



HAL
open science

Relations entre l'état structural et les propriétés magnétiques des alliages fer-nickel voisins de Ni₃Fe

Émile Josso

► **To cite this version:**

Émile Josso. Relations entre l'état structural et les propriétés magnétiques des alliages fer-nickel voisins de Ni₃Fe. J. Phys. Radium, 1951, 12 (3), pp.399-401. 10.1051/jphysrad:01951001203039900 . jpa-00234398

HAL Id: jpa-00234398

<https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00234398>

Submitted on 1 Jan 1951

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

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

RELATIONS ENTRE L'ÉTAT STRUCTURAL ET LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES ALLIAGES FER-NICKEL VOISINS DE Ni₃Fe

Par ÉMILE JOSSO.

Sommaire. — Les variations de volume spécifique associées à la transformation ordre \rightleftharpoons désordre de Ni₃Fe ont été mises à profit pour déterminer le diagramme d'équilibre de cette transformation. L'établissement d'un état ordonné dans Ni₃Fe s'accompagne d'une élévation du point de Curie et d'un accroissement du coefficient de magnétostriction longitudinal. Les variations du point de Curie en fonction du degré d'ordre peuvent être suivies avec beaucoup de sensibilité quand on additionne l'alliage d'une petite quantité de molybdène.

Comme il est bien connu depuis les travaux de Leech et Sykes [1], le ferro-nickel *permalloy*, voisin par sa composition (78,5 pour 100 Ni) du composé Ni₃Fe (75,9 pour 100 Ni), est le siège d'une transformation thermique ordre \rightleftharpoons désordre. Une chauffe prolongée au-dessous d'une température dite critique T_c détermine une *surstructure*, c'est-à-dire un arrangement ordonné des atomes de fer et de nickel selon un réseau de cubes à faces centrées. Porté au-dessus de T_c , l'état ordonné tend à se détruire pour donner une solution solide ordinaire, dont les atomes sont distribués aux nœuds du réseau selon les lois de hasard.

La transformation est renversible, mais non exactement réversible. L'hystérésis thermique est suffisante pour permettre de stéréotyper, par refroidissement brusque, l'état désordonné stable à chaud en vue d'étudier, au cours du réchauffage, la création puis la destruction de l'état ordonné. Cette étude est particulièrement aisée et précise par la méthode dilatométrique, car la transformation ordre \rightleftharpoons désordre de l'alliage retentit sur son volume spécifique : une condensation traduit la création de l'état ordonné, dont la destruction se manifeste, par conséquent, par un accroissement de volume.

Guidé par ces considérations, j'ai entrepris d'analyser les modalités du phénomène et, notamment, de préciser les variations de la température critique T_c avec la composition de l'alliage, soit qu'il s'écarte de Ni₃Fe par sa teneur en nickel, soit qu'il renferme des éléments additionnels. Les expériences ont été effectuées par dilatométrie différentielle au laboratoire de la Société Commeny-Fourchambault et Decazeville à Imphy, avec les appareils et selon les techniques de M. Chevenard.

Technique expérimentale. — Les éprouvettes, obtenues à l'état désordonné par hypertrempe à 1000° dans l'huile, subissent un revenu de 100 h à une température θ , maintenue isotherme à mieux que 1° près, puis sont refroidies spontanément à l'air. L'état structural de l'alliage est ensuite contrôlé par un essai au dilatomètre, poussé jusqu'à 750° C.

Si, en effet, θ a été inférieur à T_c , le revenu a créé un état ordonné dont la destruction, au cours même de l'essai dilatométrique, va se manifester

par une expansion : il est donc logique d'en choisir l'amplitude relative $\frac{\Delta l}{l}$ pour caractériser le degré d'ordre réalisé pendant le revenu. Si, au contraire, θ a dépassé T_c , le revenu isotherme a été sans effet sur l'état désordonné initial et nul crochet n'apparaît sur la courbe dilatométrique.

