exposée aux rayons X, pendant une heure, dans une chambre maintenue sous vide primaire.

Le diagramme de l'alliage B présente les mêmes raies que le diagramme du Pb-In 50% atomique, mais nettement élargies. Cet élargissement indique la présence de champs de déformations dans le réseau de l'alliage Pb-In-Na et atteste la présence de petits précipités cohérents dans la matrice c.f.c. Nous avons ici la preuve que la précipitation est bien cohérente.

Conclusion sur la structure des échantillons

Bien que n'ayant pu observer directement les précipités dans nos échantillons et déterminer leur taille et leur distribution en fonction du revenu à la température ambiante, il apparaît à la lueur des observations effectuées, des examens aux rayons X et de l'évolution des propriétés supraconductrices d'équilibre que nous discuterons plus loin, que nos alliages sont constitués à l'état trempé d'une solution solide Pb-In-Na c.f.c. saturée, qui se décompose à la température ambiante par précipitation d'une phase riche en sodium de structure cristalline non déterminée. La précipitation est continue et les précipités cohérents avec la matrice grossissent en fonction du temps de revenu à la température ambiante. Lorsque la concentration en Na de la matrice a atteint la concentration d'équilibre à la température ambiante avec la phase précipitée, la fraction de volume de phase précipitée reste constante en fonction du temps de revenu. Les précipités continuent à grossir pendant que leur nombre décroît en fonction du temps de revenu, selon l'évolution générale de ce type de précipitation. Ce comportement est suivi jusqu'à des temps de revenu au moins égaux à 85 jours. On a donc la relation :

$$N_v \cdot \langle v \rangle = f_v = \text{cte}$$

N_v étant le nombre de précipités par unité de volume, $\langle v \rangle$ le volume moyen d'un précipité et f_v la fraction de volume de la phase précipitée.

CHAPITRE II

LES MESURES D'AIMANTATION

1 - LES CRYOSTATS ET LA MESURE DE LA TEMPERATURE

Nous disposons au Laboratoire de deux appareils de mesure de l'aimantation, destinés à des supraconducteurs de faibles champs critiques. Nous avons changé en cours d'étude de méthode de mesure de l'aimantation, mais nous avons utilisé pratiquement sans modifications les dispositifs cryogéniques et les systèmes de mesure et de régulation de la température.

Le champ magnétique est produit par des bobines en cuivre, refroidies à l'azote liquide, alimentées par des batteries d'accumulateurs au plomb 120 V de forte capacité. Une régulation électronique permet soit de débiter une intensité constante, soit de faire varier le courant linéairement avec le temps selon une vitesse affichée. Le champ magnétique défini par la valeur du rapport H/I des bobines est connu avec une précision de 0,5%. Dans l'un des appareils (réf.12), l'échantillon plonge directement dans le bain d'hélium liquide, dont la température peut être abaissée par pompage de 4,2 K à 1,2 K. La détermination de la température est obtenue à 0,01 K près, par la mesure de la pression de vapeur sur le bain d'hélium, à l'aide de manomètres à huile et à mercure.

L'autre appareil (réf.13) est équipé d'un calorimètre à double enceinte permettant de travailler de 4,2 K à 10 K. La température de l'enceinte interne est régulée à l'aide d'un dispositif P.I.D. piloté par une résistance de carbone et agissant sur le courant d'une

résistance de chauffage en constantan. L'homogénéité de la température à l'intérieur de cette enceinte est assurée par de l'hélium gazeux dont la pression a été fixée par l'expérience à 2 mm d'huile à 4,2 K. Une pression trop faible fait apparaître un gradient de température dans le calorimètre, une pression trop forte entraîne des mouvements de convection de l'hélium et la puissance débitée par la régulation devient trop grande.

La mesure de la température elle-même est effectuée à l'aide d'une résistance de germanium préalablement étalonnée. Cette résistance était installée initialement dans le porte-échantillon. Pour pouvoir changer rapidement d'échantillon, nous l'avons placée à poste fixe dans le calorimètre, car elle ne supporte pas les brusques variations de température entre le cryostat froid et le milieu ambiant. Nous pouvons ainsi introduire rapidement un échantillon pré-refroidi à l'azote, comme cela s'est avéré nécessaire pour éviter la transformation structurale parasite de nos alliages entre la température ambiante et 77 K. Nous avons vérifié que la température indiquée par la résistance de germanium correspond bien à la température de l'échantillon en mesurant soigneusement les champs critiques à différentes températures d'un échantillon de plomb très pur. L'extrapolation de la courbe $H_{c2}(T)$ nous a donné à 0,01 K près la température critique du plomb mesurée par PEARSON et al. (réf. 14). Les mêmes mesures effectuées sur un alliage plomb-indium équiatomique nous ont permis de retrouver également à 0,01 K près les valeurs de la littérature (réf. 15).

Enfin, nous avons dû améliorer le centrage de la canne porte-échantillon par des guides, pour éviter tout frottement à l'intérieur de la bobine de détection susceptible d'entraîner un échauffement au cours d'extractions successives.

2 - LA MESURE DE L'AIMANTATION

On employait sur les appareils existants la technique dite "par extraction" (réf. 12). Une série d'échantillons (alliage A) a été mesurée ainsi.

L'inconvénient majeur de cette technique est sa lenteur. Ayant à effectuer de nombreuses mesures sur la deuxième série d'échantillons (alliage B), nous avons adopté un système de mesure de l'aimantation par intégration déjà utilisé au Laboratoire (réf. 16 et 17). Il consiste à recueillir le signal d'une bobine de détection à deux enroulements de sens contraires juxtaposés. Lorsque le champ magnétique appliqué varie linéairement en fonction du temps, la tension obtenue aux bornes de la bobine est proportionnelle à la dérivée de l'aimantation de l'échantillon placé dans l'un des deux enroulements. Après amplification et intégration, ce signal devient proportionnel à l'aimantation de l'échantillon et est envoyé à l'entrée Y d'un enregistreur XY, alors qu'un signal proportionnel au courant de la bobine de champ magnétique, obtenu à l'aide d'un shunt, est envoyé à l'entrée X. Rappelons que l'étalonnage en ordonnée de la courbe ainsi enregistrée s'effectue à l'aide de la pente de la première aimantation qui doit être linéaire avec le champ magnétique ($B = 0 \Rightarrow -4\pi M = H$). Le coefficient de champ démagnétisant est en effet négligeable pour nos échantillons.

Compte-tenu du gain maximum de l'amplificateur utilisé, il nous a fallu construire des bobines plus sensibles que celles utilisées en extraction, en augmentant le nombre de spires par l'utilisation de fil plus fin. Dans le cas où la bobine de détection est placée dans l'hélium liquide, le doublement du nombre de spires nous a permis d'obtenir une sensibilité suffisante pour mesurer des échantillons de $0,1 \text{ cm}^3$ environ. Les signaux parasites ne représentent en effet que 4% environ du signal maximum à 4,2 K, et comme ils varient peu avec la température, alors que le signal de mesure augmente, le rapport signal sur bruit ne fait que s'améliorer aux températures inférieures.

Par contre, sur l'appareil avec calorimètre, ces signaux parasites se sont avérés beaucoup plus gênants. Ils sont dûs essentiellement aux courants induits dans les pièces métalliques se trouvant au voisinage de la bobine de détection. En conséquence, nous avons remplacé les supports en laiton de la bobine de détection par des supports en plexiglas et les soudures au métal de wood des enceintes du calorimètre par des soudures au cadmium-bismuth non supraconductrices dans la gamme de température étudiée. En effet, un anneau de soudure supraconductrice, pourtant situé à plus de 8 cm de l'extrémité de la bobine de détection, crée un signal parasite important, variable avec la température. De plus, nous avons calculé, à l'aide d'un programme, une bobine de mesure possédant des enroulements supplémentaires opposés à chaque extrémité pour écranter les signaux extérieurs. La caractéristique $\frac{h}{T}$ de la bobine a ainsi été diminuée d'un facteur 20 au niveau de la première pièce métallique voisine, qui est le fond du calorimètre ($\frac{h}{T} = 9.10^{-4}$ du signal max.), (figure 1).

Le montage de la bobine a été fait avec le minimum de raccords pour éviter les f.e.m. parasites. Cela a nécessité la mise en place de passages étanches pour la traversée des parois du calorimètre et du vase d'hélium. Dans ces passages, les fils sont noyés dans du "stycast". Les raccords indispensables ont été effectués à l'aide d'une soudure sans f.e.m.

Malgré ces précautions, les f.e.m. des deux enroulements (de l'ordre de quelques centaines de μV) ne varient pas de la même façon avec la température du calorimètre. Cette différence entre les signaux des deux enroulements (ordre de grandeur du signal de chacun d'eux ≈ 100 mV) doit être annulée en modifiant le gain de l'une des boucles de l'amplification. Le signal résiduel est proportionnel à la vitesse de variation du champ $\frac{dH}{dt}$ comme l'explique NEMOZ (réf. 17). Dans notre cas, le compromis à trouver avec la dérive de l'intégrateur au cours d'un cycle nous a fait choisir une vitesse de 100 Oe/s environ, ce qui correspond à un signal résiduel de 2,5G. Il représente 2% du signal maximum à 4,2 K mais 16% à 6°K, température de mesure la plus élevée. Cependant, ce signal parasite ne dépendant pas du champ

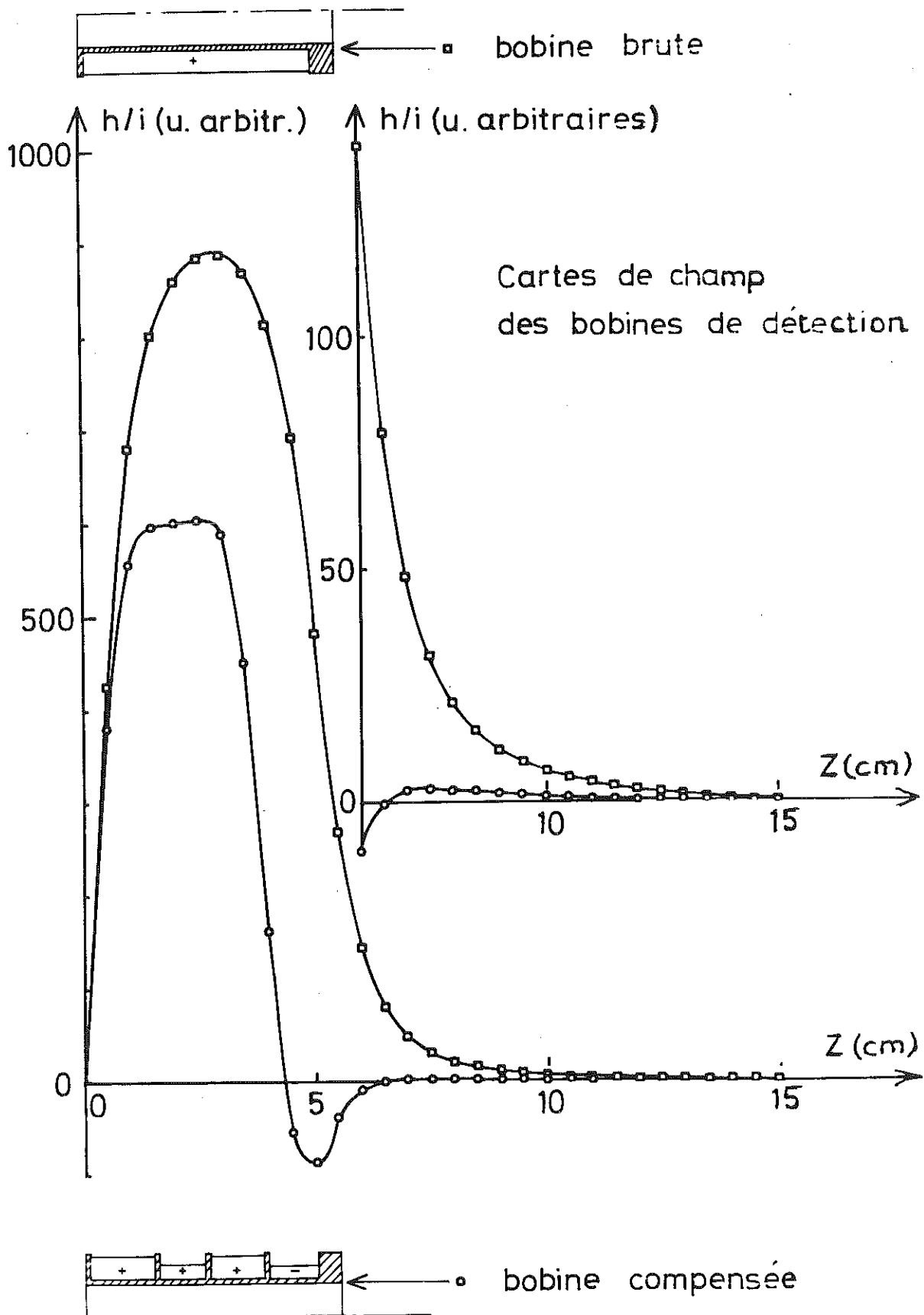


Fig. 1

magnétique est facile à soustraire du signal de mesure (figure 2).

Nous estimons la sensibilité ainsi obtenue à 0,5 G ($4 \cdot 10^{-2}$ UEM). Compte-tenu du κ de nos échantillons ($\kappa \approx 7$), cela représente par exemple une incertitude de 60 Oe sur la détermination du champ critique supérieur H_{c2} de nos échantillons.

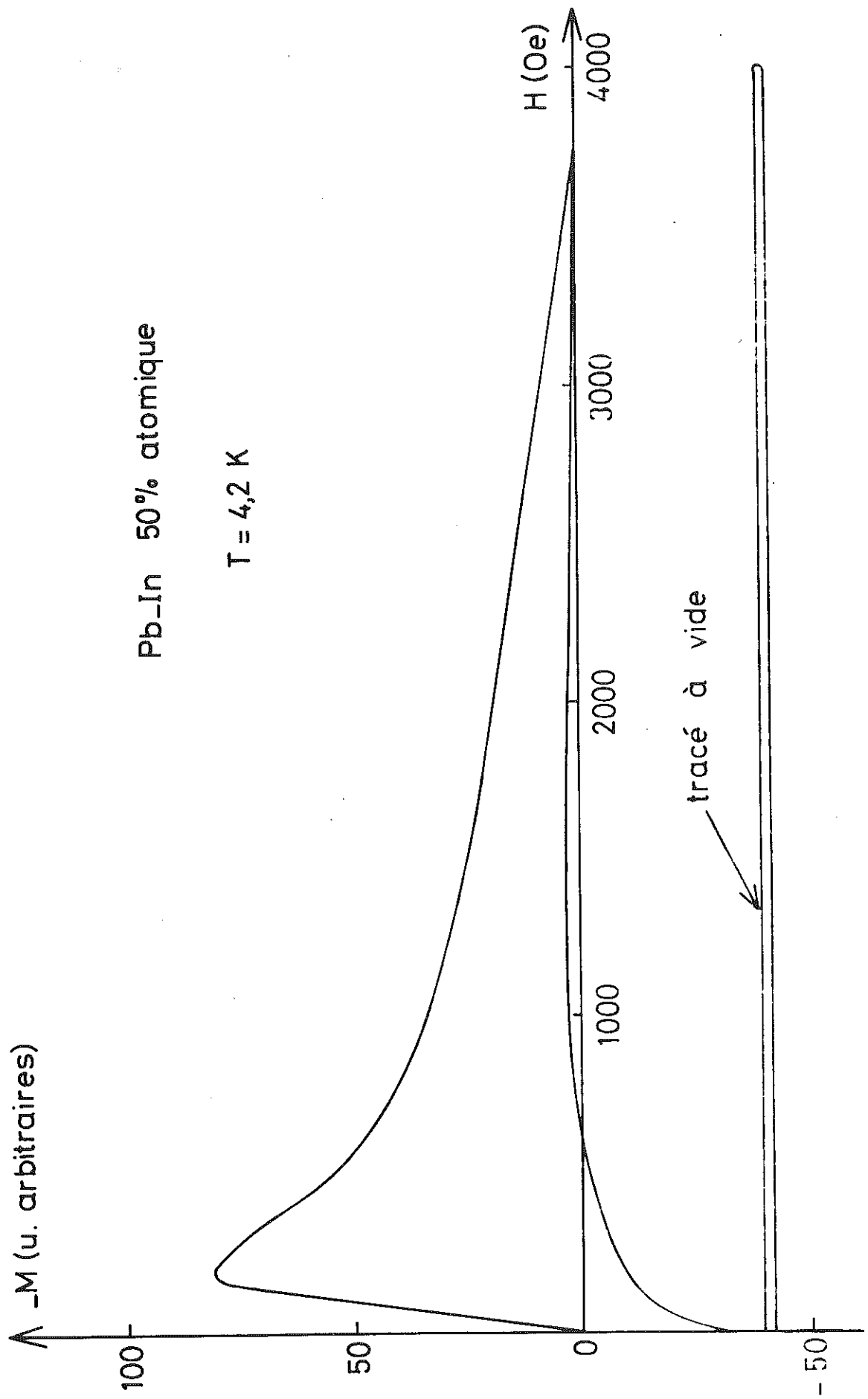


Fig. 2

C H A P I T R E III

CALCUL DE LA FORCE DE PIEGEAGE

Dans le modèle de l'état critique, la force de piégeage des vortex par unité de volume s'exprime d'une façon générale par :

$$F_p = \frac{1}{4\pi} B \Lambda \operatorname{rot} H(B) \quad (1)$$

où $H(B)$ est le champ magnétique en équilibre avec l'induction locale B dans l'échantillon (réf. 18). Cette expression est d'ailleurs équivalente à celle obtenue à partir de la densité de courant critique J_c .

$$F_p = - J_c \Lambda B \quad (2)$$

avec $J = \frac{1}{4\pi} \operatorname{rot} H$

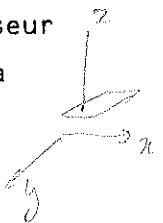
Dans le cas particulier de vortex dirigés (suivant Oz), parallèlement à la surface d'un échantillon parallélépipédique d'épaisseur e (suivant Ox), faible devant sa largeur (suivant Oy), la force dans la direction Ox , s'exprime par :

$$F_p = \frac{B}{4\pi} \frac{dH(B)}{dx} = \frac{B}{4\pi} \frac{dH(B)}{dB} \frac{dB}{dx} \quad (3)$$

où $\frac{dB}{dx}$ est le gradient d'induction (réf. 19).

Si ce gradient $\frac{dB}{dx}$ est considéré comme constant dans l'échantillon (figure 3), l'induction moyenne en champ croissant est alors :

$$\bar{B} = B_0 - \frac{e}{4} \frac{dB}{dx}$$



où B_0 est l'induction à la surface de l'échantillon en équilibre avec le champ H appliqué. De même, en champ décroissant :

$$\bar{B}_{\searrow} = B_0 + \frac{e}{4} \frac{dB}{dx}$$

et
$$\Delta \bar{B} = \bar{B}_{\searrow} - \bar{B}_{\nearrow} = \frac{e}{2} \frac{dB}{dx}$$

Comme $B = H + 4\pi M$, on a $\Delta \bar{B} = \Delta(4\pi \bar{M})$ et $\frac{dB}{dx} = \frac{2}{e} \Delta(4\pi \bar{M})$ (4)

En considérant que $\frac{dH(B)}{dB} \neq 1$ et que $\bar{B} \neq H$ appliqué, on trouve à partir de (3) et (4)

- pour la force d'ancrage par unité de volume :

$$F_p = \frac{H}{2\pi e} \Delta(4\pi \bar{M}) \quad (5)$$

- pour la force d'ancrage moyenne par unité de longueur de vortex :

$$f_p = \frac{\phi_0}{2\pi e} \Delta(4\pi \bar{M}) \quad (6)$$

Pour notre échantillon, où $e = 0,5$ mm, les relations (5) et (6) deviennent :

$$F_p = 3,18 H \Delta(4\pi \bar{M}) \text{ dynes/cm}^3 \quad (7)$$

$$f_p = 6,36 \cdot 10^{-7} \Delta(4\pi \bar{M}) \text{ dynes/cm} \quad (8)$$

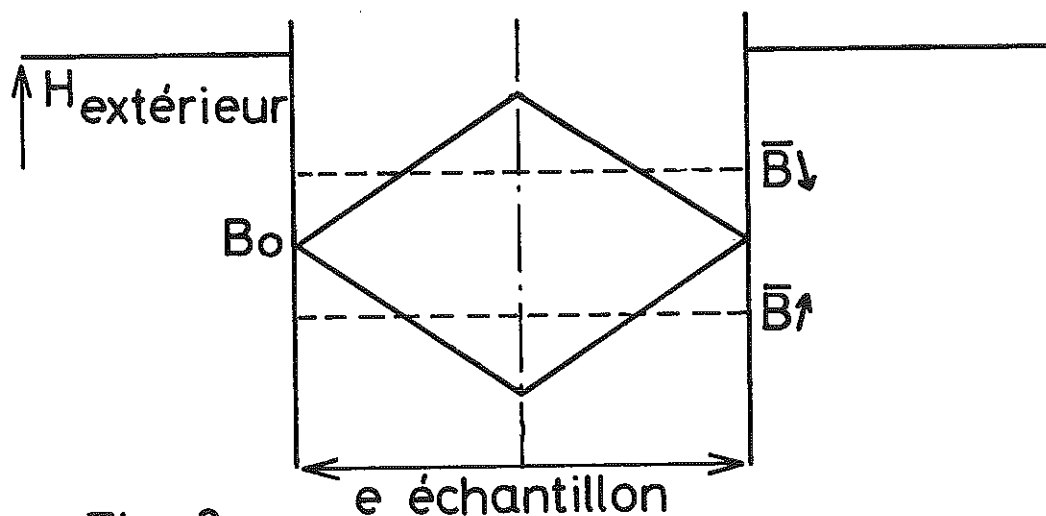


Fig. 3

Pour effectuer ce calcul, nous avons fait trois approximations :

1) On a supposé $\frac{dB}{dx}$ constant dans l'échantillon. Ceci ne sera vérifié que si B varie peu dans l'échantillon,

$$\text{soit si } \frac{\Delta B}{2B} \ll 1 \quad \text{ou} \quad \Delta(4\pi\bar{M}) \ll 2\bar{B} \quad (9)$$

On voit d'après la relation (4), que la condition (9) sera d'autant mieux vérifiée, pour un $\frac{dB}{dx}$ donné, que e est petit. C'est pourquoi nous avons utilisé comme échantillon des lamelles minces.

2) On a supposé que l'induction moyenne $\bar{B}$ dans l'échantillon est peu différente du champ appliqué H, ce qui impose puisque $\bar{B} = H + 4\pi\bar{M}$:

$$(4\pi\bar{M}) \ll \bar{B} \quad (10)$$

3) On a supposé $\frac{dH}{dB} (B) \neq 1$. Près de H_{c2} on a (réf. 20) :

$$\frac{dH (B)}{dB} = \frac{1}{1+4\pi \frac{dM}{dH}} = \frac{1}{1 + \frac{4\pi}{1,16(2K^2-1)}}$$

Pour nos échantillons où $\kappa \approx 7$, $\frac{dH}{dB}$ est effectivement très voisine de 1. Cette expression déduite des équations de Ginzburg-Landau est valable dans la région de champ où ces équations sont valables, soit entre $\frac{1}{2} H_{c2}$ et H_{c2} environ. En champs plus faibles, il faut considérer la pente expérimentale. Nous l'avons fait pour un échantillon assez bien réversible. On trouve que, à 4,2 K, l'approximation est vérifiée à mieux de 10% près, dès que le champ dépasse 0,06 H_{c2} .

Les deux premières conditions (9) et (10) sont plus restrictives que la troisième. Elles sont d'autant plus mal vérifiées que l'aimantation augmente, c'est-à-dire pour des temps de revenu plus longs et des températures plus basses. Dans le cas de l'échantillon B revenu 10,7 jours, elles sont vérifiées à moins de 10% près au-delà de 1300 Oe (soit 0,18 H_{c2}) à la température la plus défavorable de 1,60 K. A la même température, elles ne sont plus respectées au niveau du pic qu'à 18% près dans le cas de l'échantillon B revenu 21 jours et à 35% près seulement pour les valeurs extrêmes de l'échantillon B revenu

42,6 jours. Il convient donc de garder en mémoire ces approximations pour toute étude quantitative du comportement de f_p et F_p en bas champs et basses températures.

DEUXIEME PARTIE

R E S U L T A T S E X P E R I M E N T A U X

C H A P I T R E I

LES PROPRIETES SUPRACONDUCTRICES D'ÉQUILIBRE

1 - LES ALLIAGES TREMPES

Sur la figure 4 ont été reportés les champs critiques supérieurs H_{c2} des alliages A et B trempés en fonction de la température, ainsi que ceux d'un alliage Pb-In 50% atomique fabriqué dans les mêmes conditions. L'extrapolation à zéro des courbes $H_{c2}(T)$ obtenues nous donne la température critique T_c . On peut voir que l'addition de sodium à l'alliage Pb-In 50% atomique abaisse T_c dès les faibles concentrations ; celle-ci reste ensuite constante quand on augmente la concentration en sodium jusqu'à 3,6% atomique.

Les H_{c2} à 0 K ont été obtenus par extrapolation à l'aide d'une loi de Maki (Réf. 21) passant par les H_{c2} expérimentaux. On peut voir que $H_{c2}(0)$ croît avec la concentration en sodium. Ce résultat montre que le sodium est bien en solution solide désordonnée dans les alliages Pb-In-Na trempés. En effet, dans ces conditions, le sodium accroît la résistivité résiduelle ρ_0 de l'alliage et par là κ et H_{c2} selon les relations (réf. 22)

$$H_{c2} = \sqrt{2} \kappa_2 H_c$$
$$\text{et} \quad \kappa_2 = \kappa_0 + 7,5 \cdot 10^{-3} \rho_0 \gamma^{1/2}$$

où H_c le champ critique thermodynamique, γ son coefficient de chaleur spécifique électronique et κ_0 son paramètre de Ginzburg-Landau sans sodium, varient très peu en fonction de la concentration en sodium (puisque T_c varie peu).

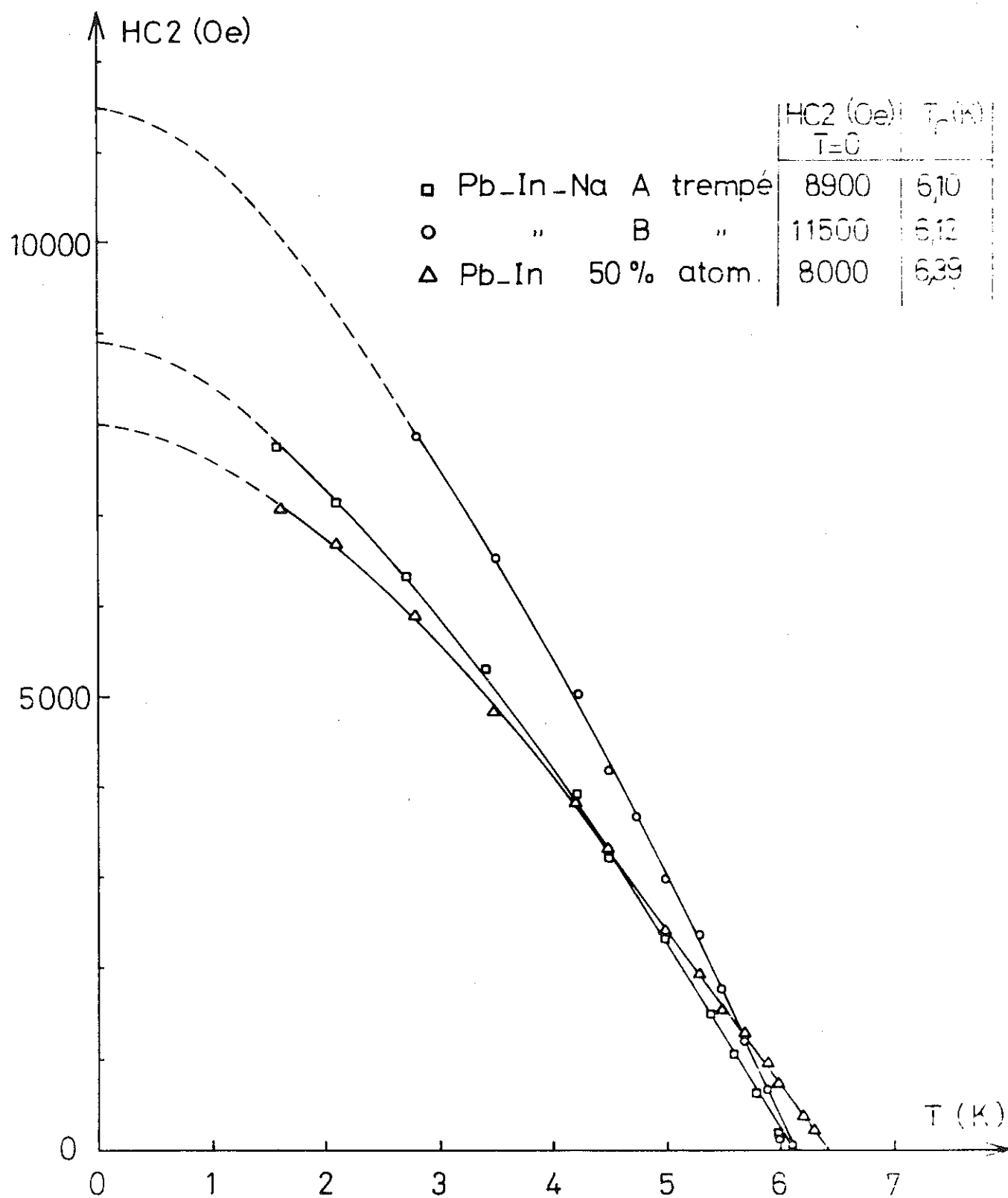


Fig. 4

Nous avons déduit $\kappa_2(T)$ de la pente des courbes d'aimantation près de H_{c2} pour l'alliage A grâce à l'expression

$$\left. \frac{d(-4\pi M)}{dH} \right|_{H = H_{c2}} = [(2\kappa_2^2 - 1) 1,16]^{-1}$$

L'extrapolation pour $T = T_c$, de la courbe obtenue pour $\kappa_2(T)$ nous a donné un κ_G de 7 environ. En admettant que les κ_G sont à peu près dans le rapport des $H_{c2}(0)$, on trouve un κ_G de 9 environ pour l'alliage B. Ces valeurs nous permettront d'appliquer à nos échantillons les approximations "hauts κ " de la théorie des supraconducteurs de deuxième espèce.

2 - LES ALLIAGES MAINTENUS A LA TEMPERATURE AMBIANTE

On peut voir sur la figure 5 l'évolution de H_{c2} avec la durée du revenu à la température ambiante. Nous avons reporté les valeurs de H_{c2} à 4,2 K de l'alliage B pour les temps de revenu faibles et celles de H_{c2} à 1,56 K de l'alliage A pour les temps de revenu long. En fait la variation de H_{c2} aux différentes températures est qualitativement la même : au début du revenu on observe une décroissance très rapide de H_{c2} qui se stabilise par la suite à une valeur proche de H_{c2} de l'alliage 50% atomique figurée en pointillé sur la figure. On peut associer cette décroissance rapide à la désaturation en sodium de la solution solide Pb-In-Na par précipitation de la phase riche en Na.

Une fois les précipités formés et les concentrations d'équilibre entre matrice et phase précipitée atteinte, la concentration en sodium de la matrice ne décroît plus, et H_{c2} reste constant.

Pour des temps de revenu analogues $H_{c2}(T)$ et T_c des deux alliages A et B diffèrent très peu comme le montre la figure 6. Ce résultat indique que les concentrations d'équilibre de la matrice et de la phase précipitée à la température ambiante dépendent très peu de la concentration initiale en sodium.

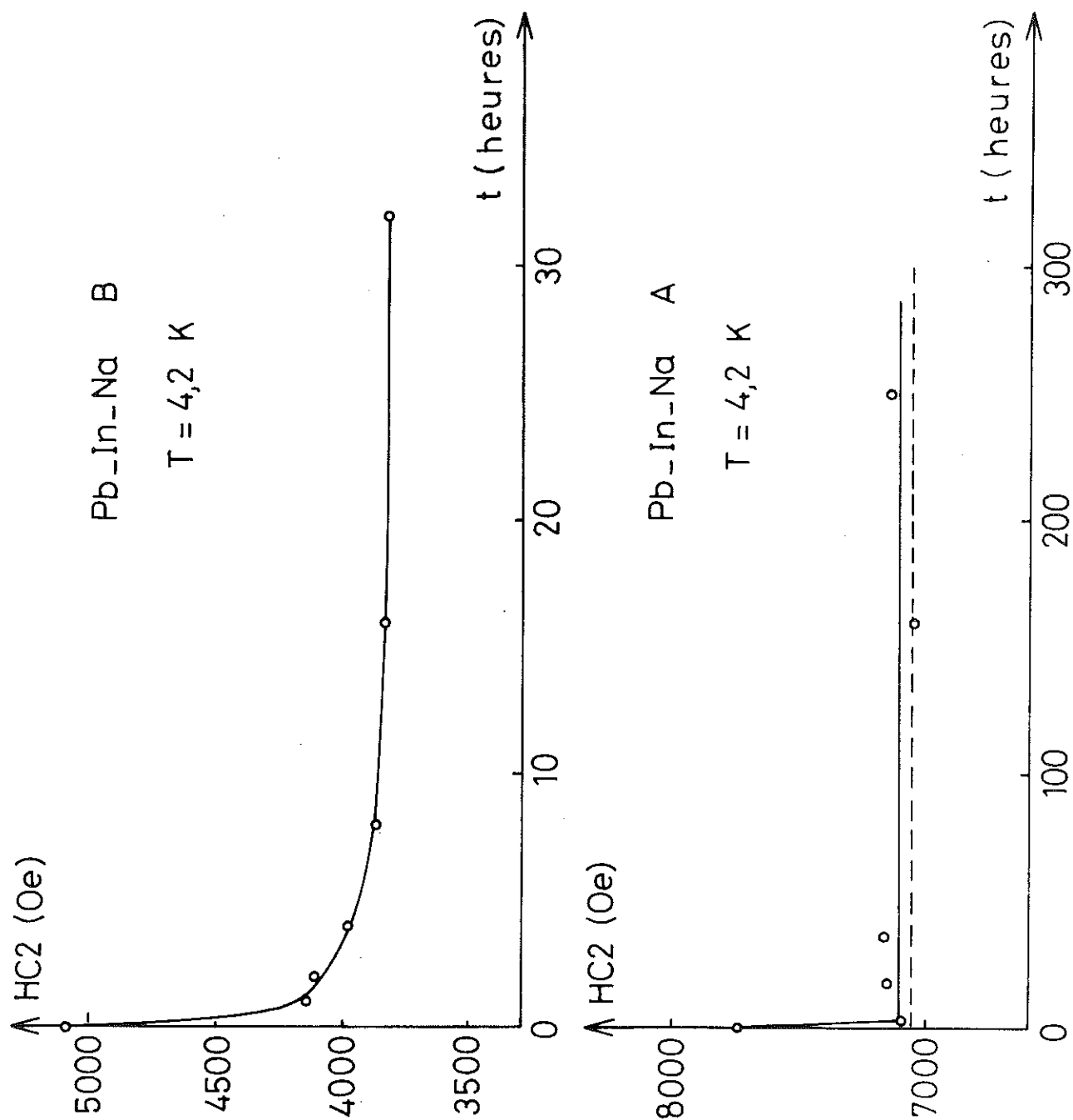


Fig. 5

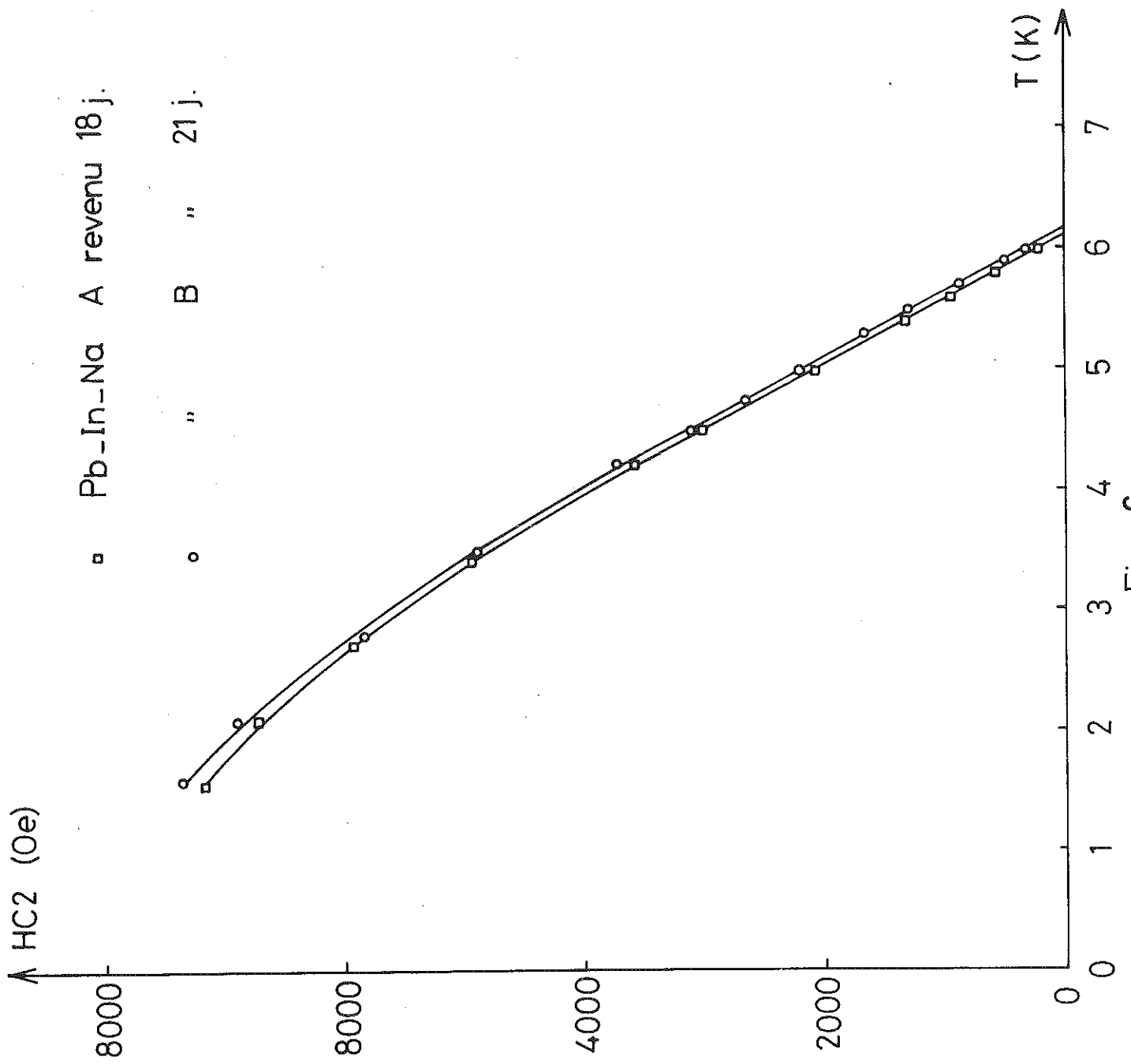


Fig. 6

Nous pouvons donc considérer que nos deux alliages de concentration 1,9 et 3,6 at.% de sodium, revenus à 300 K ont des propriétés supraconductrices d'équilibre identiques (à quelques pour cents près) résultant de l'identité des phases qui les constituent. Leur différence structurale essentielle réside donc dans les fractions de volume f_v de phase riche en sodium précipitée.

Sachant que la limite de solubilité de Na dans Pb-In 50% atomique à 300 K est supérieure à 650 ppm (soit 4534 ppm atomique) d'après l'analyse chimique des échantillons ayant servi à une autre étude (réf. 2), nous pouvons estimer que le rapport des fractions de volume de phase précipitée dans nos échantillons B et A est supérieur à 2,13.

L'examen des températures critiques obtenues pour nos différents échantillons montre que d'une part la précipitation ne modifie que très peu la température critique de l'alliage trempé et que d'autre part T_c croît légèrement en fonction du temps de revenu à 300 K. Ce résultat est illustré par le tableau I où nous donnons T_c en fonction du temps de revenu pour l'alliage A.

ALLIAGE	TEMPS DE REVENU à 300 K (jours)	0 (trempé)	3	18	36	160	250
Pb-In-Na A	T_c (K)	6.10	6.08	6.12	6.12	6.15	6.18

TABLEAU I

Ce comportement est apparemment contradictoire avec le fait qu'une désaturation en sodium de la matrice Pb-In-Na devrait conduire à un brusque accroissement de T_c puisque la température critique de l'alliage Pb-In 50% atomique sans sodium est de 6,39 K, valeur nettement plus élevée que celle des alliages trempés contenant du sodium. En fait, on doit tenir compte des effets de proximité des précipités sur la matrice si l'espacement entre précipités peut être inférieur ou de l'ordre de grandeur de la longueur de cohérence $\xi(0)$ de la matrice.

En supposant les précipités sphériques distribués au hasard la distance moyenne entre leurs centres est donnée par la relation

$$\bar{L} = \frac{D}{2} (f_v)^{-1/3}$$

où D est leur diamètre et f_v la fraction de volume qu'ils occupent.

Dans notre cas, si on admet (comme pour les alliages Pb-Na où la composition des précipités est Pb_3Na) que le sodium représente 25% atomique des précipités et qu'il précipite 1,4% atomique du sodium total dans l'alliage A, on trouve que 5,6% des atomes sont précipités. En négligeant la différence des volumes spécifiques des précipités et de la matrice, on voit que f_v va être de l'ordre de 5,6% dans l'alliage A et supérieure à 10% dans l'alliage B.

Dans ces conditions, on a $\bar{L} \sim 1,3 D$ pour l'alliage A et $\bar{L} < 1,1 D$ pour l'alliage B. L'"épaisseur" moyenne $\bar{e}$ de matrice entre deux précipités est donc inférieure à leur diamètre : $\bar{e}$ vaut respectivement 0,3 D et 0,1 D pour les deux alliages.

La longueur de cohérence $\xi_m(0)$ de la matrice est comprise entre celle de l'alliage Pb-In 50% atomique et celle de l'alliage A. On a :

$$\xi(0) = \left(\frac{\phi_0}{2\pi H c_2(0)} \right)^{1/2}$$

où ϕ_0 est le quantum de flux ($\phi_0 = 2 \cdot 10^{-7}$ Gauss cm^2). On trouve alors $\xi_m(0) < 200 \text{ \AA}$.

Ainsi, tant que la taille des précipités va être inférieure à 1 000 $\text{\AA}$ environ, on aura $\bar{e} \lesssim \xi(0)$ et on peut s'attendre à ce que les précipités affaiblissent la supraconductivité de la matrice par effet de proximité et ce, d'autant plus qu'ils seront plus petits, la limite étant la solution solide trempée. On peut donc expliquer ainsi que T_c ne subisse pas de variation brusque lors de la précipitation et croisse ensuite régulièrement en fonction du temps de revenu qui a pour effet d'augmenter le diamètre des précipités.

C H A P I T R E I I

LE PIC DE LA FORCE DE PIÉGEAGE

Pour étudier les variations de la force moyenne de piégeage par vortex f_p avec le champ magnétique, la température et le temps de revenu à 300 K, des mesures systématiques d'aimantation ont été faites sur les alliages A et B entre 1,5 K et T_c pour les temps de revenu suivants :

Pb-In-Na A : 3 j - 18 j - 36 j - 160 j - 250 j

Pb-In-Na B : 10,7 j - 21,3 j - 42,7 j.

En outre, pour étudier l'évolution du piégeage avec la durée du revenu sur une large gamme de temps, l'aimantation a été mesurée :

- à 4,2 K sur l'alliage B, pour des durées de revenu de 1h, 2h, 4h, 8h, 16h, 32h, 64h et 128h.

- à 4,2 K sur l'alliage ayant servi aux mesures préliminaires (réf. 2) pour des durées de revenu comprises entre 4 et 97 semaines. Pour ce dernier revenu, les mesures d'aimantation ont été aussi effectuées à des températures comprises entre 4,2 K et T_c . Cet alliage, qui est, comme les alliages A et B, équiatomique en Pb et In, contient 2,53 at.% de Na ; il sera dénommé alliage C par la suite. En raison du diamètre important (5 mm) de l'échantillon de mesure et des valeurs élevées de son hystérésis, les approximations nécessaires pour le calcul de f_p ne sont pas vérifiées pour cet échantillon. Nous utiliserons néanmoins ces mesures pour illustrer l'évolution qualitative du piégeage pour les revenus de longue durée.

L'évolution du pic avec la durée du revenu est qualitative-
ment la même pour les trois alliages tant que les durées de revenu
n'excèdent pas 130 jours environ ; au-delà par contre, elle diffère très
sensiblement d'un alliage à l'autre. Nous présenterons donc systémati-
quement les résultats obtenus pour les courtes durées de revenu
($t_r < 5$ jours) où le pic apparaît et commence à se développer, puis pour
les revenus de durée moyenne ($5 \text{ jours} \lesssim t_r \lesssim 130 \text{ jours}$) où les valeurs
de l'hystérésis permettent une détermination correcte de f_p , et enfin
pour les longues durées de revenu ($t_r > 130$ jours soit 18 semaines) où
l'évolution du pic devient plus compliquée.

1 - REVENUS DE COURTE DUREE : APPARITION DU PIC

Les courbes d'aimantation des échantillons trempés sont
bien réversibles et ne présentent pas d'anomalie à aucune température.
Il en est de même pour les échantillons de l'alliage B revenus 1h, 2h,
4h et 8h à 300 K, comme on peut le voir sur la figure 7. Une bosse
apparaît sur les courbes d'aimantation près de H_{c2} à partir de 16h de
revenu à 300 K, puis croît en s'écartant de H_{c2} pour les revenus plus
longs (fig. 8).

Deux remarques peuvent être faites. D'abord, en comparai-
son avec la figure 5, on peut voir que la bosse apparaît après la précé-
pitation (qui est presque achevée au bout de 10 h de revenu) et non en
même temps qu'elle. Ceci montre que des précipités trop petits ne
piègent pas les vortex.

Ensuite, on peut constater sur la figure 8 que l'hystérésis
des courbes d'aimantation en champ faible ne varie pas en fonction du
temps de revenu alors que la bosse en champ fort augmente d'amplitude,
le maximum se déplaçant vers la région des champs faibles.

On peut déduire de ces deux observations que les précipités
ne piègent les vortex qu'à partir d'un certain temps de revenu donc
d'une certaine taille et que ce piégeage n'apparaît d'abord qu'en champ

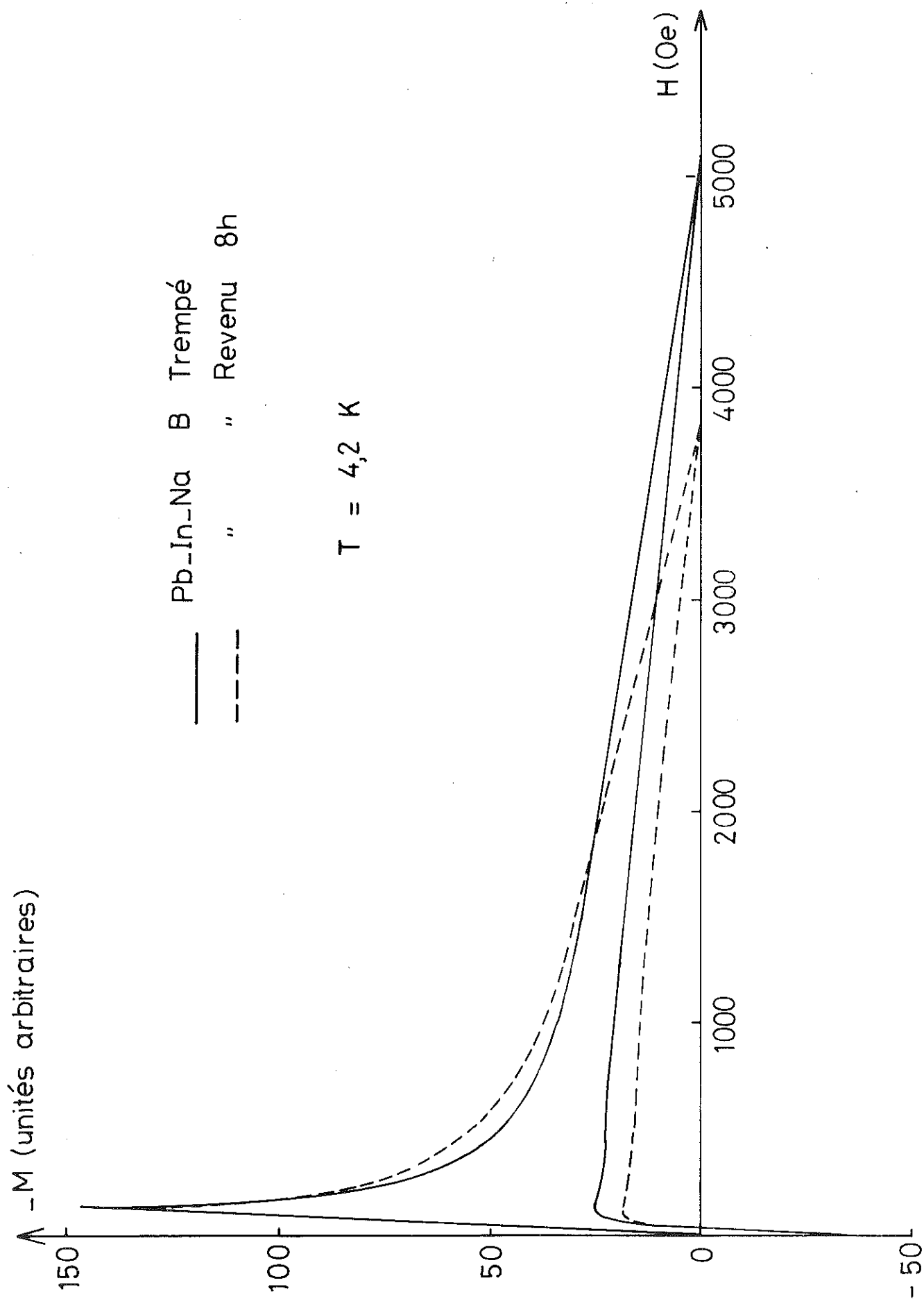


Fig. 7

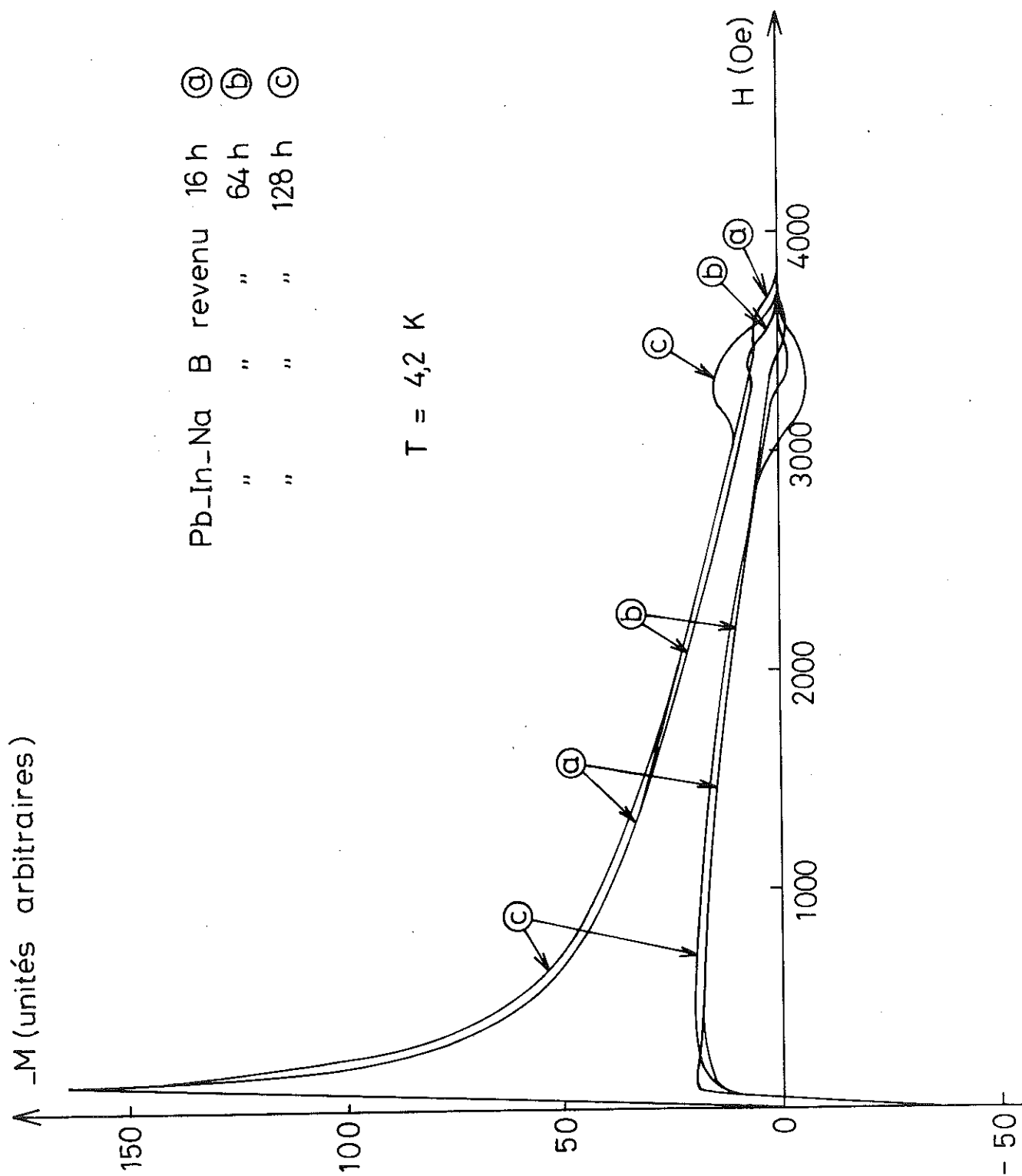


Fig. 8

fort pour gagner progressivement la région des champs faibles lorsque les précipités grossissent.

2 - REVENUS DE DUREE MOYENNE

Nous avons reporté sur les figures 9a, b et 10a, b, c les variations de f_p déduites de l'hystérésis des courbes d'aimantation par la relation (3), en fonction du champ appliqué H à différentes températures, pour différents revenus des alliages A et B. Pour des raisons de commodité de présentation, les résultats pour l'alliage B sont donnés en coordonnées logarithmiques.

On peut constater sur ces figures que f_p présente pour tous ces échantillons, un comportement analogue que nous allons analyser plus en détail.

a) Variations avec le champ magnétique.

On peut voir sur les figures 9 et 10 que, à toutes températures et pour tous les échantillons étudiés, f_p commence par décroître en champs faibles, puis passe par un maximum (le "pic") plus ou moins marqué, et décroît à nouveau en champs élevés pour s'annuler à H_{c2} .

En fait, nous avons constaté, en particulier sur l'alliage A qui a été mesuré par la technique d'extraction, plus sensible que l'intégration, que l'hystérésis de l'aimantation et par là f_p , ne s'annule pas à H_{c2} défini comme le champ où l'aimantation diamagnétique s'annule, mais à un champ H_0 plus faible de quelques pour cents. Nous verrons plus loin comment on peut expliquer cet effet. Lorsque par la suite, nous aurons à exprimer f_p par rapport au champ réduit $h = H/H_{c2}$, c'est en fait H_0 qui sera utilisé pour cette normalisation.

Nous n'avons pu trouver de relation générale pour exprimer la fonction $f_p(H, T)$. Néanmoins, les figures 9 et 10 montrent qu'en champ faible, loin du pic, $f_p(H)$ est proche d'une relation en H^{-1} ,

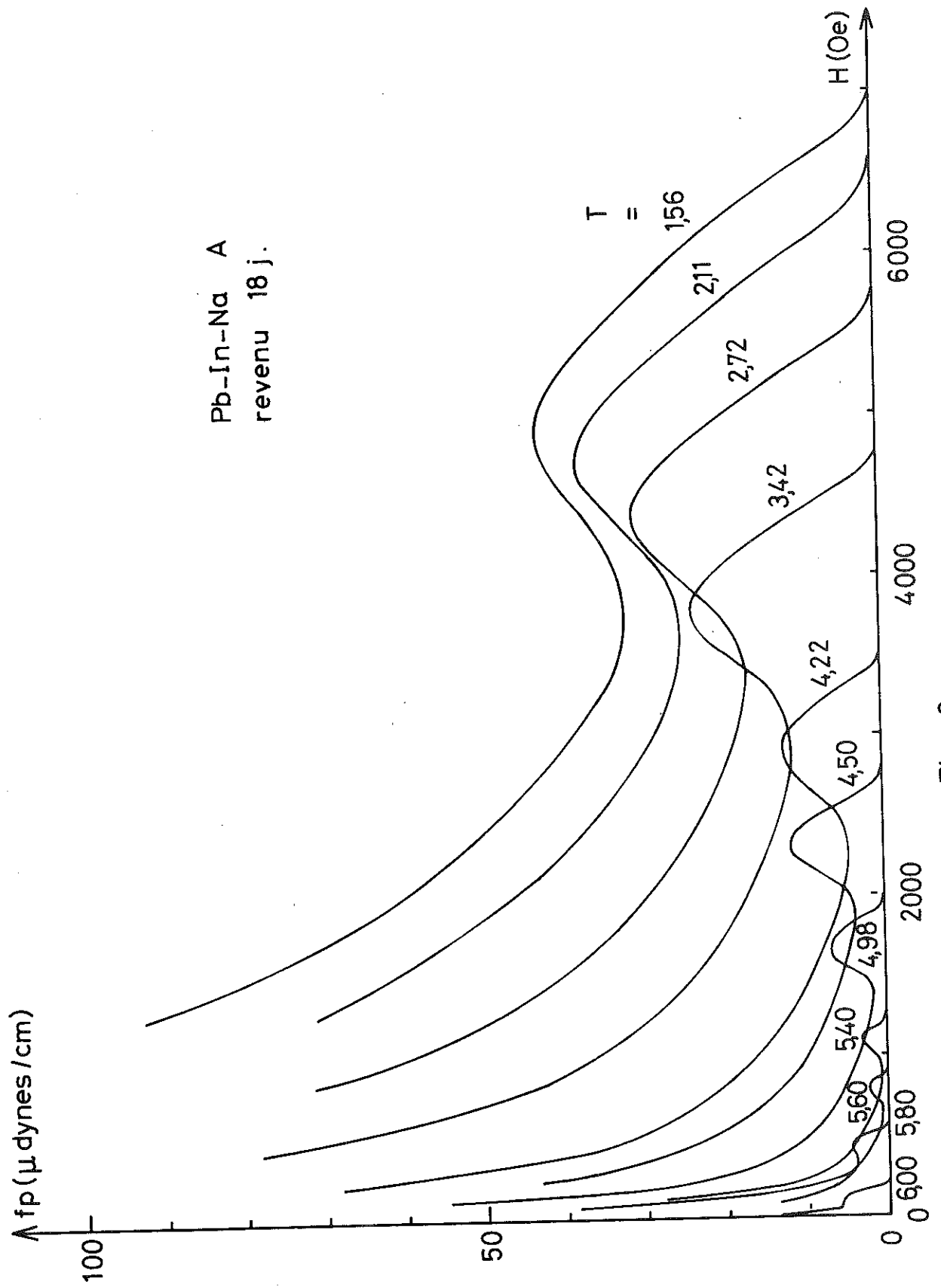


Fig. 9a

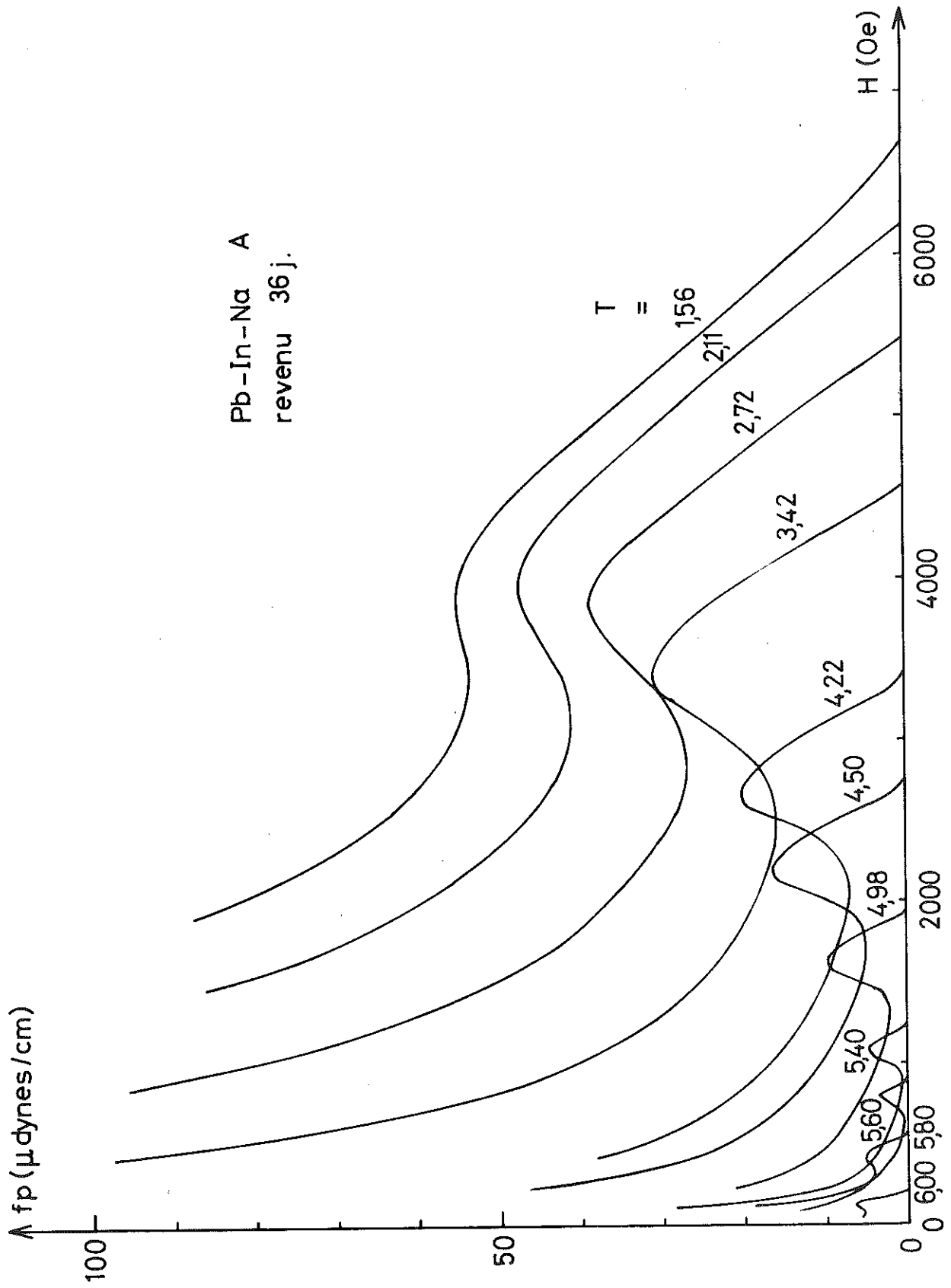


Fig. 9 b

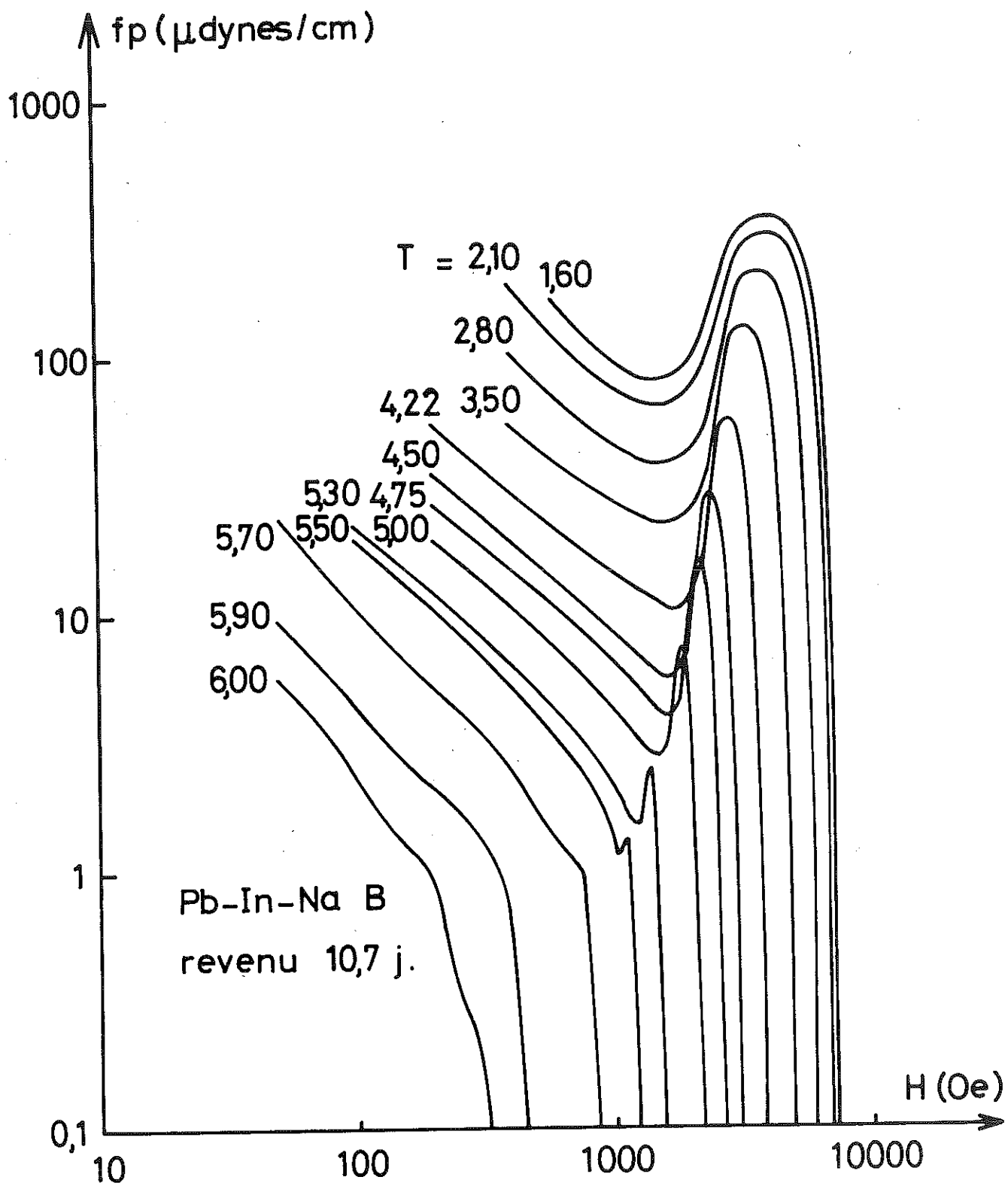


Fig. 10a

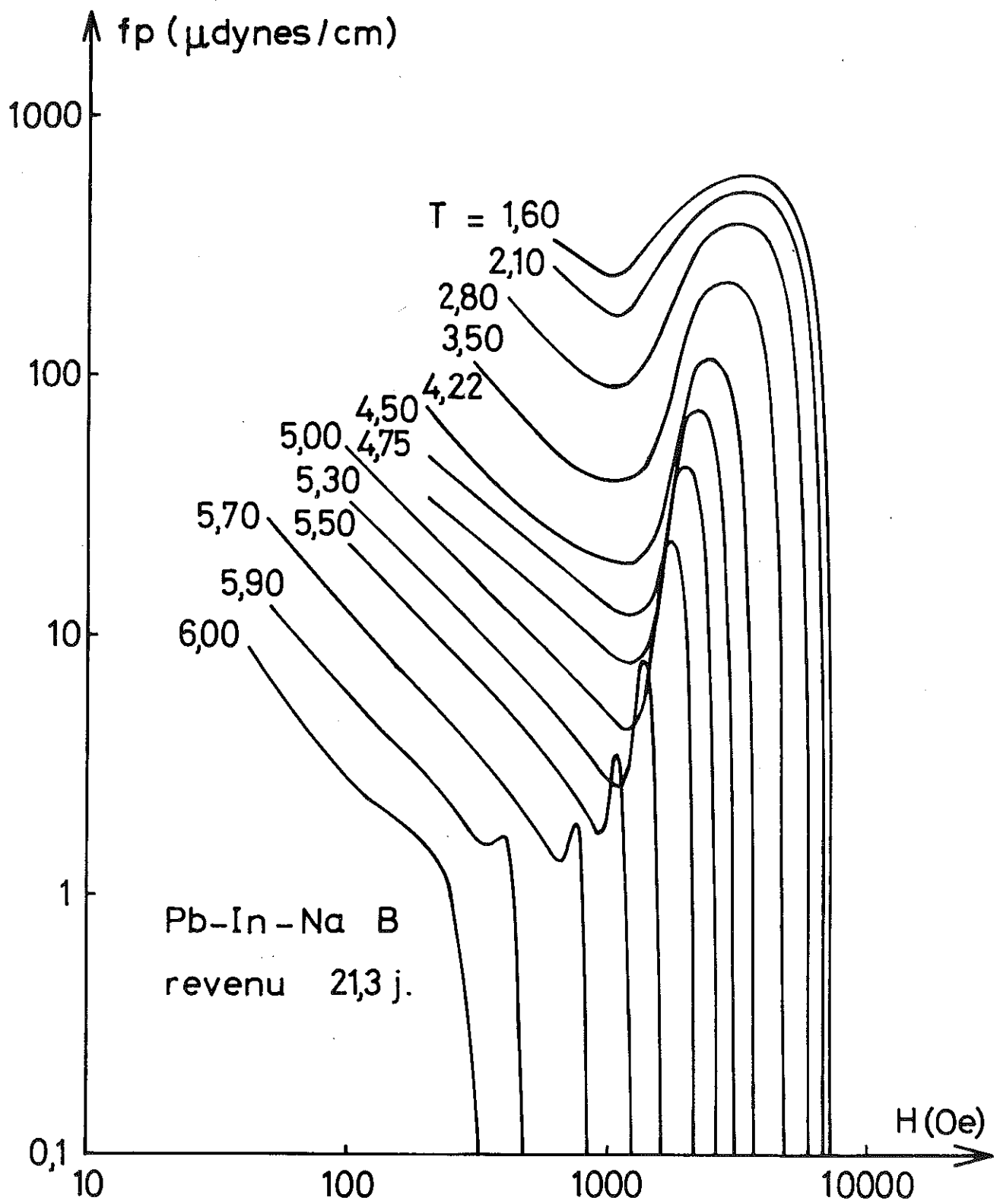


Fig. 10 b

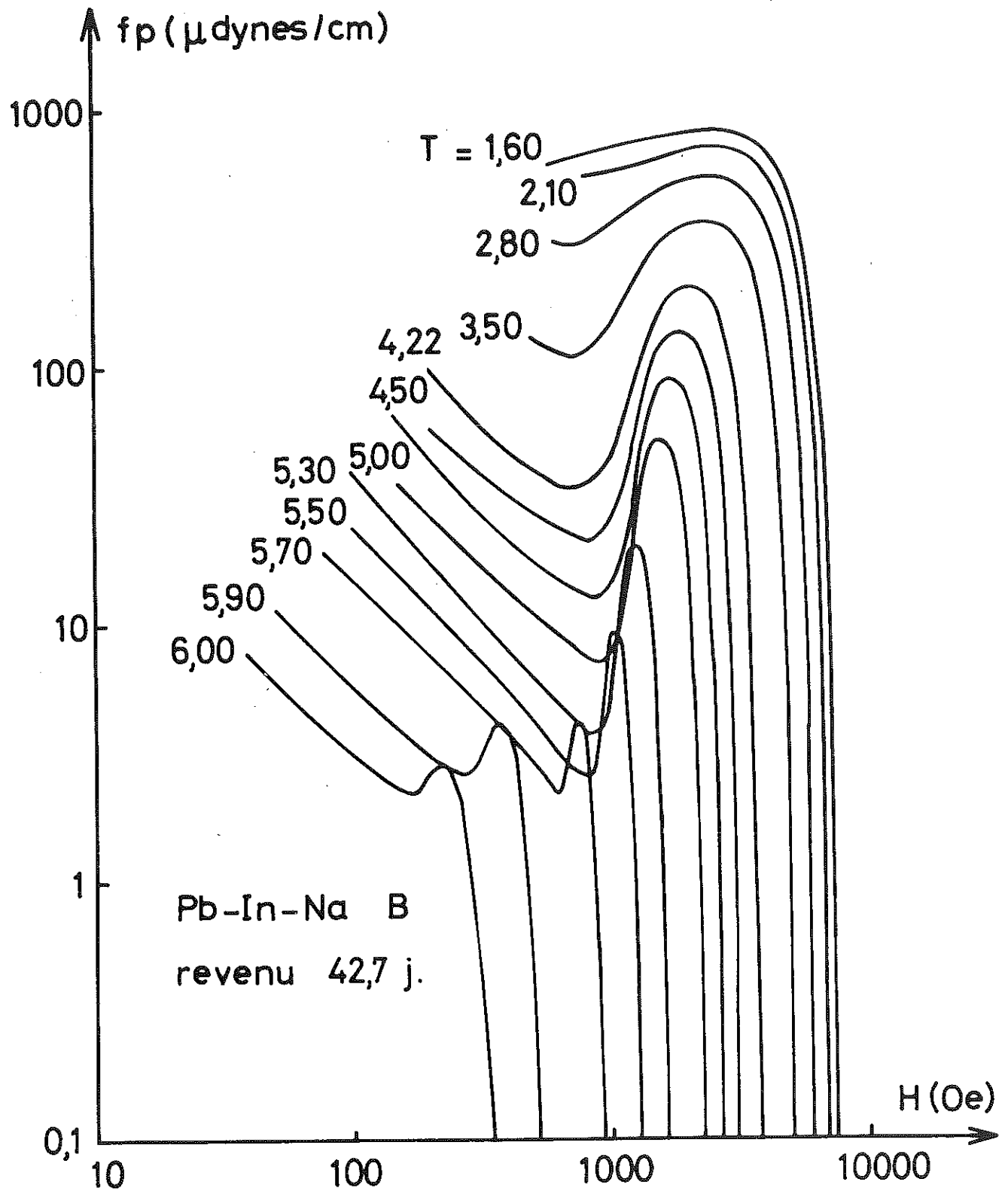


Fig. 10 c

surtout aux basses températures, alors qu'en champs forts, sur la branche décroissante du pic, f_p varie plutôt comme $(H_{c2} - H)^n$, n étant de l'ordre de 1 pour l'alliage A et compris entre 2 et 3 pour l'alliage B.

On remarque aussi sur ces figures que le pic s'élargit et devient moins raide lorsque la température décroît. Aux températures intermédiaires, il apparaît que la branche ascendante du pic est plus raide ($f_p \propto H^7$) que la branche descendante. Ainsi, ce phénomène apparaît plus comme une transition que comme un véritable pic centré sur une valeur du champ et superposé à une courbe entièrement décroissante.

b) Variations avec la température.

Il ressort des figures 9 et 10 que le pic se déplace vers les faibles champs lorsque la température croît.

Sur les figures 11a et b, nous avons reporté les champs correspondant au sommet du pic H_p pour des alliages A et B ayant subi différents revenus. On peut voir que H_p croît d'une manière monotone lorsque T décroît.

Sur les figures 11c et d ont été portées les valeurs du champ de pic réduit $h_p = H/H_{c2}$ pour les mêmes alliages et mêmes temps de revenu. h_p n'est pas constant mais passe par un maximum à une température T^* voisine de 5,5 K commune aux deux alliages et à tous les revenus. Cette température T^* ne dépendant pas du temps de revenu ni de la concentration des alliages est donc caractéristique soit des propriétés de la matrice, c'est-à-dire du réseau de vortex, soit de la nature de la phase précipitée, mais pas de la taille et du nombre des précipités qui varient avec le revenu.

Le fait que h_p ne soit pas constant lorsque la température varie montre que f_p ne suit pas de loi d'échelle du type

$$f_p / f_{pmax} = \mathcal{F}(H/H_{c2})$$

c'est-à-dire que f_p ne peut se mettre sous la forme d'un produit d'une

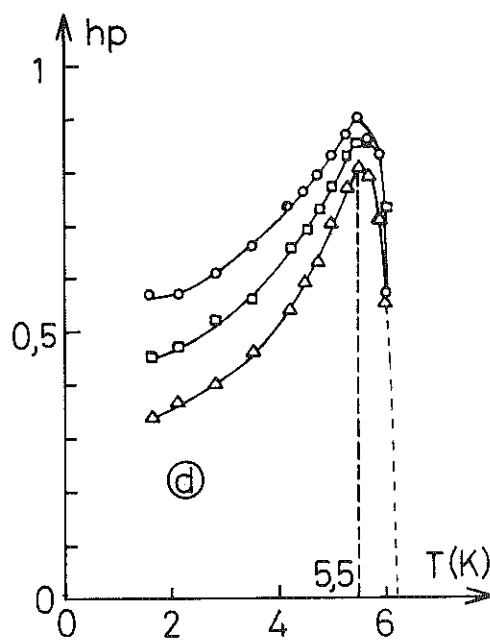
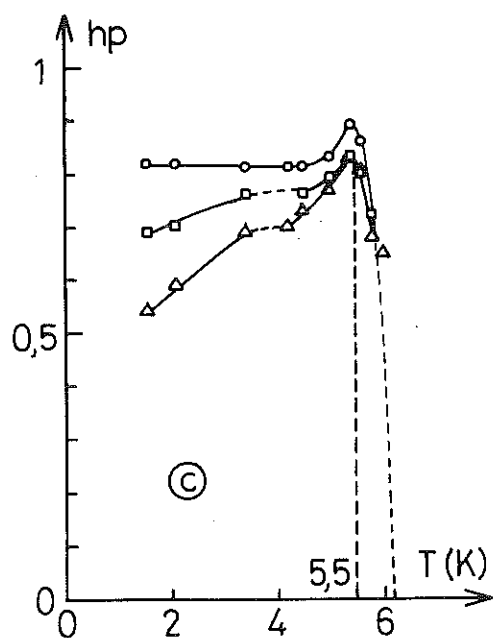
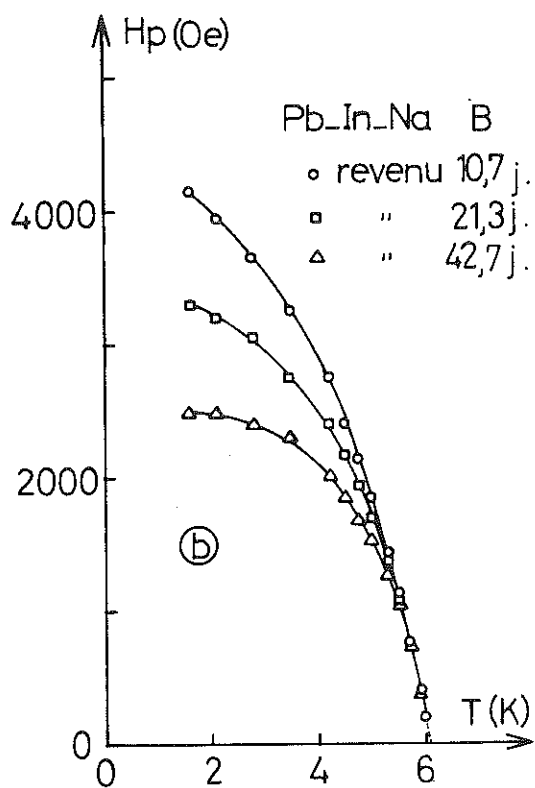
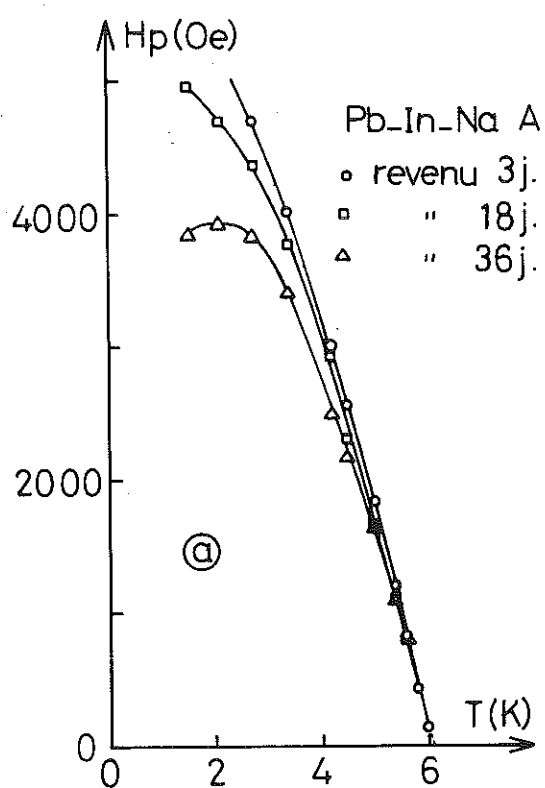


Fig. 11

fonction de la température seule et du champ magnétique réduit seul :

$$f_p \neq \mathcal{F}_1(Hc_2) \times \mathcal{F}_2(H/Hc_2)$$

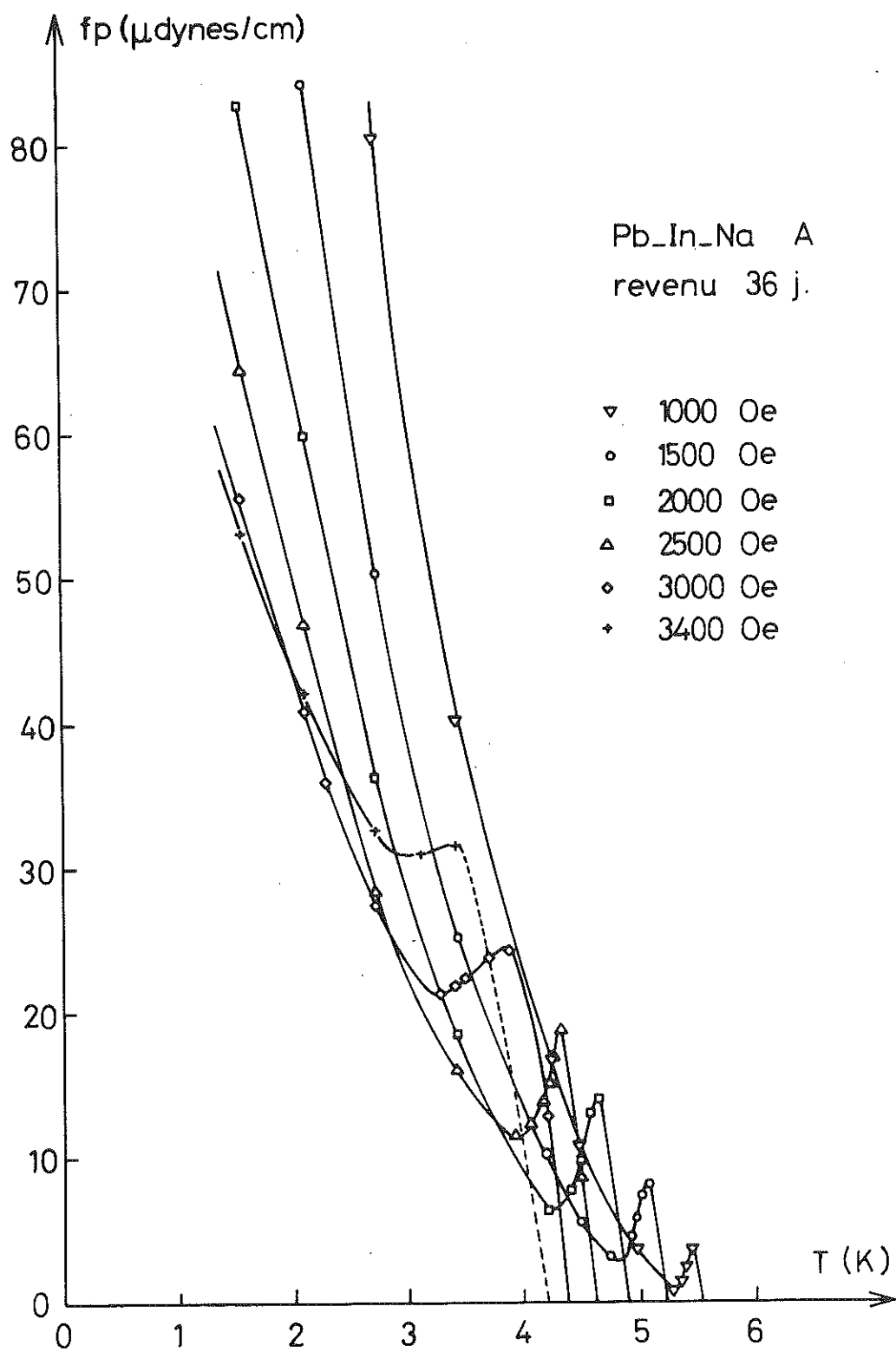
Nous avons vérifié que la force de piégeage par unité de volume $F_p = \frac{H}{\phi_0} f_p$ ne suit pas non plus de loi d'échelle comme cela a été constaté pour certains supraconducteurs (réf. 6, 23, 24). Cette absence de loi d'échelle en $h = H/Hc_2$ rend sans grande signification physique cette étude des variations thermiques de f_p à h constant.

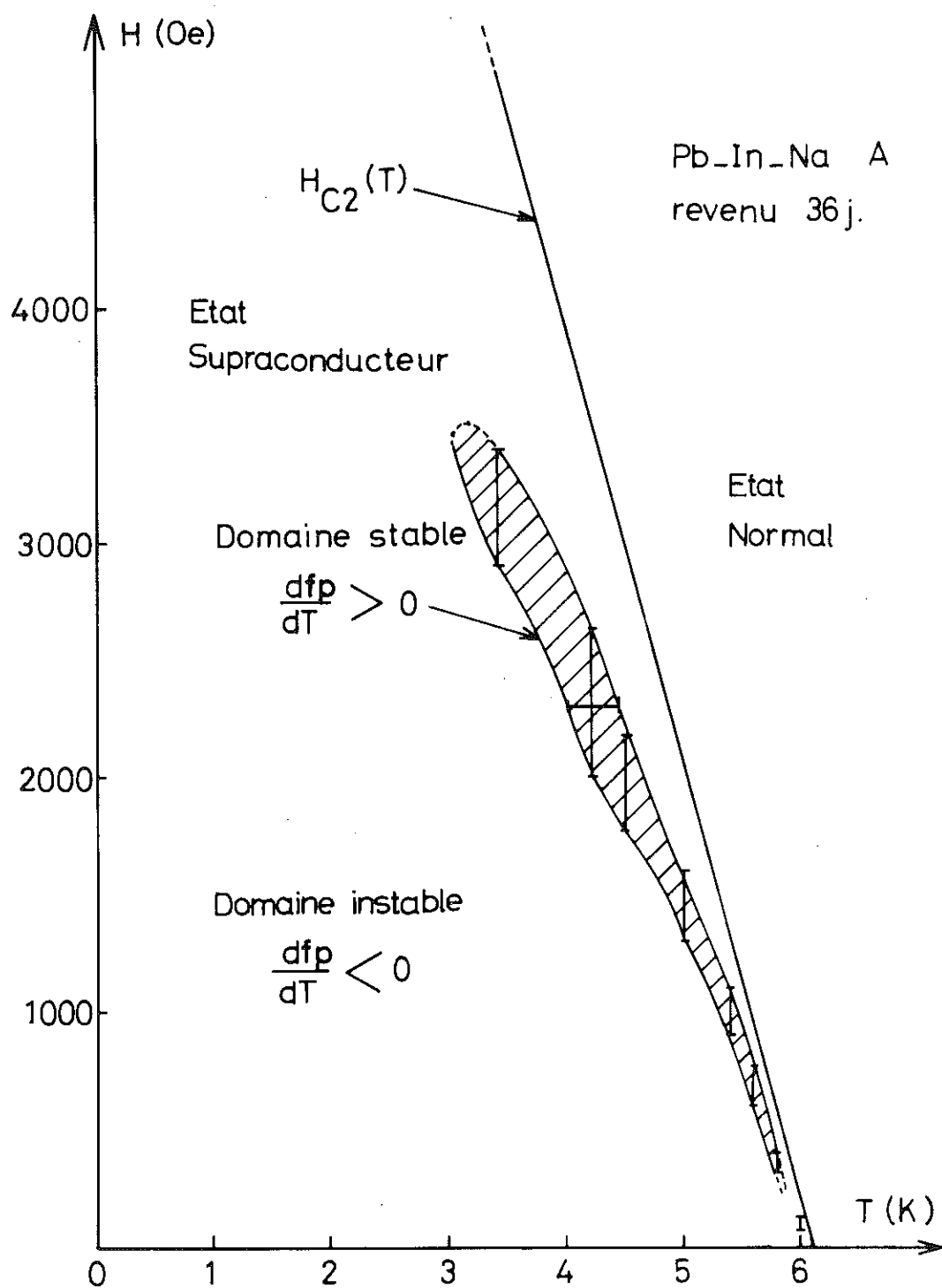
Courbes isochamp ; autostabilité :

D'après les figures 9 et 10, il apparaît que pour tous les échantillons, il existe un domaine de températures intermédiaires plus ou moins large où les pics des courbes $f_p(H)$ se recouvrent. Dans ce domaine de température, la pente $\frac{df_p}{dT}$ est positive et les alliages sont auto-stables (réf. 3) car les sauts de flux en avalanche ne peuvent se produire, même dans des conditions adiabatiques. A partir du réseau de courbes $f_p(H)$ isothermes, nous avons construit quelques courbes isochamp. La figure 12 montre ces courbes pour l'alliage A revenu 36 jours. On peut voir que f_p à H constant présente bien un "pic" en température.

Si on reporte dans un diagramme H.T., les intervalles où df_p/dT est positive, on obtient "le domaine d'autostabilité" du supraconducteur. C'est ce que montre la figure 13 pour l'alliage A revenu 36 jours. Dans le cas particulier représenté ici, la largeur du domaine à 4,2 K est de 0,4 K environ en température et de 600 Oe environ en champ, pour un champ appliqué de 2 300 Oe. Cela signifie que l'alliage soumis à un courant voisin de son courant critique à 4,2 K et sous un champ de 2 300 Oe pourra accepter des variations de température de $\pm 0,2$ K et de champ de ± 300 Oe sans redevenir normal.

Un tel comportement transposé dans des supraconducteurs plus performants que les alliages Pb-In-Na, pourrait présenter un intérêt technologique évident par exemple, dans le cas des machines tournantes où le supraconducteur subit des fluctuations de température et de champ autour de valeurs fixes.





Remarque :

On peut voir sur les figures 9 et 10 que la condition pour que les courbes $f_p(H)$ se recouvrent dans la région du pic, est que la pente du lieu des points d'inflexion sur les branches ascendantes des pics, soit inférieure à la pente des pics à ces points d'inflexion. Cette condition n'est satisfaite que si les pics sont suffisamment "raides", ce qui n'est pas nécessairement le cas pour tous les alliages supraconducteurs présentant un effet de pic en champ magnétique. Il faut à la fois que le champ de pic se déplace avec la température et que les pics soient suffisamment "raides" pour avoir autostabilité.

c) Variations avec la durée du revenu.

Comme nous l'avons déjà vu à propos de l'apparition du pic, à toute température le pic se déplace vers les bas champs et son amplitude augmente lorsque la durée du revenu augmente, c'est-à-dire, quand les précipités grossissent. La décroissance de H_p quand la durée du revenu augmente est bien visible sur les figures 11a et b. Nous pouvons aussi remarquer sur ces figures que pour des temps de revenu comparables, H_p est plus faible pour l'alliage B que pour l'alliage A moins concentré.

En comparant les figures 9a et b et 10a, b et c, on peut voir que la force de piégeage correspondant au sommet du pic, f_{pmax} , croît à chaque température avec le temps de revenu. Nous verrons plus loin que ceci n'est plus vrai pour les revenus de longue durée. Sur la figure 14, nous avons reporté pour l'alliage B, les valeurs de f_p à 4,2 K correspondant à diverses valeurs de H en fonction du temps de revenu t_r . Nous avons pris pour limite haut champ une valeur fixe du champ réduit ($h = 0,85$) plutôt qu'une valeur fixe de H , pour pouvoir faire figurer les échantillons qui ont subi un revenu de courte durée et pour lesquels H_{c2} varie encore notablement (voir fig. 5). La valeur de f_p correspondant à $h = 0,85$ pour l'échantillon trempé a été portée en pointillé sur la figure. On peut voir que les différentes courbes ont même allure et que f_p commence à croître pour une valeur déterminée du temps de revenu. Des courbes analogues pourraient être obtenues pour diverses valeurs de T , le temps de revenu nécessaire pour que f_p

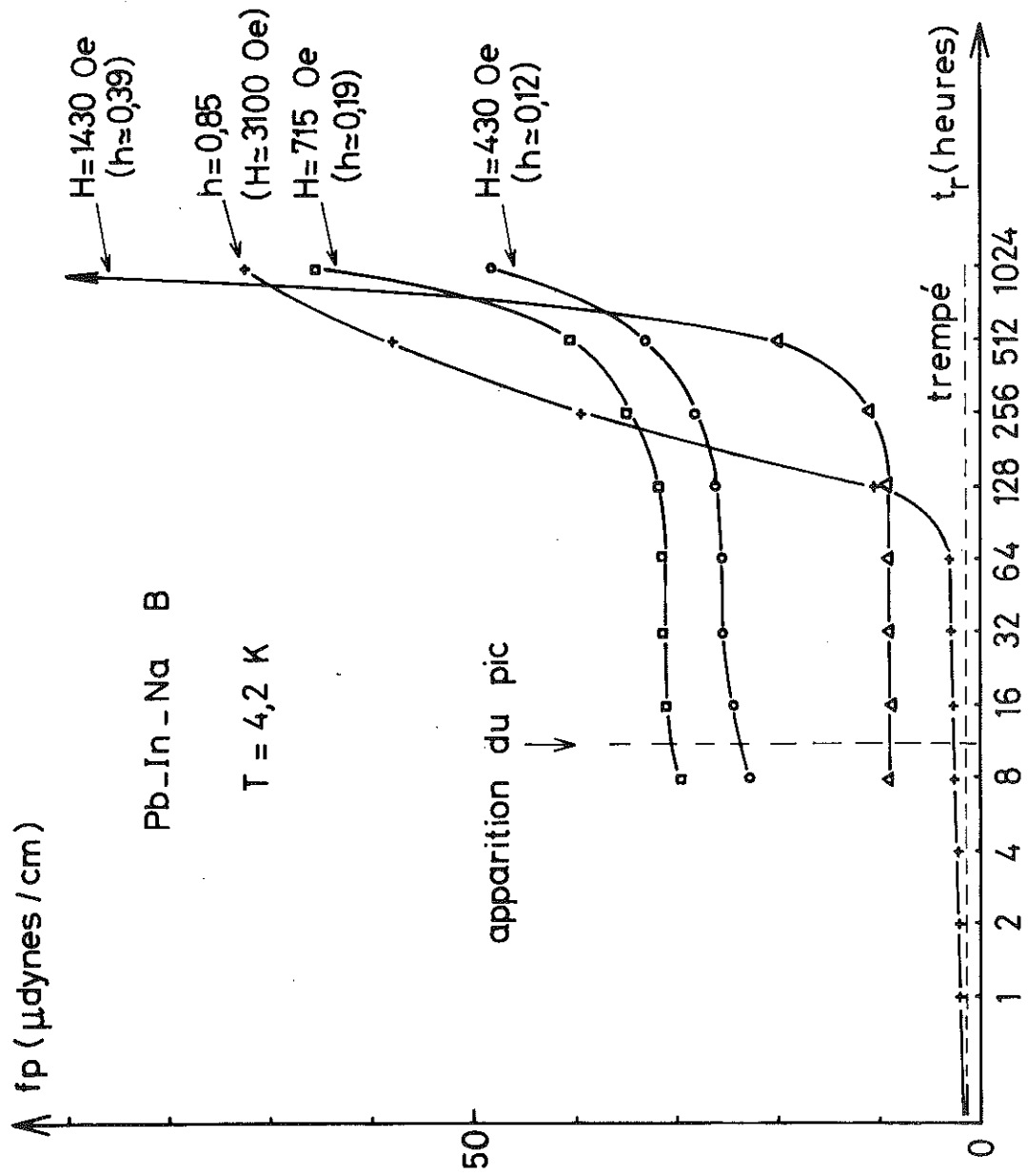


Fig. 14

commence à croître diminuant avec T . On constate essentiellement que f_p est remarquablement constante en fonction du revenu jusqu'à ce qu'elle commence à croître. On a donc à un champ magnétique appliqué et une température donnés, un temps de revenu "seuil", c'est-à-dire, une taille seuil pour les précipités, avant laquelle ils ne contribuent pas au piégeage.

Nous retrouvons là, sous une autre forme, la constatation faite plus haut lorsque nous avons discuté l'apparition de l'effet de pic : au début du grossissement des précipités, le piégeage en champ faible, loin du pic n'est pas modifié par le revenu alors que le pic grandit et se déplace vers les faibles champs. Comme nous le verrons plus loin, cette constatation permet d'éclairer considérablement l'interprétation physique de l'effet de pic.

3 - REVENUS DE LONGUE DUREE

Sur la figure 15, ont été reportées les valeurs de $f_p(H)$ à 4,2 K pour l'alliage A à divers stades de revenu depuis l'état trempé. On remarque que le pic augmente jusqu'à 36 jours de revenu puis décroît pour les temps de revenu plus élevés. Par contre, on peut voir qu'à bas champs f_p croît régulièrement en fonction de la durée du revenu. La figure 16 montre la variation de $f_p(H)$ à diverses températures pour l'alliage A revenu 160 jours. En comparant aux figures 9a et 9b, on peut voir que le comportement de $f_p(H)$ est qualitativement le même que celui des échantillons revenus moins longtemps, pour les températures supérieures à 4,50 K. Par contre, pour les températures inférieures à 4,98 K, l'amplitude du pic se met à décroître avec la température et H_p se rapproche de H_{c2} , à l'inverse des échantillons revenus moins longtemps. On peut remarquer aussi que en bas champs ($H < 2\ 000\ Oe$) f_p croît régulièrement lorsque T décroît, comme pour les échantillons revenus moins longtemps. Il semble donc que "l'anomalie" de comportement de $f_p(H)$ soit plus liée à la valeur du champ magnétique appliqué qu'à la température. Pour $H > 2\ 000\ Oe$, f_p décroît anormalement vite en fonction de H .

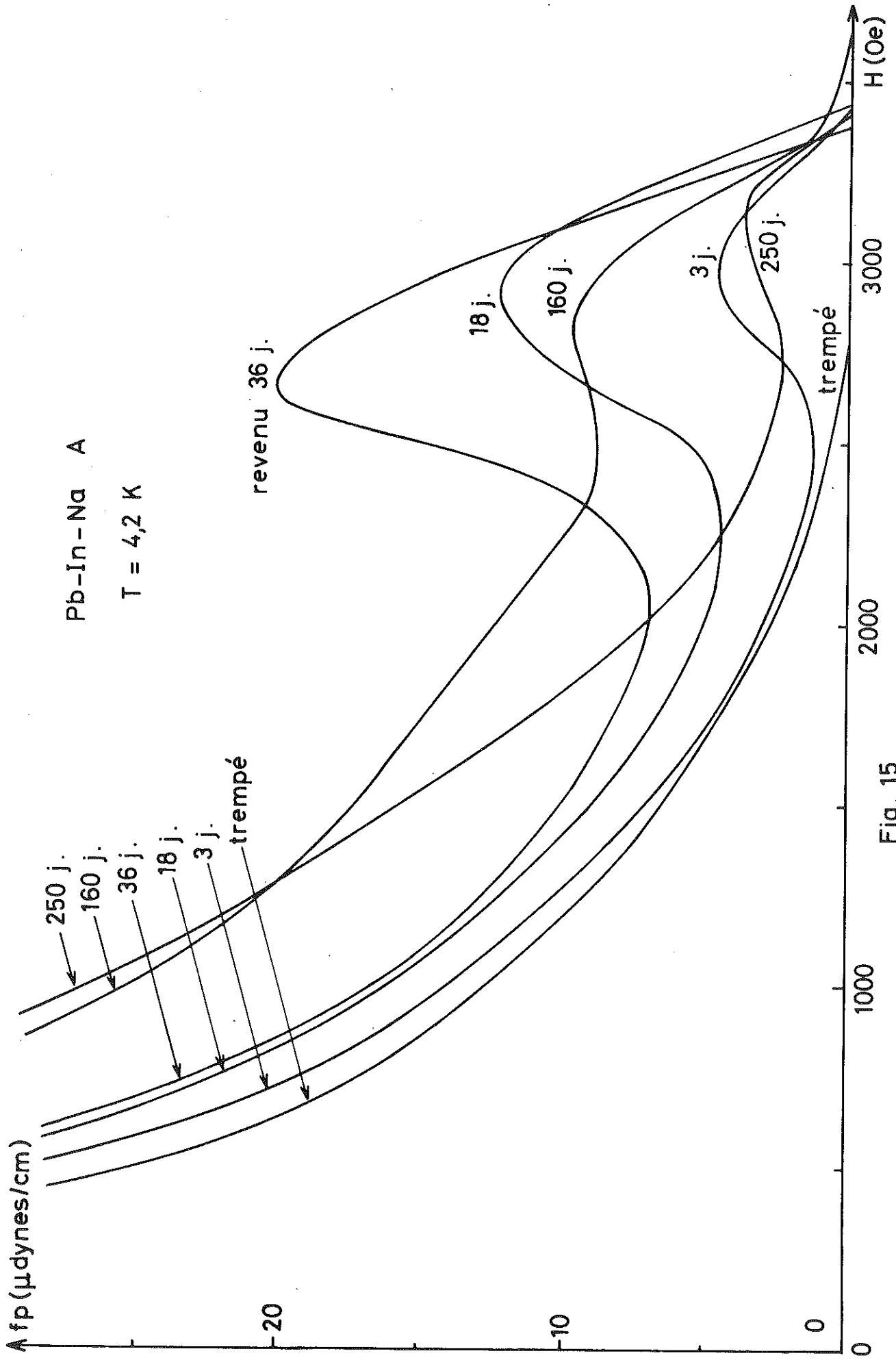


Fig. 15

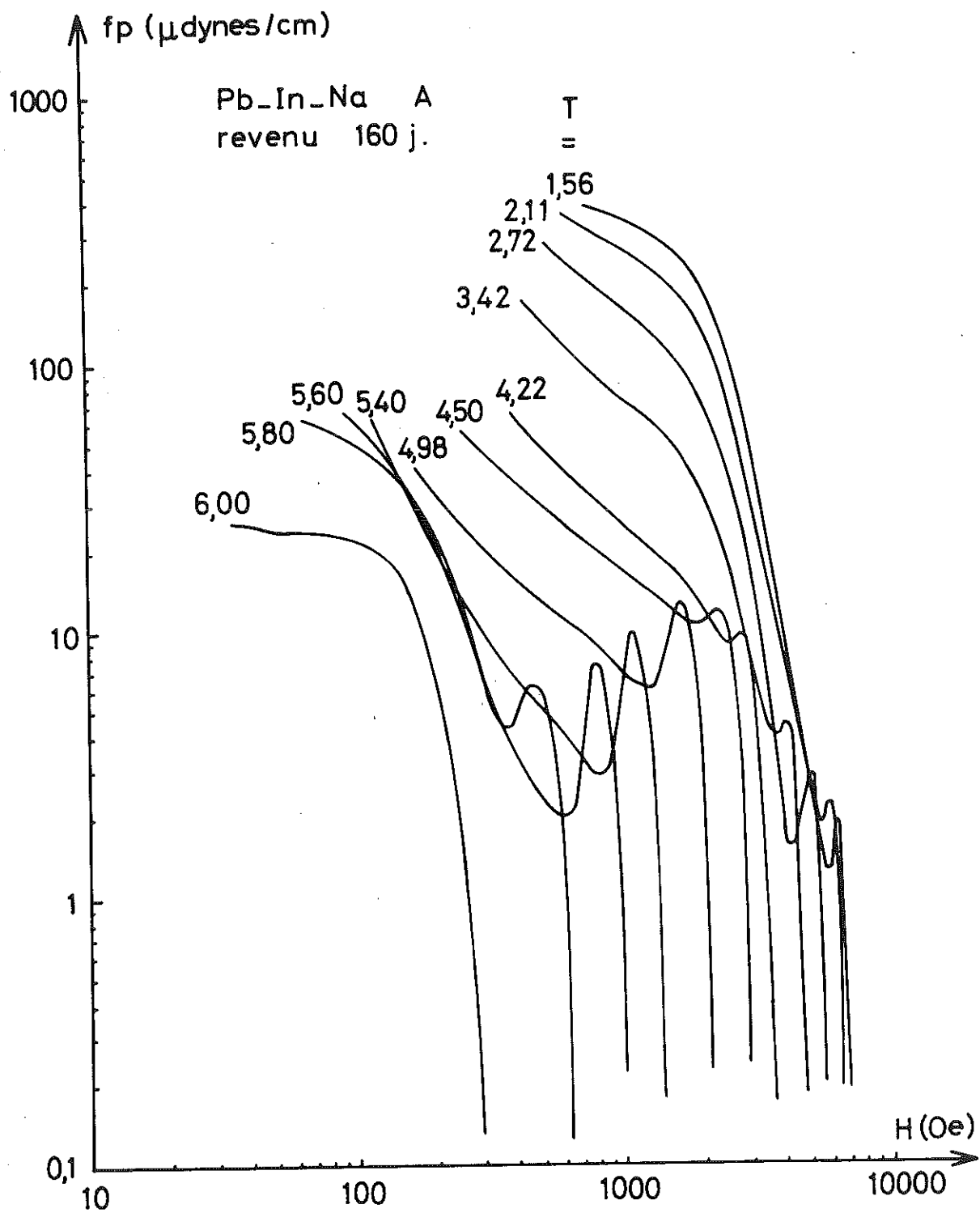


Fig. 16

Les courbes $f_p(H)$ aux mêmes températures de l'échantillon revenu 250 jours ont même allure, "l'anomalie" se produisant pour un champ plus faible ($H \approx 1\,500\text{ Oe}$) et une température plus élevée (comprise entre 4,98 K et 5,40 K).

Sur la figure 17, nous avons tracé les courbes $-4\pi M(H)$ à 4,2 K en champ croissant pour l'alliage C, à différents stades de revenu allant jusqu'à 679 jours, car on peut voir qu'ici le pic a continué à grandir et à se déplacer vers les faibles champs jusqu'à des temps de revenu aussi élevés que 280 jours, au point que le pic est à peine discernable. Pour le revenu suivant, 679 jours, une deuxième bosse apparaît vers 2 600 Oe. Sur la figure 18, nous donnons pour le même échantillon revenu 679 jours, $M(H)$ à quelques températures au-dessus de 4,22 K. Les deux bosses, bien marquées à 4,22 K, se confondent vers 4,75 K pour n'en donner plus qu'une bien marquée à 5,50 K qui disparaît à son tour entre 5,70 K et 5,90 K.

Ainsi les deux alliages A et C ont des comportements très différents pour les revenus de longue durée, tant en ce qui concerne l'évolution du pic avec la température, qu'avec la durée du revenu. Il est clair que ces changements dans l'évolution du pic sont liés à des modifications structurales que nous n'avons malheureusement pas pu observer : perte de cohérence et coalescence des précipités, apparition de nouvelles structures de croissance de la phase précipitée, modifications qui dépendent généralement de la concentration des alliages.

La diversité des résultats obtenus pour les revenus de longue durée, sur des alliages pourtant très proches du point de vue structural, montre à quel point le piégeage des vortex est sensible à de faibles variations structurales au niveau des pièges que sont les précipités. Cela laisse penser que non seulement la taille et la distribution des précipités interviennent, mais aussi que le détail de l'interface précipité-matrice qui conditionne le potentiel d'interaction vortex précipité, joue un grand rôle.

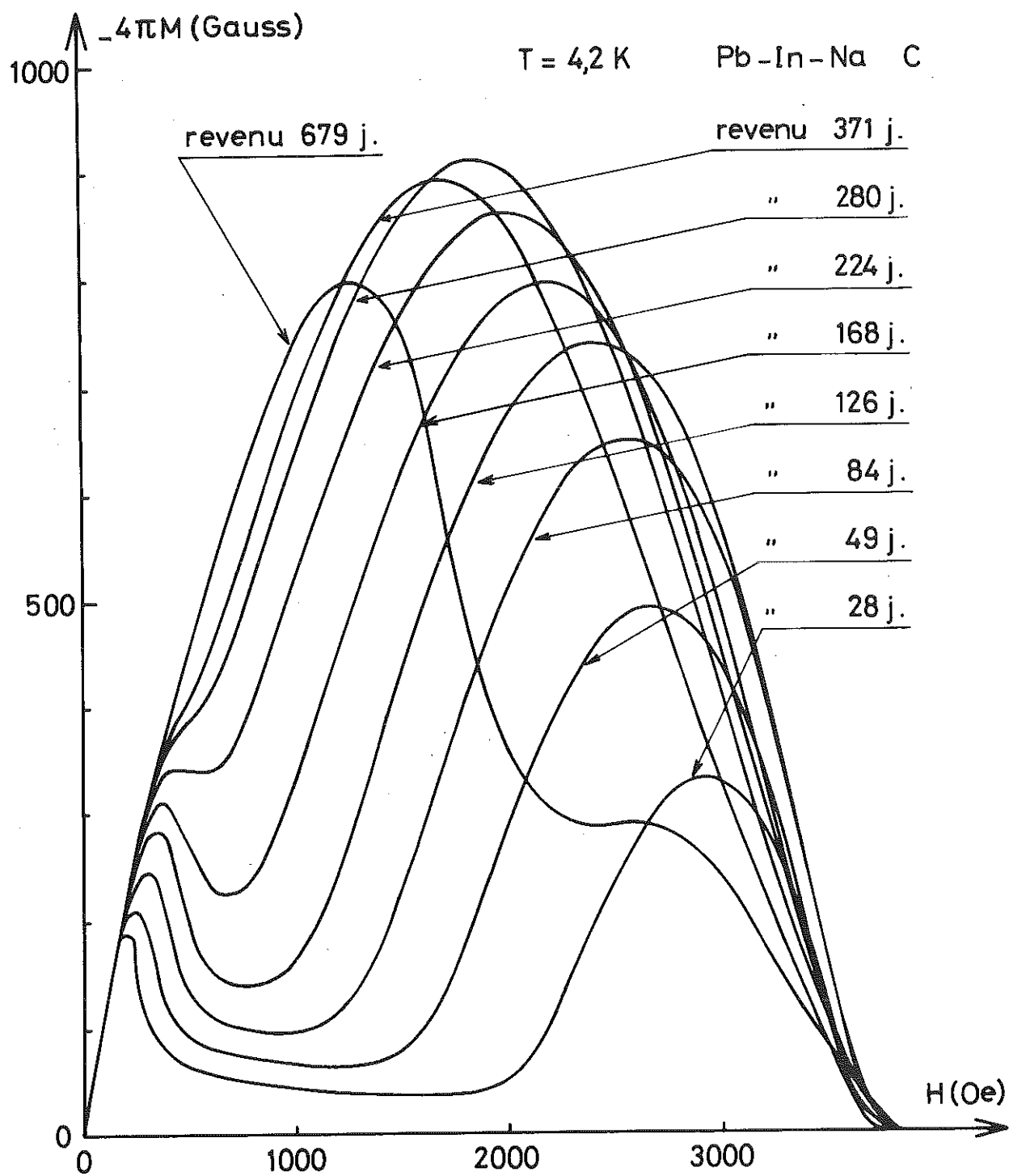


Fig. 17

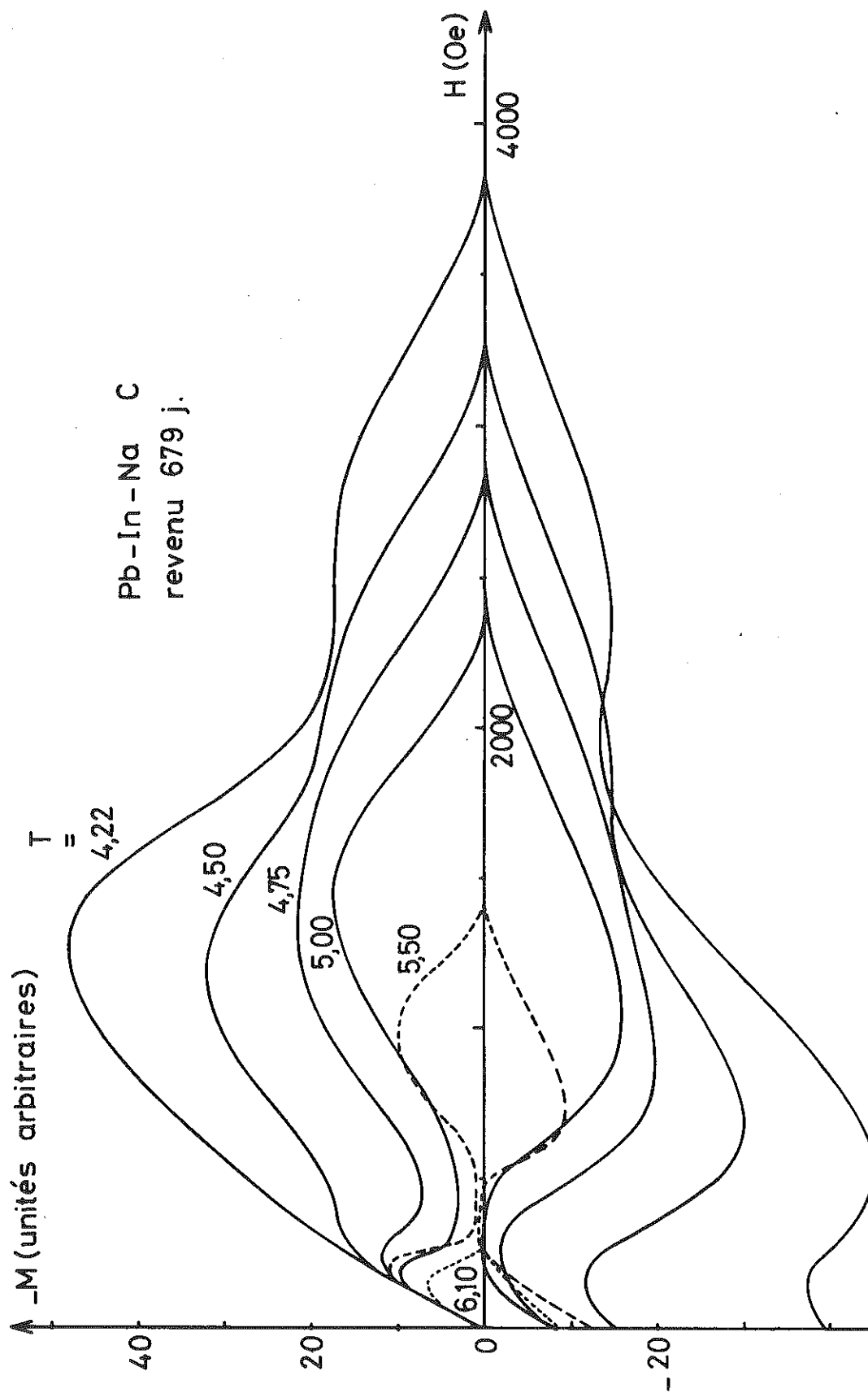


Fig. 18

TROISIEME PARTIE

DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS

La force de piégeage par unité de volume d'échantillon est la somme des forces d'interactions entre les pièges et les vortex :

$$F_p = \sum_{i=1}^n f_i$$

où f_i est la force d'interaction piège-vortex et n le nombre d'interactions.

Si on attribue à chaque interaction piège-vortex une force moyenne $\overline{f_o}$, on aura $F_p = n \overline{f_o}$ (11) et pour la force moyenne par unité de longueur de vortex :

$$f_p = \frac{F_p}{N} = \frac{n}{N} \overline{f_o} \quad (12)$$

où $N = \frac{\sqrt{3}}{2} \frac{B}{\phi_o}$ est la densité de vortex par unité de surface perpendiculaire aux vortex ou la longueur totale de vortex par unité de volume de matériau (B est l'induction moyenne dans le matériau et ϕ_o le quantum de flux).

Si on se place dans le cas simple de pièges distribués au hasard dans le matériau et de vortex parfaitement rigides, n va être donné par la probabilité de rencontre piège-vortex. Les positions relatives des pièges et des vortex étant au hasard, nous aurons autant de forces positives (dans le sens du déplacement des vortex) que négatives, s'exerçant sur les vortex avec des valeurs moyennes identiques ; dans ces conditions $\overline{f_o}$ et F_p seront statistiquement nulles.

Dans les matériaux où on observe une force de piégeage non nulle, il faut donc admettre que les pièges en interaction ne sont pas distribués au hasard par rapport aux vortex. Cela implique ou bien que la distribution des pièges dans le matériau n'est pas au hasard, ou bien que les vortex adoptent sous l'effet des interactions, une configuration qui dissymétrise ces interactions (réf. 6).

Si des pièges identiques sont distribués au hasard dans un matériau, le nombre de pièges rencontrés par un vortex, qu'il soit

rigide ou non, ne dépend pas de la position du vortex dans le matériau, aux fluctuations statistiques près qui sont négligeables pour un échantillon massif. Toute déviation à une distribution des pièges au hasard conduit donc à un nombre d'interactions pièges-vortex qui dépend de la position du vortex dans le matériau. Une telle déviation, si faible soit-elle, revient structuralement à "aligner" un certain nombre de pièges suivant une direction parallèle aux vortex. Comme dans un matériau réel un tel alignement des pièges ne peut se réaliser que selon certaines directions cristallographiques, la force de piégeage va être anisotrope et passer par un maximum lorsque les vortex (et par conséquent le champ magnétique appliqué) seront parallèles à ces directions. Nous disposons donc là d'un moyen pour vérifier expérimentalement si la distribution des pièges est au hasard ou non dans nos alliages.

Nous avons réalisé l'expérience en mesurant l'aimantation d'un disque découpé dans nos lamelles. Le champ magnétique appliqué étant parallèle aux forces du disque, nous avons étudié l'influence sur l'aimantation d'une rotation du disque autour de son axe perpendiculaire au champ. Dans ces conditions, le coefficient de champ déaimantant reste constant et si l'aimantation est isotrope, elle ne doit pas dépendre de l'angle dont on a fait tourner le disque. C'est effectivement ce que nous avons obtenu pour des rotations allant jusqu'à 180°.

Nous pouvons donc conclure à la lueur de cette expérience que la distribution des pièges est bien au hasard dans nos alliages, et qu'en conséquence l'existence de la force de piégeage est seulement liée à la "déformabilité" du réseau de vortex qui introduit une dissymétrie dans les forces d'interaction piège-vortex comme nous le détaillerons plus loin.

Les très nombreuses mesures de densité de courant critiques J_c , qui ont été effectuées sur les matériaux supraconducteurs les plus divers, montrent que généralement f_p (qui est proportionnelle à J_c selon $\vec{f}_p = -\vec{J}_c \wedge \vec{\phi}_0$) décroît d'une manière monotone avec H et T . L'anomalie que constitue l'effet de pic de f_p , réside donc dans la croissance de f_p avec H et T dans un certain domaine de champ et de température. Nos résultats expérimentaux indiquent que cette "remontée" de f_p dans nos

alliages est assez raide aux températures élevées comme s'il s'agissait d'une transition. Pour rechercher la cause de l'effet de pic dans nos échantillons, nous allons donc examiner successivement dans quelles conditions une "transition" peut intervenir sur $\overline{f}_0$ ou sur n et voir si une telle transition peut se déplacer en champ et température conformément à l'évolution constatée expérimentalement lorsqu'on fait grossir les précipités par traitement thermique.

C H A P I T R E I

VARIATIONS DE LA FORCE D'INTERACTIONS $\overline{f_0}$

Aucune théorie unique de la force d'interactions entre un précipité et un vortex n'a été établie jusqu'ici en raison de la superposition de plusieurs mécanismes possibles d'interaction qui font intervenir un grand nombre de paramètres et dépendent tous d'une manière compliquée de la taille de la particule (réf. 25).

Tout d'abord, le précipité constitue une région où les propriétés supraconductrices sont différentes de celles de la matrice. Pour les précipités qui ont des dimensions de l'ordre de ξ , ce qui est vraisemblablement notre cas, on peut négliger les interactions électromagnétiques de portée λ ($\lambda \gg \xi$) et l'énergie d'interaction va provenir essentiellement de la différence ΔE_c des énergies de condensation nécessaires pour créer l'âme normale du vortex lorsqu'il est situé dans la matrice ou sur le précipité : c'est le "piégeage de coeur" ou "core pinning" (réf. 6). ΔE_c va dépendre de la densité d'électrons supraconducteurs dans la matrice et dans le précipité. Si on pouvait considérer que la densité d'électrons supraconducteurs dans le précipité est la même que ce qu'elle serait dans la phase précipitée massive, ΔE_c serait simplement par unité de volume la différence des énergies de condensation entre les deux phases :

$$\Delta E_c = \frac{1}{8\pi} (H_{c_m}^2 - H_{c_p}^2)$$

où H_{c_m} est le champ critique thermodynamique de la matrice et H_{c_p} celui de la phase précipitée.

Remarque :

Dans le cas où la phase précipitée est normale à la température considérée,

$$H_{c_p} = 0 \quad \text{et} \quad \Delta E_c = \frac{H_{c_m}^2}{8\pi}$$

L'énergie d'interaction est donc plus grande quand le précipité est normal que quand il est supraconducteur.

En fait, quand les précipités ont des tailles de l'ordre de ξ , ils sont soumis à l'effet de proximité de la matrice qui tend à aplanir la différence entre les densités des électrons supraconducteurs des deux phases. L'énergie de condensation dans le précipité dépend alors, en plus des paramètres supraconducteurs de la phase précipitée massive et de la matrice, de la géométrie du précipité, de ses dimensions et probablement de la nature de l'interface précipité-matrice. Aucune théorie n'a été faite jusqu'ici des effets de proximité à trois dimensions dans une particule noyée dans une matrice supraconductrice.

Deux autres mécanismes d'interaction proviennent du fait que nos précipités sont cohérents avec la matrice, donc entourés d'un champ de contraintes élastiques provenant de la différence des volumes spécifiques des deux phases. Ce champ de contraintes va interagir avec un vortex pour deux raisons. D'abord l'âme normale du vortex est une région contractée par rapport à la région supraconductrice qui l'entoure, en raison de la variation du volume spécifique du matériau entre l'état normal et l'état supraconducteur. Ce champ de déformation va interagir avec le champ de contrainte entourant le précipité ("effet ΔV " : réf. 6 et 25). Une dernière raison d'interaction est que l'énergie élastique stockée par le précipité dépend des constantes d'élasticité de la matrice qui l'entoure ; elle sera différente si cette matrice est normale (c'est-à-dire lorsque l'âme du vortex sera sur le précipité) ou supraconductrice (lorsque l'âme du vortex sera loin du précipité). Cet effet est dit "effet ΔE " (réf. 25). Le calcul de ces interactions est fort compliqué et a été fait essentiellement dans le cas des dislocations (réf. 25). Des estimations des différentes énergies d'interaction peuvent néanmoins être

faites et FREYHARDT (réf. 26) les a évaluées dans le cas de précipités de Pb_3Na dans une matrice $Pb-Na$, système d'alliages proche du nôtre. Il trouve que les énergies d'interaction élastique (effets ΔV et ΔE) et l'énergie d'interaction par condensation dans l'âme normale du vortex, en négligeant les effets de proximité, sont du même ordre de grandeur. Rien ne permet donc d'affirmer que dans nos alliages l'un des mécanismes possibles d'interaction est prédominant.

Il nous faut donc examiner pour chaque mécanisme les possibilités de variation rapide de la force avec H et T . Aucun des paramètres structuraux qui interviennent dans l'interaction élastique (module de cisaillement et compliance de la matrice) ne semblent pouvoir subir de variations brutales avec le champ magnétique et la température (réf. 26). Les interactions élastiques ne peuvent donc expliquer une "transition" de f_m .

Il n'en est pas de même pour le "piégeage de coeur". Si la phase précipitée est supraconductrice à l'état massif ou rendue supraconductrice par effet de proximité, on n'observera pas dans le cas général, de transition vers l'état normal des précipités, le paramètre d'ordre dans les précipités variant d'une manière monotone avec H et T ainsi que ΔE_c . Bien que dans certaines conditions particulières de dimension des particules $d \sim 4 \frac{\xi_N}{K}$ (où ξ_N est la longueur de cohérence dans le précipité) BURGER et DEUTSCHER (réf. 27) prévoient une force de piégeage croissant en H^2 , cet effet ne peut expliquer la raideur observée pour le pic dans nos échantillons. Par contre, il existe un cas où une transition du premier ordre a été observée dans un bilame supraconducteur-normal (réf. 28, 29) pour un champ H_B dit "champ de basculement". Cette transition se produit quand l'épaisseur du film normal d_N est de l'ordre de ξ_N . ξ_N étant fonction de T

$$\xi_N(T) = \frac{\hbar v_N \lambda_N}{6\pi k_B T} \quad : \text{réf. 30),}$$

La transition n'existe qu'au-dessous d'une température T^* fonction de d_N (réf. 29). La théorie et l'expérience (réf. 28) montrent que H_B décroît lorsque d_N augmente à température constante et décroît lorsque T augmente à d_N constant. Ce comportement est qualitativement analogue

à celui du champ de pic H_p de nos échantillons (fig. 11a et b). Par contre, nous n'observons pas l'équivalent de $T^* < T_c$ pour nos alliages où le pic s'observe dans tout le domaine de température étudié, même très près de T_c . Faute de pouvoir évaluer ξ_N dans nos précipités dont nous ne connaissons pas la nature exacte, et faute d'une théorie à trois dimensions correspondant mieux au cas de nos alliages, il n'est pas possible au vu de simples analogies qualitatives partielles, de conclure que l'effet de pic observé dans nos alliages, est dû à une transition S - N des précipités.

Pour confirmer ou infirmer cette hypothèse, nous avons cherché à détecter expérimentalement cette éventuelle transition qui doit affecter la phase précipitée, c'est-à-dire de l'ordre de 5% du volume de nos échantillons. La seule méthode relativement sûre est une mesure calorimétrique. En effet, comme nous l'avons dit plus haut, la transition est du premier ordre et il doit donc lui être associée une chaleur latente détectable calorimétriquement. L'expérience qui a été faite sur l'alliage A est décrite dans l'annexe I (réf. 31). Malgré la grande sensibilité obtenue, nous n'avons pas détecté d'anomalie thermique qui puisse être attribuée à une transition S - N des précipités. Cette hypothèse qui avait été avancée après les mesures préliminaires pour expliquer l'effet de pic observé dans nos alliages (réf. 1) ne peut donc être retenue.

En l'absence de transition S - N brutale des précipités, on peut admettre que le paramètre d'ordre ne varie pas trop au niveau des précipités. Dans ce cas-là, on peut faire appel pour avoir une idée de la force due à "l'effet de coeur" à une méthode de perturbation sur l'énergie libre du réseau de vortex de Ginzburg-Landau. Si la perturbation est très faible (se traduisant seulement par une variation locale de κ) CAMPBELL et EVETTS (réf. 6) proposent une expression de la forme

$$f_m \propto V H^{1/2}_{c2} \left(1 - \frac{H}{H_{c2}}\right) \delta H_{c2}$$

où V est le volume du précipité et δH_{c2} la variation de H_{c2} entraînée par la variation locale de κ . Si la perturbation est plus forte

(variation importante du paramètre d'ordre) ils proposent

$$f_m \propto V H^{3/2} H_{c2} \left(1 - \frac{H}{H_{c2}} \right)$$

D'autres auteurs calculent d'autres formes de variation telles que (réf. 32)

$$f_m \propto H_{c2} \left(1 - \frac{H}{H_{c2}} \right)^2 \text{ pour des précipités normaux,}$$

ou $f_m \propto H \left(1 - \frac{H}{H_{c2}} \right) \delta K$ pour une simple variation locale δK de K .

Ces expressions approximatives conduisent à des variations sensiblement différentes de $\overline{f}_0$ avec H et T . Néanmoins elles traduisent toutes le fait que $\overline{f}_0$ est décroissante avec H et T en champ fort ($H \gtrsim \frac{H_{c2}}{2}$) ce qui est plausible physiquement car le paramètre d'ordre décroît en champ fort comme $H_{c2} \left(1 - \frac{H}{H_{c2}} \right)$ et l'énergie des vortex comme $H_{c2}^2 \left(1 - \frac{H}{H_{c2}} \right)^2$.

A partir de ces considérations générales, on peut donc s'attendre à ce que $\overline{f}_0$, quelle que soit son origine, interaction "de coeur" ou interaction élastique, décroisse en champ fort en fonction de H comme $\left(1 - \frac{H}{H_{c2}} \right)^n$ et en fonction de T comme $(T_0 - T)^n$ avec $1 \lesssim n \lesssim 2$.

C H A P I T R E I I

VARIATION DU NOMBRE EFFECTIF D'INTERACTIONS

La théorie générale de la sommation des forces d'interaction pièges-vortex pour une distribution au hasard des pièges a été établie dans le cas statique par LABUSCH (réf. 33). Par la suite, d'autres approches dynamiques du problème ont donné des résultats analogues (réf. 6). Nous donnons en annexe II un calcul simplifié de f_p dans le cas statique qui nous intéresse ici (réf. 34). Ce calcul présente l'avantage de mettre plus clairement en évidence que la théorie de Labusch, les paramètres physiques qui déterminent le nombre d'interactions n . Il montre en particulier que

1°) quel que soit le potentiel d'interactions piège-vortex, la condition générale $\frac{df}{dx} > k$ (18) dite "seuil de piégeage" doit être remplie par les pièges pour qu'il y ait une "instabilité mécanique" lors de l'interaction piège-vortex et que n et f_p ne soient pas nuls ($\frac{df}{dx}$ est le gradient de la force d'interaction et k caractérise le rappel élastique du réseau de vortex, c'est-à-dire la force nécessaire pour provoquer un déplacement unité de l'unité de longueur de vortex.

2°) le paramètre physique principal régissant le nombre des interactions effectives est le déplacement de l'élément de vortex soumis à la force maximale d'interaction : $u_m = \frac{f_m}{k}$ (19).

3°) dans le cas de pièges remplissant la condition (18), f_p est essentiellement donnée par la relation :

$$f_p \approx (2d) N_p f_m u_m = (2d) N_p \frac{f_m^2}{k} \quad (20)$$

où $(2d)$ est la largeur du potentiel d'interaction, N_p la concentration des pièges et où les autres termes dépendant de la forme du potentiel

d'interaction ont été omis car ils deviennent négligeables lorsque u_m devient supérieur à d .

La relation (20) donne f_p pour un vortex placé au milieu d'une distribution de pièges au hasard. Pour l'appliquer à un réseau de vortex, il faut que la largeur du potentiel (2d) et les déformations u_m soient inférieures à la distance entre vortex a_0 , soit

$$2d < a_0 \quad (21) \text{ et } u_m < a_0 \quad (22)$$

De plus, pour qu'elle soit valable, il faut qu'on puisse considérer que les pièges agissent indépendamment les uns des autres, c'est-à-dire que les déformations u_m ne se recouvrent pas entre pièges voisins. Or on a, dans le cas d'une force ponctuelle appliquée au vortex (réf. 6),

$$u_m \propto \frac{f_m}{\mu_e a_0} \quad (23)$$

où μ_e est le module de rigidité effectif du réseau de vortex. Donc pour que le déplacement u_m dû à un piège soit négligeable (par exemple divisé par 10) au niveau du piège premier voisin situé à une distance ℓ , il faut que $\ell > 10 a_0$ (24). La condition (24) peut être prise comme "critère de dilution" (réf. 6) pour qu'on puisse appliquer la relation (20).

Si nous assimilons les précipités dans nos alliages à des pièges, c'est-à-dire, si nous supposons qu'ils remplissent la condition (18), nous ne pourrions appliquer la relation (20), que s'ils remplissent les conditions (21), (22) et (24).

Nous avons vu que les précipités sont petits, leur diamètre D étant de l'ordre de ξ_0 . On peut donc aisément admettre que si on assimile (2d) à D , les conditions (21) et (22) sont remplies. Par contre, nous avons vu page 29 que la distance moyenne entre précipités dans nos alliages les moins concentrés (alliage A) est de l'ordre de 1,3 D . Alors la condition (24) qui devient :

$$\bar{\ell} = 1,3 D > 10 a_0 \quad \text{soit } D > \frac{10 a_0}{1,3}$$

est incompatible avec la condition (21) : $D < a_0$. L'expression (20) ne peut donc être appliquée à nos alliages si on considère que les précipités individuels constituent les pièges car alors nous avons affaire à un système de pièges concentrés.

Jusqu'ici le seul modèle de piégeage, applicable à un système de pièges concentrés, a été proposé par KRAMER (réf. 24). Cet auteur a démontré que lorsque des pièges ponctuels suffisamment rapprochés agissent simultanément sur un vortex, tout se passe comme si le vortex était soumis à une force uniformément répartie f_ℓ par unité de longueur ("line force"). Dans ce cas là, u_m représente le déplacement de l'ensemble du vortex par rapport à sa position d'équilibre dans le réseau et k ne dépend que de C_{66} , le module de cisaillement du réseau de vortex dans le plan perpendiculaire aux vortex. Pour pouvoir définir un déplacement du vortex par rapport à une position d'équilibre, il faut admettre qu'un nombre restreint de vortex seulement est soumis à une force f_ℓ , ou tout au moins, que la force f_ℓ varie suffisamment d'un vortex à l'autre pour créer des contraintes de cisaillement autour de "sites de piégeage fort". Sur ces bases, Kramer contruit un élégant modèle de piégeage pour rendre compte de lois d'échelles trouvées expérimentalement sur certains supraconducteurs, et le propose (réf. 7) pour expliquer l'effet de pic en général.

Néanmoins l'hypothèse d'une "line force" et de "sites linéaires" de piégeage dans un matériau contenant des pièges isotropes, revient à supposer que les pièges sont au moins partiellement "alignés" parallèlement aux vortex. Comme nous l'avons vu plus haut, une telle hypothèse doit entraîner une anisotropie de la force moyenne de piégeage (réf. 35), et ne peut donc s'appliquer à nos échantillons où l'on n'observe pas expérimentalement une telle anisotropie.

Faute d'une théorie générale applicable aux systèmes de pièges concentrés répartis au hasard, il nous reste à discuter la condition (18) qui, comme nous allons le voir, permet de fournir une explication qualitative valable à notre effet de pic.

SEUIL DE PIEGEAGE

Pour discuter la condition (18), il faut examiner comment peuvent varier k et $\frac{df}{dx}$ en fonction de H , T et D , le diamètre des précipités.

La réponse du réseau de vortex à l'application d'une force ponctuelle a été calculée par LABUSCH (réf. 33). Dans le cas général, elle dépend de la valeur moyenne du gradient de la force d'interaction dans tout l'échantillon, $\alpha = \langle \nabla U \rangle$, où U est le potentiel d'interaction par unité de longueur de vortex. Néanmoins si $\alpha \ll 4\pi C_{66}$, ce qui correspond aux cas usuels de piégeage, les termes en α deviennent négligeables pour $H_{c1} < H \lesssim H_{c2}$ et la réponse est alors indépendante de α . C'est l'approximation dite "de réseau" où k ne dépend que des propriétés élastiques du réseau de vortex, caractérisées par les trois modules de rigidité fondamentaux, C_{11} , C_{44} et C_{66} . On a alors :

$$k = \frac{4a_o \sqrt{\pi}}{\beta} \left[\frac{1}{(C_{44} C_{11})^{1/2}} + \frac{1}{(C_{44} C_{66})^{1/2}} \right]^{-1} \quad (25)$$

où $a_o = \beta \left(\frac{\phi_o}{B} \right)^{1/2}$ (avec $\beta = \left(\frac{2}{\sqrt{3}} \right)^{1/2} = 1,07$) est la maille du réseau de vortex.

Labusch a aussi calculé les différents modules (réf. 36 et 37) qui s'expriment (en UEM-CGS) par :

$$C_{11} \neq \frac{B^2}{4\pi} \frac{dH}{dB} \quad (26)$$

$$C_{44} = \frac{BH}{4\pi} \quad (27)$$

$$C_{66} = \begin{cases} \frac{1}{8\pi} \int_0^B x^2 \frac{d^2 H(x)}{dx^2} dx & \text{en champ faible } H \gtrsim H_{c1} \end{cases} \quad (28)$$

$$C_{66} = \begin{cases} 7,1 \cdot 10^{-3} \left(\frac{H_{c2}}{K} \right)^2 \left(1 - \frac{H}{H_{c2}} \right)^2 & \text{en champ fort } H \lesssim H_{c2} \end{cases} \quad (29)$$

Pour les champs faibles, BRANDT (réf. 38) a proposé pour C_{66} une expression explicite approchée

$$C_{66} \approx \frac{BH_c^2}{4\pi K^2} (0,118 - 7 \cdot 10^{-3} \frac{2\pi H_c^2}{K^2 B}) \quad (30)$$

L'intégrale de l'expression (28) s'écrit

$$\int_0^B x^2 \frac{d^2 H(x)}{dx^2} dx = B^2 \frac{dH}{dB} - \int_0^H 2 B(H) dH$$

Pour la calculer, il faut connaître la courbe $B(H)$ ou $M(H)$ réversible du supraconducteur (car $B = H + 4\pi M(H)$) d'où on déduira

$$\frac{dH}{dB} = \frac{1}{1 + 4\pi \frac{dM}{dH}}$$

A partir de la courbe d'aimantation expérimentale à 4,2 K de l'échantillon de l'alliage B revenu 128 h (figure 8), nous avons construit la courbe $M(H)$ réversible en supposant que $M \text{ rév.} = \frac{M\uparrow + M\downarrow}{2}$ où $M\uparrow$ et $M\downarrow$ sont respectivement les aimantations mesurées en champ croissant et décroissant. A l'aide des valeurs de $M(H)$ et de $\frac{dM}{dH}(H)$ relevées sur cette courbe, nous avons calculé C_{66} en champ faible par l'expression (28) et en champ fort par l'expression (29). Le résultat obtenu est donné sur la figure 19 où nous avons aussi reporté les valeurs obtenues avec l'expression (30).

Enfin, nous avons calculé k à partir de (25) et reporté sur la figure 20 l'allure de sa variation en fonction du champ réduit $h = H/H_{c2}$.

La variation thermique de k est en $H_{c2}^{3/2}$ aussi bien en champ fort où on a

$$k \propto \frac{H_{c2}^{3/2}}{K} \sqrt{h} (1 - h) \quad (31)$$

qu'en champ faible si on utilise la relation (30) pour C_{66} . k est donc continuellement décroissante lorsque la température augmente et l'allure de sa variation avec h doit rester à peu près celle qui a été

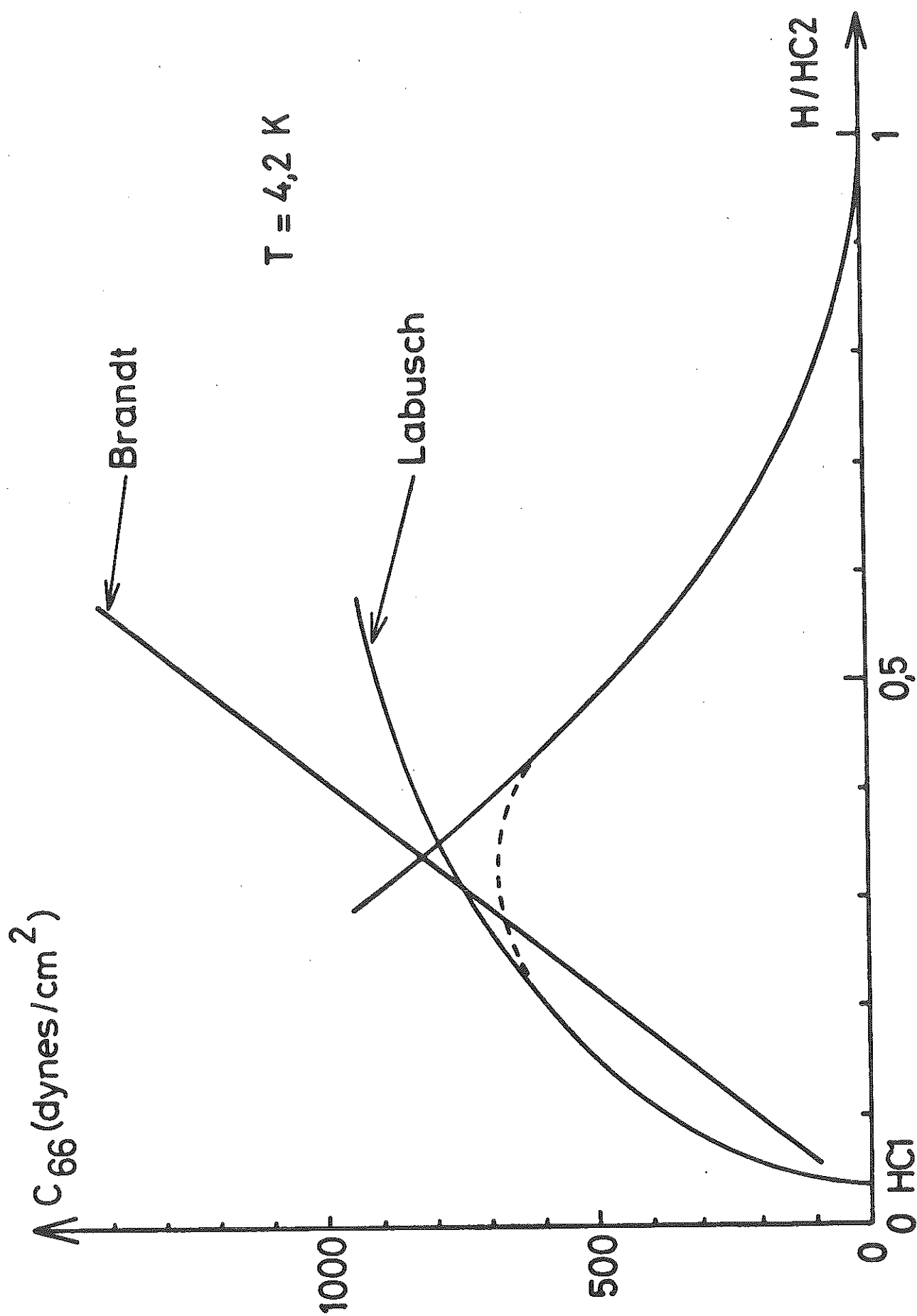


Fig. 19

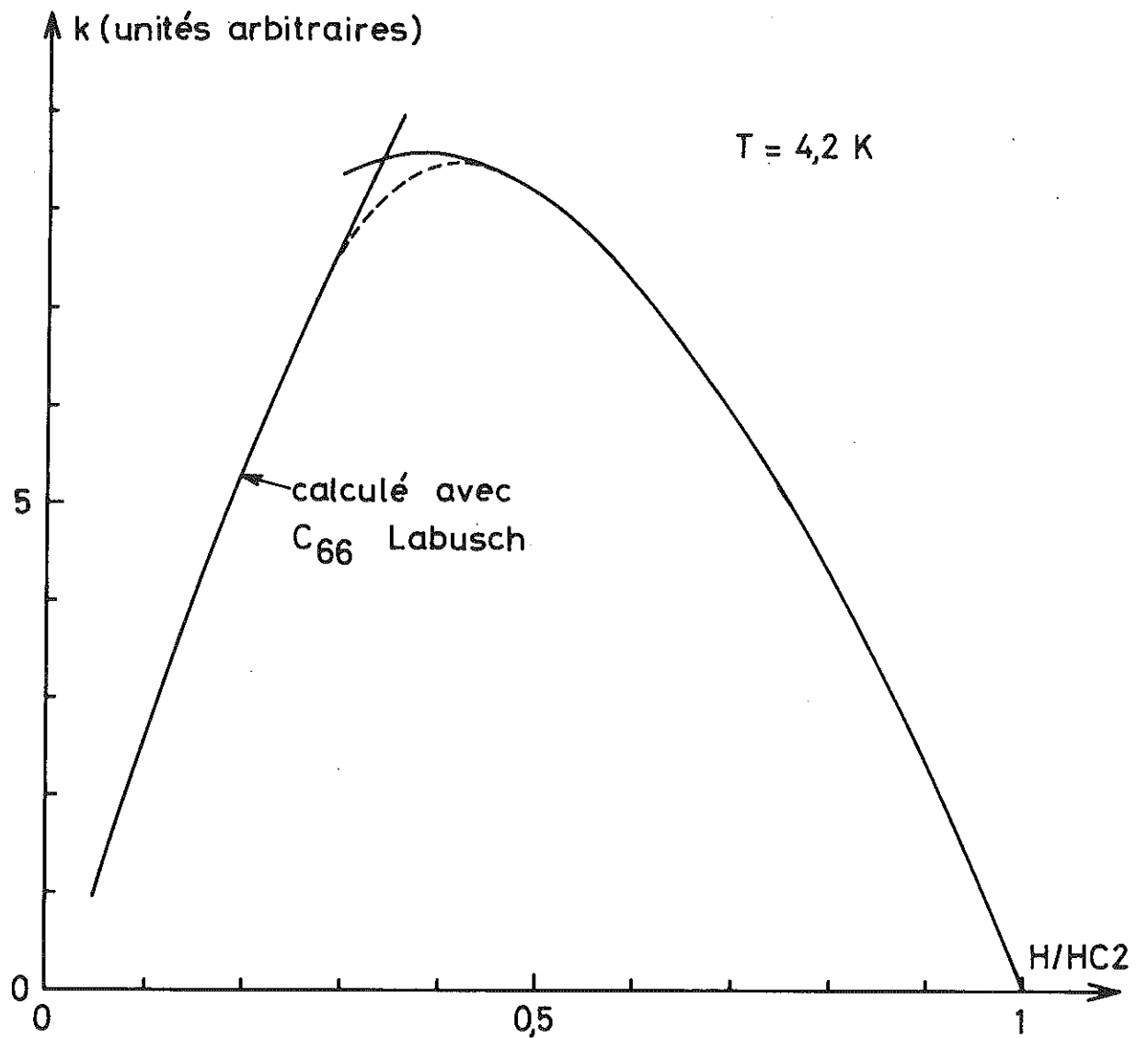


Fig. 20

calculée à 4,2 et qui est portée sur la figure 20.

Il est plus difficile de déterminer comment df/dx varie avec H , T et D puisqu'on ne connaît pas f_0 . Néanmoins on peut déterminer le sens de ses variations et discuter qualitativement la condition (18).

df/dx dépend fortement de la forme du potentiel d'interaction U entre le précipité et le vortex. Si on admet que cette forme ne change pas trop lorsque les précipités grossissent, df/dx va varier, à champ et température constants, comme $(\frac{f_m}{d})$. La largeur ($2d$) du potentiel d'interaction entre l'âme normale du vortex de diamètre $2\xi(T)$ et le précipité de diamètre D , va être de l'ordre de $(2\xi + D)$. ($2d$) croît donc avec D ; au plus comme D .

Comme nous l'avons vu plus haut, les énergies d'interaction, qu'elles soient d'origine mécanique, ou dues à l'effet de coeur, sont proportionnelles au volume des précipités. La variation de f_m va donc être comprise entre D^2 et D^3 , et celle de $\frac{df}{dx}$ entre D et D^2 .

Ainsi $\frac{df}{dx}$ croît avec D alors que k n'en dépend pas. Il en résulte que pour un champ et une température donnés, un précipité trop petit ne remplira pas la condition (18) et ne constituera pas un piège pour les vortex. C'est ce que nous constatons expérimentalement : le piégeage dû aux précipités est nul juste après la précipitation. En grossissant au cours du revenu, les précipités vont atteindre une taille "seuil" où la condition (18) est remplie : ils deviennent alors des pièges et f_p croît rapidement. C'est bien ce que nous observons expérimentalement sur la figure 14, la taille seuil se traduisant par un temps de revenu seuil.

Pour une taille de précipité donnée, df/dx et k sont des fonctions de H et T . Si les représentations de ces fonctions se coupent, il va exister un domaine (H, T) où la condition (18) ne sera pas remplie et où les précipités ne piègeront pas, et un domaine où (18) sera remplie et où les précipités vont piéger les vortex. A l'intersection des deux domaines on aura une variation de la concentration en pièges

N_p et un "pic" va apparaître sur f_p , si la variation de N_p est assez rapide.

Les positions du pic en champ, H_p , ou en température T_p , vont donc être proches des valeurs seuil H_s et T_s solution de l'équation :

$$\frac{df}{dx}(H_s, T_s) = k(H_s, T_s) \quad (32)$$

Nous avons représenté schématiquement une telle situation à température constante sur la figure 21 pour deux diamètres de précipités $D_2 > D_1$. Nous avons utilisé pour df/dx une variation vraisemblable d'après ce que l'on peut admettre de la variation de f_0 qui, près de H_{c2} , doit être en $(1 - H/H_{c2})^n$ avec $1 < n \leq 2$. H_{p1} et H_{p2} correspondent aux champs de pic pour les diamètres de précipité D_1 et D_2 . Puisque df/dx croît avec D , H_{p2} est inférieur à H_{p1} . Nous retrouvons là ce que nous avons observé expérimentalement : le champ de pic décroît lorsque les précipités grossissent, c'est-à-dire lorsque le temps de revenu des échantillons augmente (fig. 11a et b).

Puisque $\frac{df}{dx}$ s'annule à H_{c2} avec une tangente horizontale, il existe un petit domaine de champ près de H_{c2} ($H_0 < H < H_{c2}$) où $f_p = 0$. C'est aussi ce que nous avons observé expérimentalement : la force de piégeage s'annule à $H_0 < H_{c2}$ (page 34).

Nous venons de voir comment l'existence d'un seuil de piégeage permet d'expliquer la présence d'un pic de f_p en champ et température et comment il permet d'expliquer le sens de la variation de H_p en fonction du temps de revenu des échantillons. Il reste à vérifier qu'il peut expliquer aussi la variation thermique de H_p (où $h_p = H_p/H_{c2}$) et la variation de T_p avec le temps de revenu des échantillons. Nous avons vu (expression 31) que k varie avec la température comme $H_{c2}^{3/2}$ soit, en champ élevé, comme $(T_c - T)^{3/2}$. Si df/dx décroît plus vite avec la température que k (soit $n > 3/2$), le rapport $\frac{df/dx}{k}$ va décroître lorsque T croît. Les positions relatives des courbes $k(h)$ et $\frac{df}{dx}(h)$ pour deux températures $T_1 < T_2$ sont reportées dans ce cas sur la figure 22. On voit que dans ces conditions h_{pe} est supérieur à h_{p1} : le champ de pic réduit h_p croît avec la température comme cela

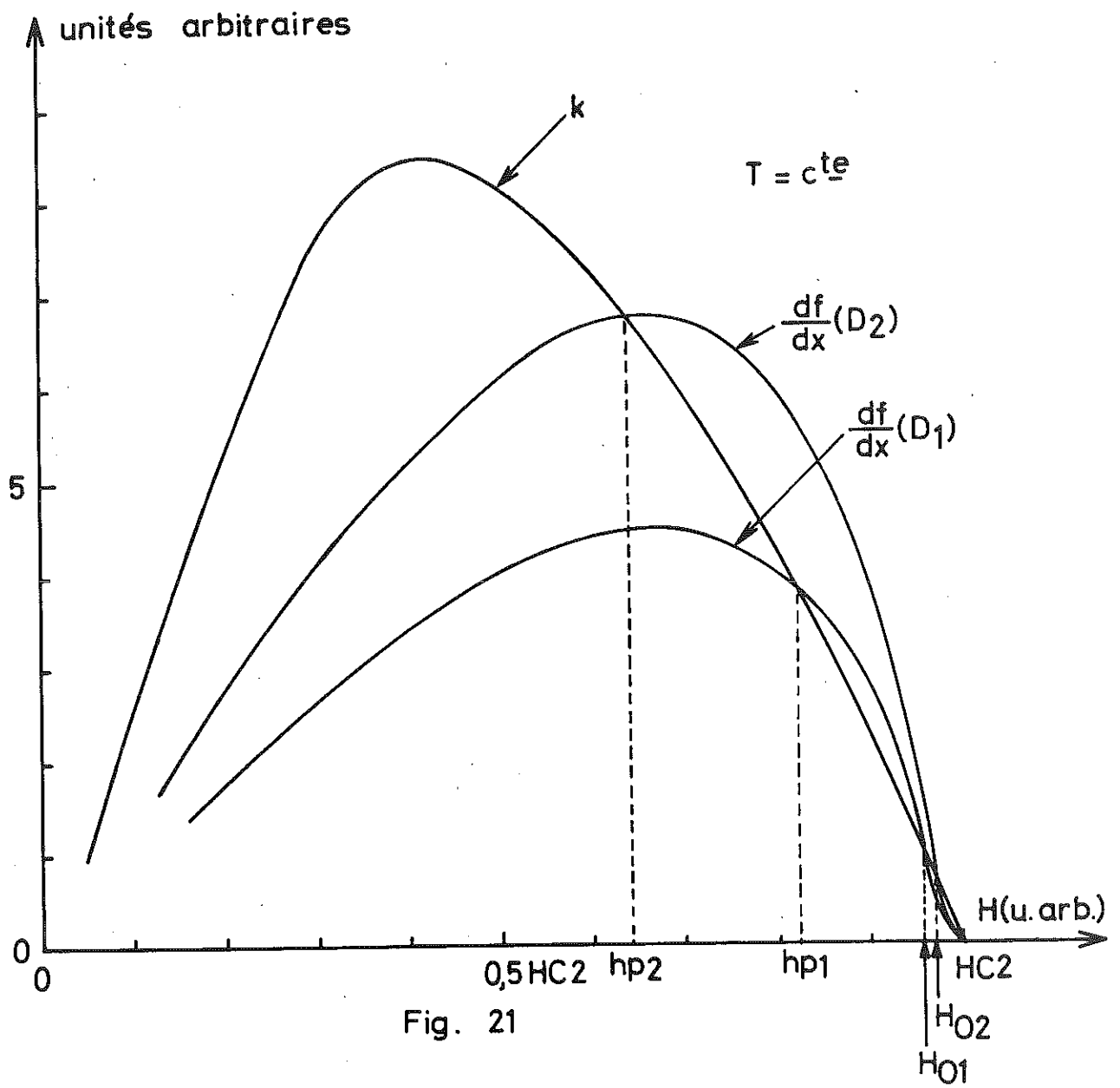


Fig. 21

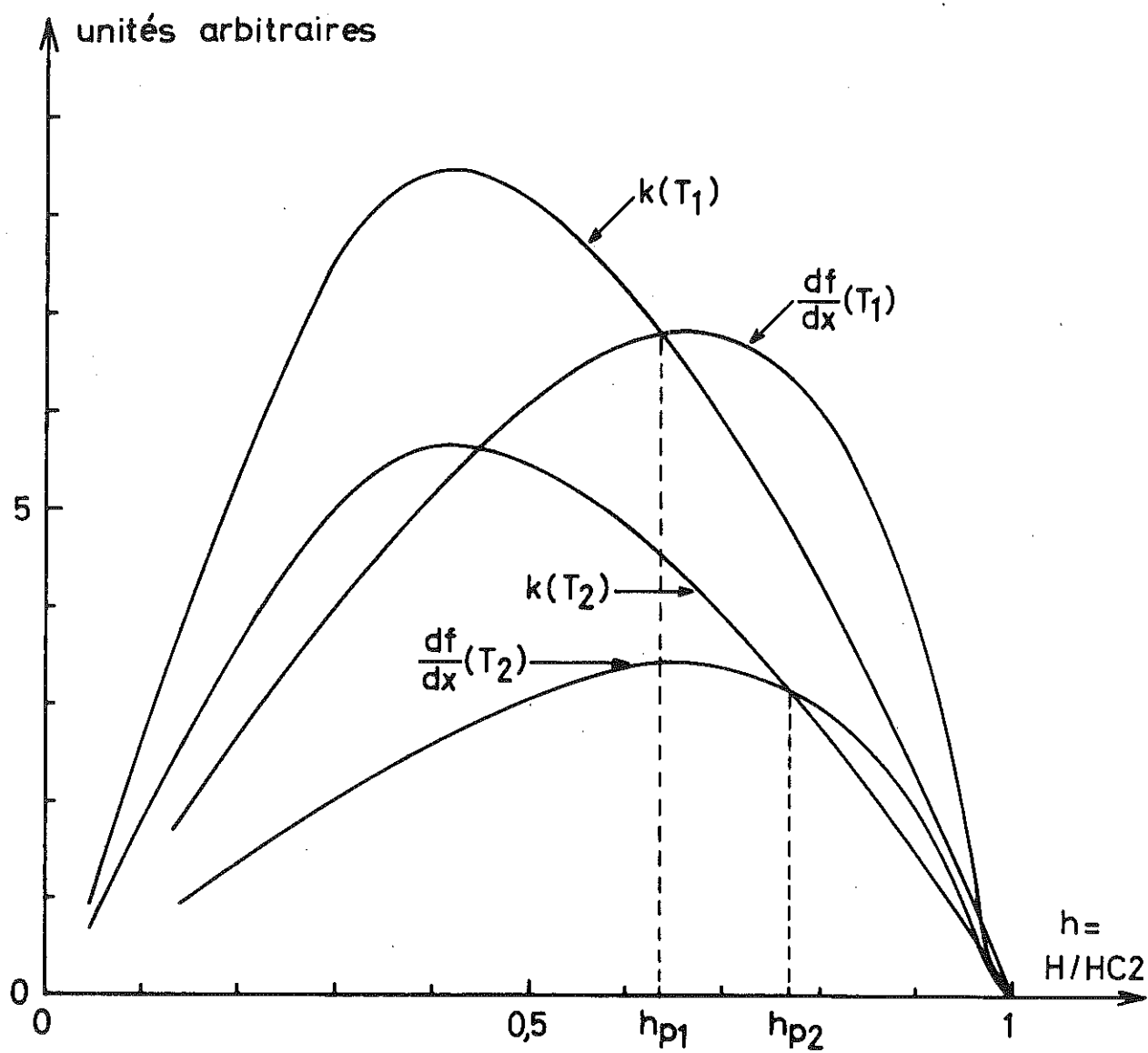


Fig. 22

a été constaté expérimentalement pour $T \lesssim 5,5$ K sur les alliages A et B (figure 11c et d).

Si df/dx décroît moins vite avec la température que k , on a le résultat inverse : h_p décroît lorsque T croît. C'est ce qu'on observe pour $T \gtrsim 5,5$ K (figure 11c et d). Ce résultat nous indique que la variation thermique de df/dx n'est pas constante et varie avec la température, ce qui confirme la complexité de la variation thermique de f_o , physiquement prévisible. La variation thermique de H_p se déduit immédiatement de celle de h_p d'après $H_p = h_p H_{c2}^2$.

Le sens de la variation de T_p avec le temps de revenu peut aussi aisément être déduit de la condition de piégeage (expression 18). A h constant on peut écrire :

$$k = \alpha (T_c - T)^{3/2}$$

et
$$\frac{df}{dx} = \beta(D) (T_c - T)^n$$

où $\beta(D)$ est une fonction croissante de D alors que α ne dépend pas de D . T_p est la température pour laquelle $\frac{df}{dx} = k$, d'où

$$\begin{aligned} \alpha (T_c - T_p)^{3/2} &= \beta(D) (T_c - T_p)^n \\ (T_c - T_p)^{3/2-n} &= \frac{\beta(D)}{\alpha} \\ T_p &= T_c - \left| \frac{\beta(D)}{\alpha} \right|^{\frac{1}{3/2-n}} \end{aligned} \quad (33)$$

On en déduit que si $n > 3/2$, T_p croît avec D et si $n < 3/2$, T_p décroît lorsque D augmente. C'est bien ce que montrent les résultats expérimentaux des figures 11c et d : à h_p constant, la température T_p correspondant aux différents temps de revenu croît avec le temps de revenu pour $T < 5,5$ K (soit $n > 3/2$) et décroît avec le temps de revenu pour $T > 5,5$ K ($n < 3/2$).

Si on admet que la forme des courbes $\frac{df}{dx}(h)$ puisse changer notablement en fonction de l'évolution de la structure des précipités

au cours des revenus de longue durée, il est possible de trouver des formes de courbes particulières permettant d'expliquer les comportements de $f_p(H)$ représentés sur les figures 16, 17 et 18. En particulier, si on admet que la courbe $\frac{df}{dx}(h)$ puisse couper en plusieurs points la courbe $k(h)$, on peut aisément expliquer le double pic observé sur l'alliage C revenu 679 jours (figures 17 et 18). Comme nous l'avons vu plus haut, df/dx dépend fortement de la forme du potentiel d'interaction ; il n'est donc pas étonnant que le comportement du pic, non seulement en fonction du temps de revenu, mais aussi en fonction de H et de T , dépende étroitement du détail de la structure de l'interface matrice-précipités et de la forme des précipités, qui conditionnent l'allure du potentiel d'interaction.

Ainsi le franchissement du seuil de piégeage par les précipités explique aussi bien la présence du pic que son évolution avec la température et les traitements thermiques. Comme l'allure des courbes $f_p(H)$ le laissait pressentir, il s'agit bien là d'une "transition" entre un état où l'on a peu de pièges et un état où l'on a un grand nombre de pièges. Cette "transition" du nombre de pièges N_p se superposant à la décroissance de $\overline{f_o}(H)$, au moins en champ fort, produit un "pic" de f_p qu'il serait d'ailleurs souhaitable de dénommer "seuil" plutôt que "pic".

Ce mécanisme va maintenant nous permettre de comprendre le comportement de $f_p(H)$ en fonction du revenu des échantillons. Tout d'abord, on peut remarquer, en comparant les courbes $f_p(H)$ obtenues à une même température pour différents temps de revenu (et plus particulièrement sur la figure 17) que $f_p(H)$ au-delà du pic varie relativement peu avec le temps de revenu. Cette constatation peut être justifiée de la manière suivante. Au-delà du pic, on a $N_p \approx N_v$, la concentration en précipités. Nous avons vu plus haut que $\overline{f_o} \propto \langle v \rangle$, le volume moyen des précipités. Alors $f_p = N_p \overline{f_o} \propto N_v \langle v \rangle = f_v$ où f_v est la fraction de volume de la phase précipitée qui reste constante au cours du revenu. Le fait que $f_p(H)$ dépende très peu de D au-delà du pic nous permet alors d'expliquer aisément le comportement de $f_{p \max}$ avec D . $f_{p \max}$ augmente lorsque h_p décroît ; puisque h_p décroît lorsque D augmente, $f_{p \max}$ va croître avec D et le temps de revenu, ce que l'on constate expérimentalement. De même, puisque $f_{p \max}$ varie à l'inverse de h_p , on doit observer dans sa variation

thermique un minimum plus ou moins marqué correspondant au maximum de h_p à 5,5 K (figures 11c et d). C'est bien ce que l'on observe expérimentalement : le minimum à 5,5 K du lieu de $f_{p \max}(H)$ en fonction de T est bien marqué pour l'alliage A (figures 9a et 9b) et nettement visible également quoique moins marqué pour l'alliage B (figures 10 a, b et c).

Il reste à examiner le comportement de $f_p(H)$ en champ faible en-deçà du pic. Nous avons vu que pour les temps de revenu faibles, $f_p(H)$ loin en deçà du pic est pratiquement nulle, car les précipités sont en dessous du seuil de piégeage. Par contre, lorsque les temps de revenu augmentent, $f_p(H)$ à température constante, en deçà du pic, augmente rapidement avec le temps de revenu (figures 9a,b et 10 a, b, c). En fait, bien que nous ayons supposé dans tout ce qui précède que les précipités avaient tous la même taille, il existe nécessairement dans les échantillons une distribution du diamètre des précipités. Le champ de seuil (ou de pic H_p) va correspondre au diamètre le plus probable D_p , mais à tous champs $H < H_p$, il va y avoir un certain nombre de précipités dont le diamètre est supérieur au diamètre de seuil D_s correspondant à H . Ces précipités sont des pièges qui contribuent à f_p et ils vont être d'autant plus nombreux que H sera proche de H_p .

Ainsi, à champ constant $H < H_p$, le nombre de pièges croît ainsi que f_p lorsque H_p décroît, c'est-à-dire lorsque le temps de revenu augmente.

Il en sera de même à h constant, lorsque h_p décroît, c'est-à-dire lorsque T décroît. Ici en plus, $\overline{f_0}$ croît, si bien que $f_p = n \overline{f_0}$, en champ faible, augmente très rapidement lorsque T décroît.

Cette notion de largeur ΔD de la distribution des diamètres des pièges peut nous permettre de discuter utilement la "raideur" du pic de f_p qui conditionne l'autostabilité des alliages. L'existence d'une distribution des diamètres des précipités entraîne celle d'une distribution des champs et températures de seuil H_s et T_s , de largeurs ΔH_s et ΔT_s .

A champ constant, ΔT_s est la largeur de la branche ascendante du pic de f_p en fonction de T , c'est-à-dire la région autostable où $df_p/dT > 0$. H_s est fonction de T et de D ; nous pouvons donc écrire :

$$dH_s = \left. \frac{\partial H_s}{\partial T} \right|_D dT + \left. \frac{\partial H_s}{\partial D} \right|_T dD$$

A champ constant, on a :

$$\left. \frac{\partial H_s}{\partial T} \right|_D dT + \left. \frac{\partial H_s}{\partial D} \right|_T dD = 0$$

$$\text{ou} \quad f' \Delta T_s + \emptyset' \Delta D = 0$$

$$\text{et} \quad \Delta T_s = - \frac{\emptyset'}{f'} \Delta D \quad (34)$$

En assimilant H_s au champ de pic expérimental H_p , on peut voir sur les figures 11a et b que $f' = \frac{dH_p}{dT}$, croît avec T . De même si on porte H_p en fonction du temps de revenu (ou de D) pour diverses températures, on trouve que $\emptyset' = \frac{\partial H_p}{\partial \Delta}$, décroît lorsque T croît. Ainsi $|\Delta T_s|$ décroît lorsque T croît, ce qui signifie un pic de f_p en fonction de T plus raide près de T_c qu'à basse température. C'est bien ce que l'on observe expérimentalement sur la figure 12.

On peut remarquer que pour $T \lesssim 3$ K, $|\Delta T_s|$ devient trop large pour pouvoir l'emporter sur la décroissance rapide de f_0 en fonction de T quel que soit le champ appliqué. On a plus alors de "remontée" avec la température sur les courbes de $f_p(T)$ à champ constant mais seulement un point d'inflexion : il n'y a plus d'autostabilité.

Pour avoir autostabilité dans un domaine appréciable de champ et de température, il faut que ΔT_s soit le plus petit possible, c'est-à-dire que, d'après l'expression (34) $\emptyset'$ et ΔD soient petits.

Si la discussion de $\emptyset'$ n'est pas possible faute de précision sur le potentiel d'interaction précipité-vortex, par contre pour avoir un ΔD petit, il faut que la précipitation soit la plus homogène possible, c'est-à-dire que la solution solide initiale soit la plus "parfaite" possible avant la précipitation.

Il est hautement probable que nous avons observé un "effet de pic" et une autostabilité bien marquée dans nos alliages parce qu'ils étaient très purs et bien recuits avant précipitation.

C O N C L U S I O N

En conclusion à cette étude, nous pouvons dire que "l'effet de pic" observé sur nos alliages est dû au franchissement par les précipités du "seuil de piégeage" fonction du champ magnétique appliqué, de la température et de la taille des précipités.

Nos résultats expérimentaux constituent, semble-t-il, la première mise en évidence de l'existence de ce seuil de piégeage, prévu théoriquement.

Par ailleurs, nous avons vu que la "raideur" du pic et l'autostabilité qui en découle, proviennent essentiellement de l'homogénéité des précipités-pièges, notamment en ce qui concerne leur nature, leur taille et leur distribution spatiale. Il apparaît alors, que ni le mécanisme physique responsable de l'effet de pic, ni les paramètres structuraux qui conditionnent l'autostabilité de nos échantillons, ne sont propres à ces alliages particuliers. En conséquence, on doit pouvoir observer des phénomènes qualitativement analogues dans tous les alliages supraconducteurs où l'on pourra provoquer une précipitation suffisamment fine et homogène. Dans ce cas, si on suit l'évolution du piégeage avec la précipitation et le grossissement des précipités, on doit pouvoir observer un effet de pic et obtenir un alliage autostable. L'inconvénient pratique de cet effet résulte de la faible valeur de la force de piégeage et par conséquent du courant critique, juste en-deça du seuil. Or c'est dans cette région de champ magnétique et de température qu'on devra faire travailler un éventuel matériau autostable pour pouvoir justement bénéficier de son autostabilité. En fait, rien ne s'oppose dans le principe, à pouvoir superposer l'effet de pic et l'autostabilité, à un piégeage déjà fort, obtenu par exemple par une précipitation antérieure. Dans ce cas, il faudrait faire subir à l'alliage une trempe à deux étages avec un revenu intermédiaire convenablement choisi.

Ainsi, les résultats de la présente étude, quoi qu'obtenus avec des alliages "de laboratoire", montrent que rien ne s'oppose physiquement à l'obtention de matériaux supraconducteurs autostables performants, et indiquent les directions principales dans lesquelles de tels matériaux techniquement intéressants doivent être recherchés.

A N N E X E I

ANALYSE THERMIQUE DIFFERENTIELLE

Pour vérifier si l'effet de pic observé dans les alliages Pb-In-Na était dû à une transition de l'état supraconducteur à l'état normal des précipités qu'ils contiennent, nous avons essayé de détecter thermiquement cette transition. En effet, ni les mesures d'aimantation, ni les propriétés de transport ne permettent de déceler la transition d'une phase supraconductrice dans une matrice elle-même supraconductrice. Compte tenu de la taille de nos échantillons et de la précision des mesures de chaleur spécifique, nous avons préféré faire appel aux techniques d'analyse thermique différentielle, plus aptes à déceler une faible variation des propriétés thermiques.

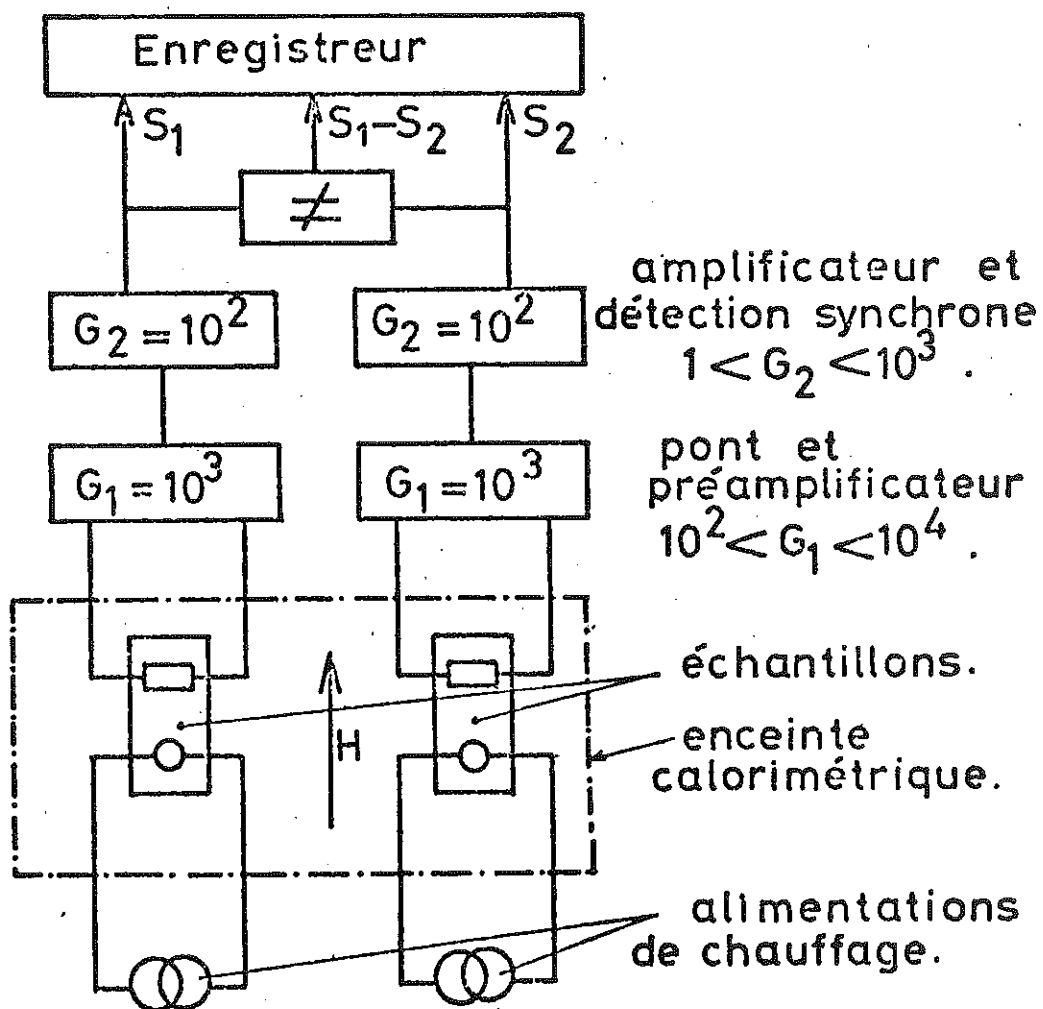
Nous avons tout d'abord pensé utiliser la technique décrite par MEADEN et SZE (réf. 39) qui s'applique plus particulièrement aux transitions de phase du premier ordre. En envoyant un flux de chaleur constant dans l'échantillon, on crée un gradient de température ΔT , qui sera perturbé si un phénomène endo- ou exothermique se produit. Nous avons donc mis au point un dispositif basé sur cette technique en aménageant un calorimètre précédemment destiné à des mesures de conduction thermique. Il s'est avéré assez rapidement, après quelques essais sur des échantillons de plomb et de plomb-indium que cette méthode était délicate à mettre en oeuvre et ne donnait pas une sensibilité suffisante pour atteindre le but recherché.

Les différents flux de chaleur étant difficiles à maîtriser, nous avons évolué vers un système à deux échantillons en régime adiabatique. Le principe consiste alors à opposer après amplification les mesures des températures de l'échantillon contenant les précipités et d'un échantillon Pb-In 50% atomique dont la chaleur spécifique est très

voisine. Nous avons utilisé comme thermomètre des résistances de carbone Allen Bradley de 68Ω à la température ambiante (1100Ω à $4,2 \text{ K}$) dont la pente à $4,2 \text{ K}$ est de $650 \Omega/\text{K}$. Des mesures dans l'azote, l'hydrogène et l'hélium nous ont permis d'en sélectionner deux dont les caractéristiques $R(T)$ sont les plus proches possibles (écart relatif entre les deux $\frac{\Delta R}{R} = 2 \cdot 10^{-3}$). Leur mesure est effectuée à l'aide de ponts d'opposition à courant alternatif (méthode à quatre fils). La différence des mesures n'est faite qu'à la sortie des ponts. Ce système, qui augmente un peu le bruit de fond par rapport à une véritable mesure différentielle (consistant à opposer les signaux avant amplification), a cependant l'avantage de permettre l'enregistrement simultané de la valeur de chacune des résistances et de leur différence. Cela nous est permis par la qualité des ponts utilisés (réf. 40). Ils se caractérisent par la faible valeur de la puissance dissipée dans la résistance mesurée (10^{-7} watt), leur précision élevée ($\Delta R/R = 10^{-6}$), leur très haute sensibilité (bruit propre nettement inférieur au bruit thermique de la résistance mesurée à la température ordinaire) et leur linéarité (signal de sortie proportionnel au déséquilibre). Pour compenser l'effet des capacités parasites des câbles, ils comportent un dispositif d'équilibrage automatique ou manuel de la composante en quadrature du signal.

Les échantillons sont d'autre part équipés de résistances de chauffage ($\sim 40 \text{ K}\Omega$ à $4,2 \text{ K}$) dont les alimentations en courant permettent d'ajuster à 10^{-4} près les puissances envoyées (fig. 1). Les fuites thermiques dues aux fils de nylon de suspension des échantillons et aux fils d'amenée de courant en constantan sont très faibles car la température des échantillons s'écarte peu de celle du bain. Le calorimètre, enfin, est centré dans une bobine de champ magnétique supraconductrice. La transition peut ainsi être recherchée soit en faisant varier le champ à température constante, soit en faisant varier la température à champ constant.

FIGURE 1

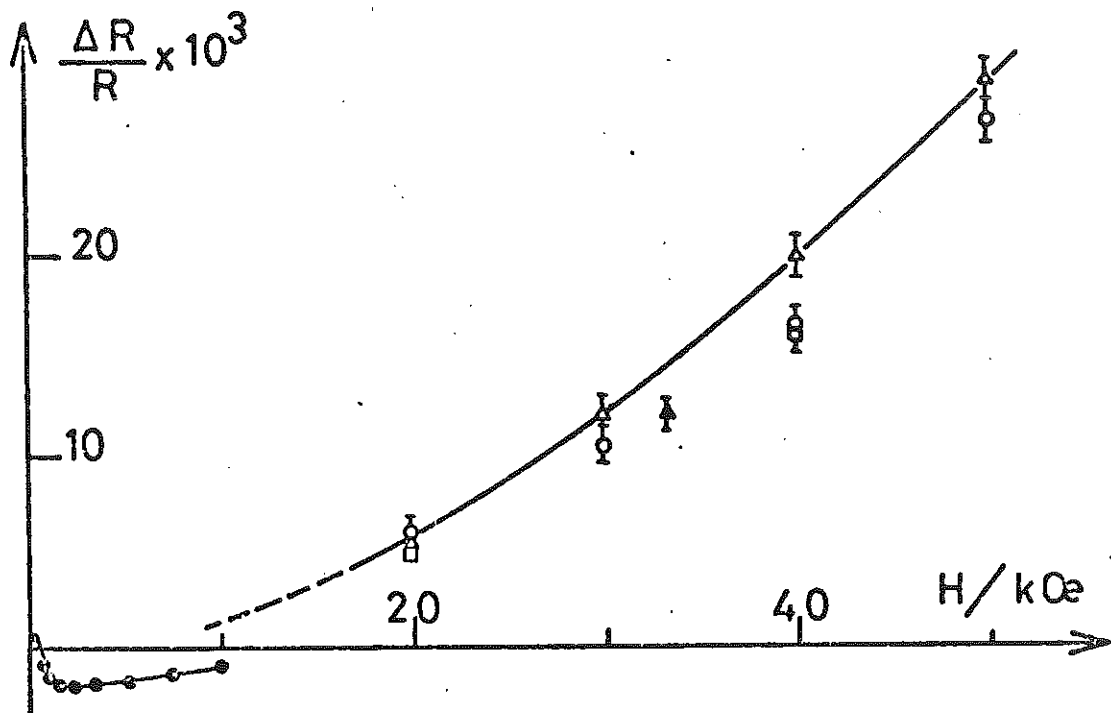
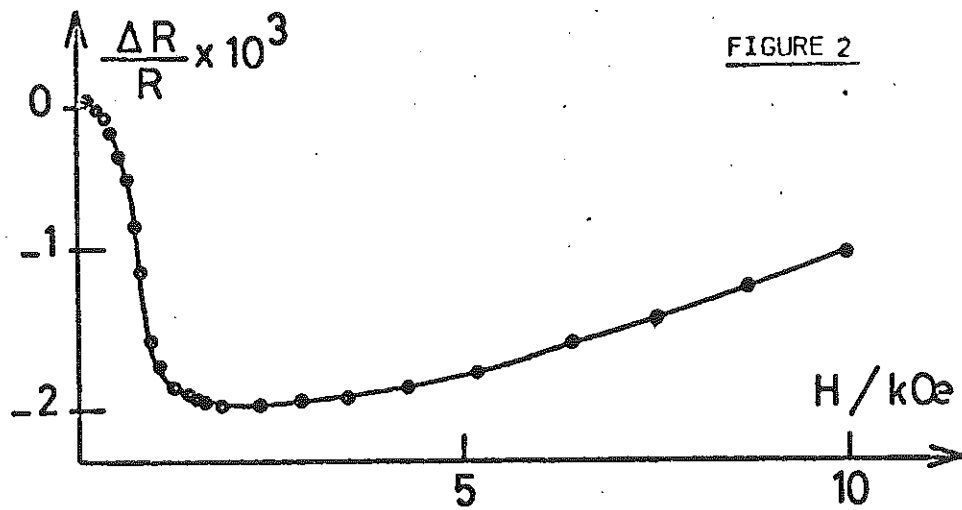


Dans ces conditions, le bruit de fond ne dépasse pas quelques $m\Omega$ ce qui représente une résolution relative en $\Delta R/R$ voisine de 10^{-6} . Cela permet de détecter à 4,2 K des variations de température de quelques μ K. Expérimentalement, nous avons trouvé que l'énergie minimum à laquelle le dispositif est sensible à 4,2 K est inférieure à 10^{-3} J, ce qui correspond bien à une variation de température de quelques μ K de nos échantillons, compte tenu de leurs capacités calorifiques.

Les études à champ constant se sont avérées délicates à cause de cette grande sensibilité. En effet, il faut chauffer simultanément et rapidement les échantillons en affichant des courants de chauffage prédéterminés. La plage de température examinée à chaque fois est assez étroite car, très vite, un déséquilibre se produit dans les échauffements (dérive des thermomètres ou des résistances de chauffage, mouvements des vortex différents dans les deux échantillons...). Si l'on chauffe lentement, au contraire, un changement de pente (dû à une variation de chaleur spécifique par exemple) apparaît moins nettement. Le compromis est difficile à trouver et les expériences sont très longues.

Par contre, les mesures en champ variable sont rapides et faciles à reproduire. Mais elles ont mis en évidence une magnétorésistance sous faible champ magnétique des résistances Allen Bradley beaucoup plus forte que prévue. Les résultats de la littérature (Réf. 41) et des mesures effectuées sur ces résistances au laboratoire nous donnaient une augmentation relative de 1% environ dans un champ de 30 kOe à 4,2 K, ce qui nous laissait penser qu'elle serait comprise entre $3 \cdot 10^{-4}$ et $1 \cdot 10^{-5}$ dans 1 kOe, valeurs correspondant à une évolution linéaire ou quadratique de la magnétorésistance. Or, nous avons obtenu une magnétorésistance négative en faible champ dont l'amplitude atteint 2% dès 1200 Oe puis diminue lentement ensuite (cf. fig. 2). Des cas de magnétorésistance négative en faible champ magnétique puis positive en champ fort peuvent s'expliquer par la présence d'impuretés dans le carbone (réf. 42).

L'évolution rapide des résistances entre 0 et 1200 Oe correspond à une variation de 3 mK à 4,2 K, mais dans la plage de 1200 à 10 000 Oe, elle représente une variation de 15 μ K tous les 100 Oe.



- Allen Bradley 68 Ω 1/8 W (nos mesures)
- △ Allen Bradley 47 Ω 1/4 W (Neuringer Shapira)
- Allen Bradley 100 Ω 1/8 W (Neuringer Shapira)
- Allen Bradley 10 Ω 1/8 W (Sample Neuringer)
- ▲ Allen Bradley 68 Ω 1/2 W (Berton - C.R.T.B.T.)

Celle-ci étant semblable sur les deux résistances à 4,2 K et 6,2 K, nous avons admis que l'évolution du phénomène en fonction de la température est la même sur l'une et sur l'autre, sans faire un étalonnage complet "in situ" des résistances en fonction de la température et du champ magnétique. Une évolution parallèle et régulière des deux thermomètres ne doit pas gêner la détection d'anomalies thermiques.

Nous en avons eu la preuve en étudiant un échantillon constitué de quelques 25 mg de Plomb collés sur une plaquette de 1 g de niobium, ces masses étant choisies dans le même rapport que celles des précipités et de la matrice de Pb-In d'après nos estimations. Le test fut concluant puisque nous avons enregistré à la transition une diminution de température de 7 mK de l'ensemble de l'échantillon, ce qui correspond à une énergie de $4,2 \cdot 10^{-6}$ J compte tenu de la chaleur spécifique du niobium. Ce résultat est bien en accord avec les valeurs de la chaleur latente de transition du plomb.

Par contre, sur nos échantillons, nous n'avons pas détecté d'anomalie thermique qui puisse être attribuée à la transition recherchée. Nous avons enregistré aisément le refroidissement lié à l'aimantation adiabatique des échantillons (~ 50 mK de 4,2 K jusqu'à la température critique de 6,05 K) ainsi que l'échauffement dû au mouvement des vortex ($\sim$ de 40 mK pour un cycle état supraconducteur à 4,2°K, état normal, état supraconducteur à 4,2°K). Or une transition du 1er ordre affectant 1% seulement du volume de l'échantillon absorberait environ 10^{-4} J si on considère la chaleur latente du Pb-In. Nous en concluons que la transition des précipités, si elle existe, est vraisemblablement du 2ème ordre et n'affecte pas suffisamment les propriétés de l'ensemble pour être décelée.

A N N E X E I I

CALCUL DE LA FORCE MOYENNE DE PIÉGEAGE

1 - INTERACTION PIÈGE-VORTEX, INSTABILITE MECANIQUE

Nous nous plaçons dans le cas d'une distribution au hasard des pièges dans le matériau et caractérisons un piège par un potentiel d'interaction répulsif (bosse de potentiel) ou attractif (puits de potentiel). Nous ferons un calcul à deux dimensions pour simplifier et pour cela, on supposera que le potentiel a une largeur ($2d$) selon la direction de déplacement des vortex (direction Ox) et une dimension ($2d$) également suivant la direction Oy perpendiculaire à Ox . Les vortex seront eux parallèles à la direction Oz . Pour se fixer une forme simple du potentiel, on suppose qu'il est constitué de trois portions de paraboles comme représenté sur la figure 1 dans le cas d'un potentiel répulsif. La force d'interaction sera alors linéaire en x (figure 3).

Lorsqu'un vortex est en interaction avec le piège, il est déformé par la force d'interaction, comme schématisé sur la figure 2 où le vortex se déplace vers la droite et le piège est répulsif. Nous appellerons x_v l'abscisse correspondant à la position du vortex non déformé et x_d l'abscisse correspondant à la flèche maximale $u = x_d - x_v$.

Si nous reportons ces positions sur le diagramme des forces (fig. 3) correspondant au potentiel U défini plus haut, nous voyons que le vortex est soumis à la force f . La déformation (ou flèche) u est alors donnée par $u = \frac{f}{k}$ où k est la constante de rappel élastique du vortex.

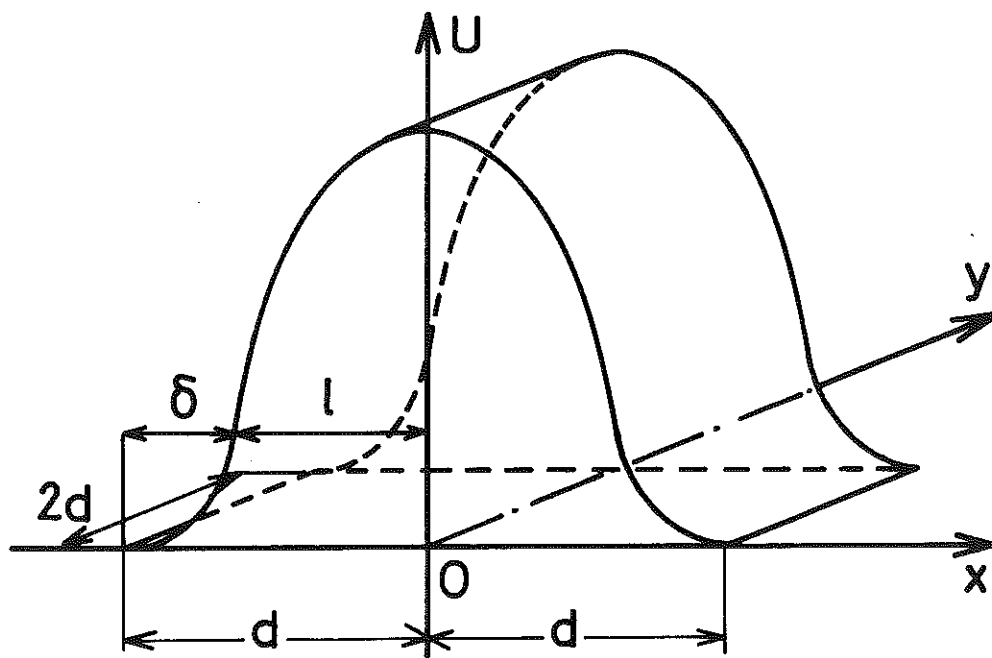


Fig. 1

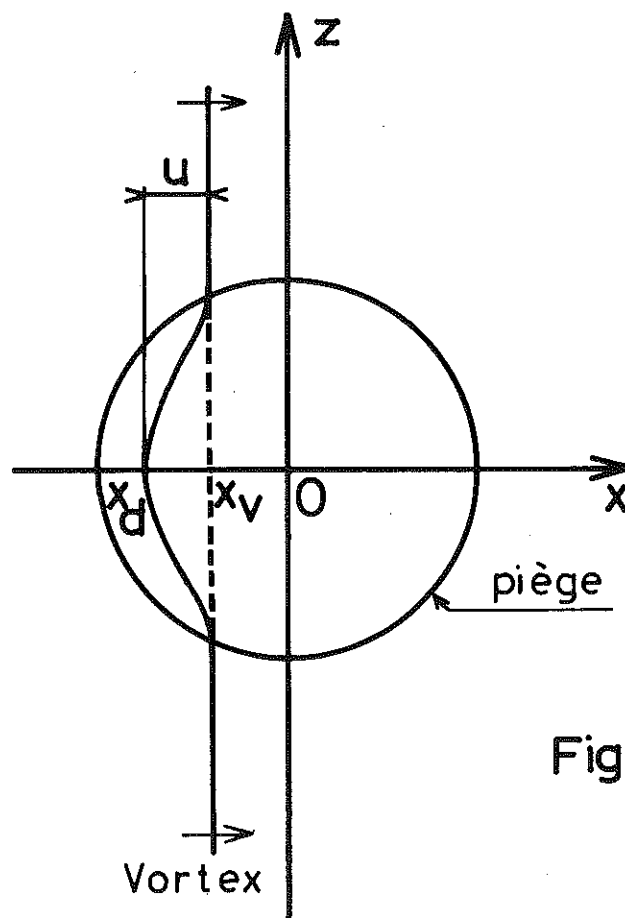


Fig. 2

Au point figuratif P de l'élément de vortex déformé, la force d'interaction est en équilibre avec la force de rappel due à l'élasticité du vortex. La pente du segment Px_V est égale à la constante k . Lorsque le vortex se déplace vers la droite, le point P se déplace vers le point M correspondant à la force maximum f_m , et le point x_V se déplace vers le point x_0 . Le segment Mx_0 , de pente k , correspond à une position limite. Pour un faible déplacement de x_V au-delà de x_0 , le point P saute de M en N ; la force change de signe et prend la valeur $f_n < f_m$. On a là une "instabilité mécanique". On voit immédiatement sur la figure, que cette instabilité mécanique n'existe que si la pente du segment Mx_0 est inférieure à celle du segment MO , c'est-à-dire, si :

$$k < \frac{Mx_M}{Ox_M} \quad \text{soit} \quad k < \frac{f_m}{\ell} \quad (1)$$

En conséquence, lorsque le vortex se déplace de x_A à x_0 , il est soumis à une force négative comprise entre 0 et f_m , et lorsqu'il se déplace de x_0 à x_B , il est soumis à une force positive comprise entre f_n et 0. L'instabilité mécanique entraîne donc une dissymétrie dans les forces exercées par le piège.

Considérons maintenant un vortex immobile qui a pénétré de gauche à droite dans une distribution statistique de pièges identiques. Parmi les pièges qui sont en interaction avec le vortex, ceux qui sont situés à sa droite à une distance inférieure à $Ox_A = d$, et ceux qui sont situés à sa gauche à une distance inférieure à Ox_0 vont exercer sur le vortex des forces négatives (qui le "retiennent") de valeur comprise entre 0 et f_m . Les pièges situés à gauche du vortex à une distance comprise entre Ox_0 et Ox_B vont exercer des forces positives (qui le "poussent") de valeur comprise entre 0 et f_n .

Puisque dans une distribution statistique de pièges les distances pièges vortex sont équiprobables, nous aurons plus de pièges qui retiennent que de pièges qui poussent car $x_0 x_A > x_0 x_B$. De plus la force moyenne exercée par les pièges qui retiennent ($\frac{1}{2} f_m$) est supérieure à la force moyenne exercée par les pièges qui poussent ($\frac{1}{2} f_n$). On va donc avoir une force résultante négative sur le vortex.

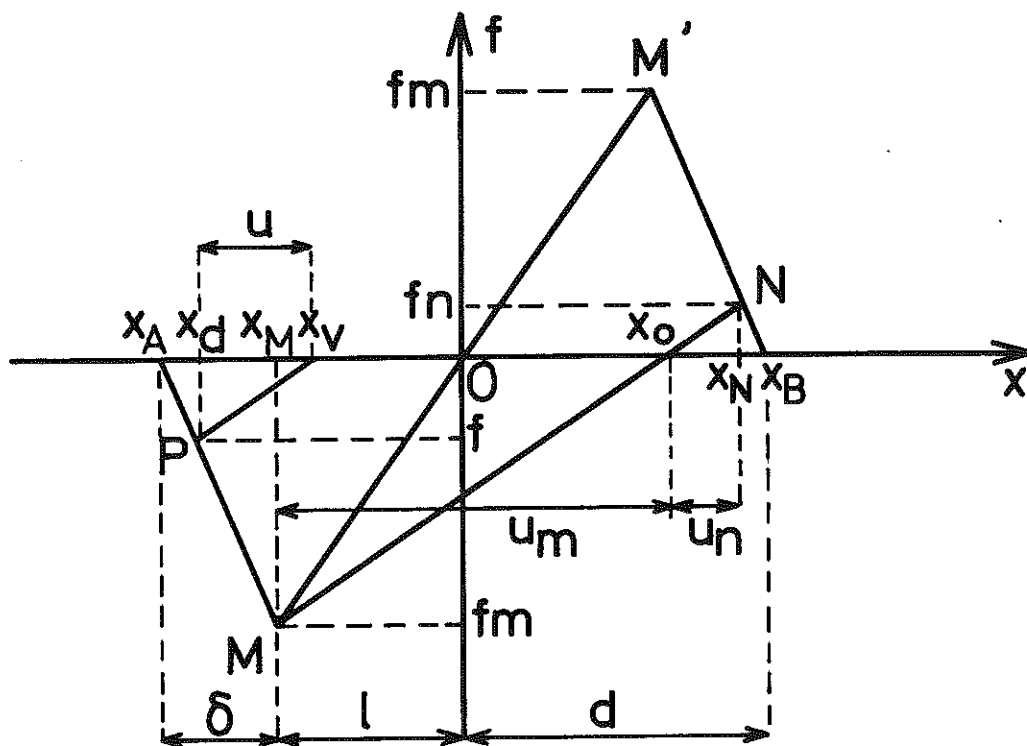


Fig. 3

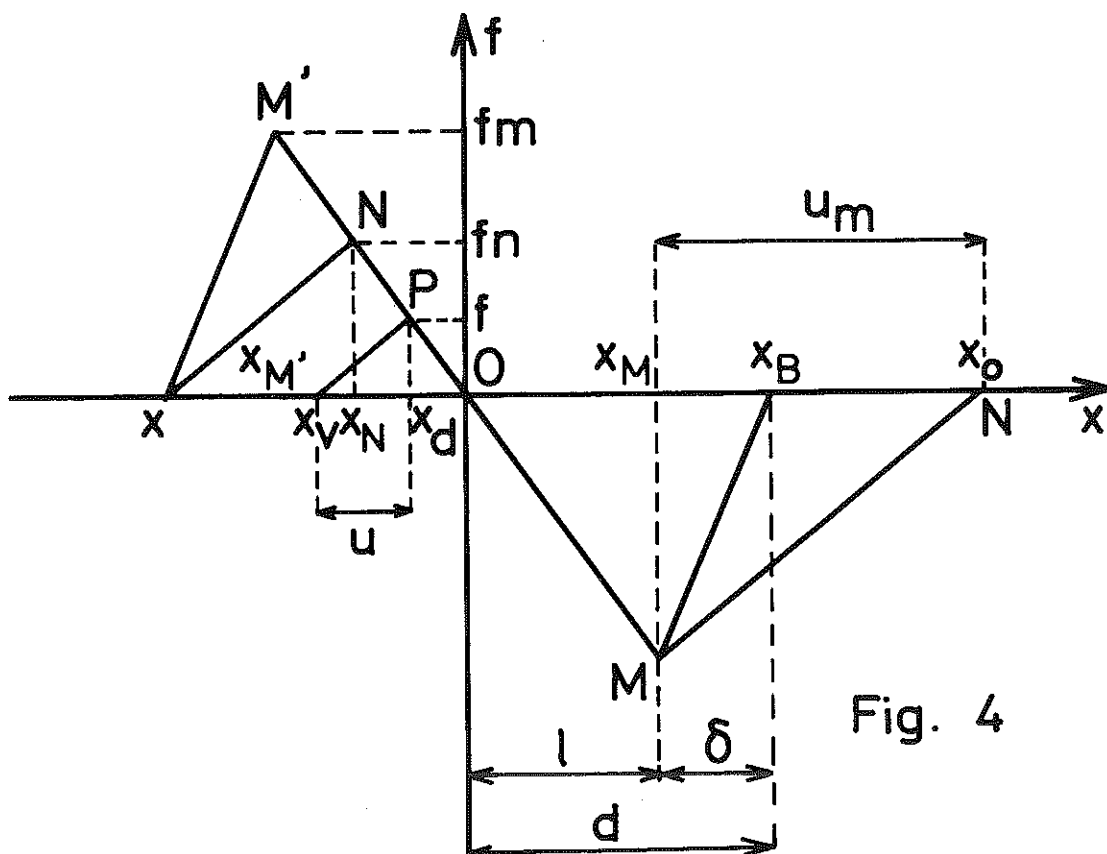


Fig. 4

Si la condition (1) n'est pas remplie, les forces d'interaction pièges-vortex vont être symétriques deux à deux et la force résultante sur le vortex sera nulle. Ainsi l'instabilité mécanique résultant de la condition (1) est nécessaire pour que des pièges distribués au hasard exercent une force moyenne non nulle sur un vortex.

2 - CALCUL DE LA FORCE MOYENNE DE PIEGEAGE, PAR UNITE DE LONGUEUR DE VORTEX f_p

Le dénombrement des pièges qui retiennent et qui poussent va permettre de calculer f_p .

Les pièges qui retiennent l'unité de longueur de vortex sont compris dans le volume $V_1 = 2d \times (x_o x_A) \times 1$. Si u_m est le déplacement correspondant à f_m , on a :

$$x_o x_A = u_m + \delta \quad \text{et} \quad V_1 = 2d (u_m + \delta)$$

N_p étant la concentration volumique des pièges, le nombre de pièges qui retiennent vaut :

$$N_1 = N_p \times 2d (u_m + \delta)$$

La force moyenne exercée par ces pièges est $\frac{1}{2} f_m$; la force négative exercée sur l'unité de longueur de vortex vaut donc

$$f_1 = \frac{1}{2} N_1 f_m = \frac{1}{2} N_p \times 2d \times (u_m + \delta) \times f_m$$

En remarquant que $x_o x_B = 2d - (u_m + \delta)$ on calcule le nombre de pièges qui poussent

$$N_2 = N_p \times 2d [2d - (u_m + \delta)] f_m$$

La force moyenne exercée par ces pièges est $\frac{1}{2} f_n$; la force positive exercée sur l'unité de longueur de vortex vaut donc

$$f_2 = \frac{1}{2} N_2 f_n = \frac{1}{2} N_p \times 2d [2d - (u_m + \delta)] f_n$$

Finalement la valeur absolue de la force résultante négative f_p est donnée par :

$$f_p = f_1 - f_2 = \frac{1}{2} 2d \times N_p \left[u_m (f_m + f_n) + \delta (f_n + f_n) - 2d f_n \right]$$

Comme $u_m = \frac{f_m}{k}$

$$f_p = \frac{1}{2} 2d \times N_p \left[\frac{f_m^2}{k} + \frac{f_m f_n}{k} + \delta (f_m + f_n) - 2d f_n \right] \quad (3)$$

L'expression (3) se simplifie dans certains cas particuliers :

1°) Si $f_n = 0$, ce qui est réalisé lorsque $u_m + \delta > 2d$, c'est-à-dire lorsque la force maximale du piège est capable de déformer le vortex sur une distance supérieure à son diamètre, f_p devient :

$$f_p = \frac{1}{2} N_p \times 2d \left(\frac{f_m^2}{k} + \delta f_m \right) \quad (4)$$

2°) Si de plus, δ est négligeable devant u_m , ou nul (cas d'un potentiel parabolique), on a

$$f_p = \frac{1}{2} N_p \times 2d \times \frac{f_m^2}{k} \quad (5)$$

Cette dernière expression est identique à celle trouvée par LABUSCH (réf. 33) pour le potentiel en cloche qu'il a utilisé lorsque $u_m > \frac{8}{3} L$.

Un calcul analogue peut être fait dans le cas d'un potentiel attractif. On trouvera figure 4, le diagramme des forces dans ce cas avec les mêmes hypothèses en ce qui concerne la forme du potentiel.

P est le point représentatif de l'élément déformé d'un vortex dont la position moyenne est en x_v :

$$k = \frac{f}{u} = \frac{P x_d}{x_v x_d}$$

On a cette fois deux positions limites pour le segment $x_v P$: d'une part, le segment $x_A N$; d'autre part, le segment $M x_O$. Dans le cas attractif, il y a deux positions d'instabilité mécanique : la première lorsque le vortex atteint le puits de potentiel (x_v en x_A) dans lequel il "tombe" (x_v saute en x_N) ; la seconde à la sortie du puits où, lorsque le vortex atteint la position x_O , l'élément déformé saute de x_M en x_O .

La condition d'instabilité mécanique s'écrit ici :

$$k < \frac{M' x_{M'}}{x_A x_{M'}} = \frac{M x_M}{x_B x_M}$$

soit $k < \frac{f_m}{\delta}$ (6)

Pour calculer f_p , on dénombre comme précédemment les forces négatives et positives qui ont respectivement pour valeur moyenne $\frac{1}{2} f_m$ et $\frac{1}{2} f_n$.
On a pour la force négative :

$$f_1 = \frac{1}{2} N_p \times 2d (u_m + l) f_m$$

et pour la force positive :

$$f_2 = \frac{1}{2} N_p \times 2d \times d f_n$$

d'où la force de piégeage

$$f_p = \frac{1}{2} N_p \times 2d [(u_m + l) f_m - d f_n] \quad (7)$$

Avec $u_m = \frac{f_m}{k}$, (7) devient

$$f_p = \frac{1}{2} N_p \times 2d \left(\frac{f_m^2}{k} + l f_m - d f_n \right) \quad (8)$$

En remarquant que $l = d - \delta$, l'expression (8) s'exprime avec les mêmes paramètres que dans le cas répulsif par :

$$f_p = \frac{1}{2} N_p \times 2d \left[\frac{f_m^2}{k} + d(f_m - f_n) - \delta f_m \right] \quad (9)$$

En comparant les expressions (3) et (9), on peut voir que le terme qui ne dépend pas de la forme du potentiel $\frac{f_m^2}{k}$ est le même dans les deux cas. C'est le résultat principal de la théorie : la force moyenne de piégeage varie quadratiquement avec la force maximale que peuvent exercer les pièges.

Remarques :

1°) Nous avons choisi ici des potentiels particuliers pour effectuer le calcul de f_p . Dans le cas général, quels que soient la forme et le signe du potentiel, la condition pour qu'il y ait une instabilité mécanique au niveau des pièges et par conséquent qu'il existe une force de piégeage, est qu'en un point quelconque du potentiel on ait :

$$\frac{df}{dx} > k$$

Cette condition est dite "seuil de piégeage" (réf. 6).

2°) La limitation principale à l'application du calcul de f_p provient du fait que pour pouvoir sommer les forces d'interaction, nous avons supposé les interactions vortex-pièges indépendantes les unes des autres. Cela suppose que les déformations qu'elles provoquent sur les vortex ne se recouvrent pas. Pour cela il faut donc que les pièges soient suffisamment éloignés les uns des autres.

B I B L I O G R A P H I E

- 1 - O. BETHOUX et G. SCHUMACHER, Rev. Phys. Appliquée 8, 439 (1973).
- 2 - G. SCHUMACHER, Thèse Docteur-Ingénieur, Grenoble (1972).
- 3 - P.S. SCHWARTZ and C.P. BEAN, J. of Appl. Phys. 39, 4991 (1968).
- 4 - J.D. LIVINGSTON, Appl. Phys. Lett. 8, (1966) 319.
- 5 - H.R. jr. HART and J.D. LIVINGSTON, Proceedings L.T. 11, St Andrews (1968), 869.
- 6 - A.M. CAMPBELL and J.E. EVETTS, Adv. Phys. 21, 372 (1972).
- 7 - E.J. KRAMER, Proceeding of the International Discussion Meeting on flux pinning in superconductors, Edited by P. Haasen and H.C. Freyhardt, Göttingen (1975), p 240.
- 8 - H. RAFFY, E. GUYON and J.C. RENARD, Solid State Comm. 14, 427 (1974).
- 9 - O. DALDINI, P. MARTINOLI, J.L. OLSEN and G. BERNER, Phys. Rev. Lett. 32, 218 (1974).
- 10 - M. HANSEN and K. ANDERKO, Constitution of binary alloys, Mc Graw Hill (1958).
- 11 - J. PETERMAN und E. HORNBÖGEN, Z. Metallk^{de} 59 (1968), p 814.
- 12 - G. BON MARDION, Thèse Grenoble (1965).
- 13 - J.Y. GUERIN, Thèse Grenoble (1970).
- 14 - W.B. PEARSON and I.M. TEMPLETON, Phys. Rev. 109, 1094 (1958).

- 15 - D.E. FARREL, B.S. CHANDRASEKHAR and H.V. CULBERT, Phys. Rev. 177, 694 (1969).
- 16 - A. NEMOZ, J.C. SOLECKI, J.P. FAURE et J.R.G. KEYSTON, Rev. Phys. Appl. 4, 42 (1969).
- 17 - A. NEMOZ, Thèse Grenoble (1972).
- 18 - J.E. EVETTS, A.M. CAMPBELL and D. DEW HUGHES, J. Phys. C 1, 715 (1968).
- 19 - J. FIREDEL, P.G. DE GENNES et J. MATRICON, Appl. Phys. Lett. 2, 119 (1963).
- 20 - P.G. DE GENNES (1966), Superconducting of metals and alloys, Benjamin, New-York (1966).
- 21 - K. MAKI, Physics I, 21 (1964).
- 22 - B.B. GOODMAN, IBM J. Res. Develop. 6, 63 (1962).
- 23 - W.A. FIETZ and W.W. WEBB, Phys. Rev. 178, 657 (1969).
- 24 - E.J. KRAMER, J. Phys. Appl. 44, 1360 (1973).
- 25 - H. KRONMÜLLER, Proceedings of the International Discussion Meeting on flux pinning in superconductors, Edited by P. Haasen and H.C. Freyhardt, Göttingen (1975), p 1.
- 26 - H. FREYHARDT, Thèse Göttingen (1970).
- 27 - J.P. BURGER et G. DEUTSCHER, Rev. Phys. Appliquée 6, 505 (1971).
- 28 - Orsay Group on Superconductivity, Phys. Kondens. Materie. 6, 307 (1967).
- 29 - J.P. BURGER, "La supraconductivité des métaux, des alliages et des films minces" Masson, Paris (1974).

- 30 - G. DEUTSCHER et P.G. DE GENNES dans "Superconductivity", Vol. 2
edited by R.D. Parks (1969), Dekker inc. , New-York.

- 31 - L'annexe I est constituée pour l'essentiel d'une communication de
O. BETHOUX, J. BOJOLY et J. CHAUSSY qui a été présentée aux Journées
de Calorimétrie et d'Analyse Thermique tenues à Grenoble, les 22
et 23 mai 1975.

- 32 - D. DEW HUGHES, Phil. Mag. 30, 293 (1974).

- 33 - R. LABUSCH, Crystal Lattice defects 1, p 1 (1969).

- 34 - O. BETHOUX, Communication privée.

- 35 - A.M. CAMPBELL, Proceedings of the International Discussion Meeting
on flux pinning in superconductors, Edited by P. Haasen and H.C.
Freyhardt, Göttingen (1975), p 47.

- 36 - R. LABUSCH, Phys. Stat. Sol. 19, 715 (1967).

- 37 - R. LABUSCH, Phys. Stat. Sol. 32, 439 (1969).

- 38 - E.H. BRANDT, Phys. Stat. Sol. 35, 1027 (1969).

- 39 - N.H. SZE and G.T. MEADEN, Physics Letters 37 A, 5 (1971).

- 40 - à publier.

- 41 - L.J. NEURINGER and Y. SHAPIRA, Rev. Sci. Instrum. 40, 10 (1969)
H.H. SAMPLE and L.J. NEURINGER, Rev. Sci. Instrum. 45, 11 (1974).

- 42 - "Positive and negative magnetoresistances in carbons", récapitulation
faite par DELHAES, Centre de Recherches Paul Pascal, Domaine
Universitaire, 33 Talence, France.

S O M M A I R E

	PAGES
Introduction	1
PREMIERE PARTIE : EXPERIMENTATION	3
Chapître I : Les échantillons	4
1 - Préparation	4
2 - Traitements thermiques	5
3 - Etude structurale	7
étude métallographique	8
étude rayons X	9
étude, conclusion sur la structure	10
Chapître II : Les mesures d'aimantation	11
1 - Les cryostats et la mesure de la température	11
2 - La mesure de l'aimantation	13
Chapître III : Calcul de la force de piégeage	18
DEUXIEME PARTIE : RESULTATS EXPERIMENTAUX	22
Chapître I : Les propriétés supraconductrices d'équilibre	23
1 - Les alliages trempés	23
2 - Les alliages maintenus à la température ambiante	25
Chapître II : Le pic de la force de piégeage	30
1 - Revenus de courte durée ; apparition du pic	31
2 - Revenus de durée moyenne	34
a) variation avec le champ magnétique	34
b) variation avec la température	40
courbes isochamp, autostabilité	42
c) variation avec la durée du revenu	45
3 - Revenus de longue durée	47

TROISIEME PARTIE : DISCUSSION ET INTERPRETATION DES RESULTATS	53
Chapître I : Variation de la force d'interaction $\overline{f}_0$	57
Chapître II : Variation du nombre effectif d'interactions	62
Seuil de piégeage	65
CONCLUSION	77
ANNEXE I : Analyse thermique différentielle	79
ANNEXE II : Calcul de la force moyenne de piégeage	85
BIBLIOGRAPHIE	93

Dernière page d'une thèse

VU

Grenoble, le

31/05/76

Le Président de la thèse

VU, et permis d'imprimer,

Grenoble, le

Le Président de l'Institut
National Polytechnique

Le Président de l'Université
Scientifique et Médicale

Ph. TRAYNARD
Président
de l'Institut National Polytechnique