Pour les alliages très proches de Ni₃Fe, la courbe qui représente $\frac{\Delta l}{l}$ en fonction de θ (*fig. 1*) accuse une

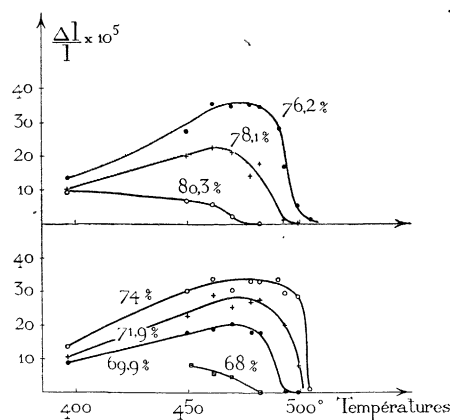


Fig. 1.

quasi-discontinuité, comme d'ailleurs la théorie le prévoit [2, 3] : d'où possibilité d'apprécier T_c avec une incertitude de $\pm 2^\circ$ seulement.

Diagramme d'équilibre. — La figure 2, qui groupe les températures critiques T_c observées pour différents teneurs en nickel, représente le diagramme d'équilibre de la transformation ordre \rightleftharpoons désordre, entre 68 et 80 pour 100 Ni. En deçà et au delà de ces limites, l'aptitude à la mise en ordre est faible et les crochets dilatométriques sont d'une amplitude insuffisante pour être mesurés avec précision. La température critique T_c , égale à 489° pour le permalloy à 78,5 pour 100 Ni, passe par un maximum égal à 503° pour une teneur en nickel voisine de 74 pour 100.

1. Influence du degré d'ordre sur le point de Curie. — *Cas des ferro-nickels binaires.* —

A cause de l'hystérésis qui affecte la transformation ordre \rightleftharpoons désordre, la surstructure commence à se désorganiser par chauffage à une température nettement supérieure à celle qu'indique le diagramme d'équilibre, l'écart observé étant fonction de la vitesse de chauffe. En adoptant une vitesse constante, par exemple 2,5° : mn, on constate que la température à laquelle disparaît l'état ordonné dépend également du degré d'ordre, c'est-à-dire du traitement thermique initial. En règle générale, lorsque la surstructure a été obtenue par hypertrempe, suivie d'un revenu de 100 h au-dessous de T_c , la destruction du *superréseau* nécessite une surchauffe d'autant plus élevée que la température du revenu isotherme a été plus voisine de T_c .

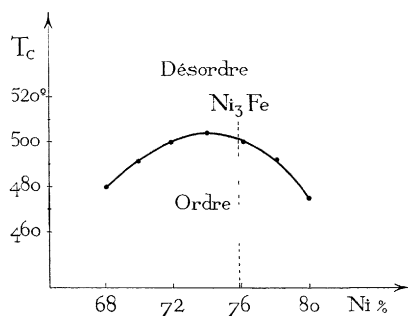


Fig. 2.

Cette propriété peut être mise à profit pour montrer que le point de Curie du permalloy est affecté par les modifications de l'état structural, et qu'il est d'autant plus élevé que l'alliage est mieux ordonné. La détermination du point de Curie de l'état ordonné présente, en effet, de sérieuses difficultés, car la disparition du magnétisme fort se produit à une température très supérieure à T_c . Cela revient à dire que, en général, même si l'on part d'un échantillon bien ordonné, la surstructure sera désorganisée avant que la transformation magnétique se produise et que le point de Curie mesuré sera, en réalité, celui de l'alliage désordonné. Or, en opérant sur un alliage industriel ayant pour composition :

C.....	0,02	Ni.....	78,45
Si.....	traces	Fe.....	complément
Mn.....	0,76		

dont le point de Curie à l'état trempé atteint 560° C, on a pu, par revenu à 484° C, c'est-à-dire à quelques degrés seulement au-dessous de T_c , établir un état d'ordre suffisamment stable pour ne disparaître qu'au-dessus de 560° C par chauffage à la vitesse de 2,5° : mn. Cet échantillon, chauffé rapidement dans le thermomagnétomètre Chevenard, revenait à l'état paramagnétique pour une température de 590° C, supérieure, par conséquent, de 30° à

celle de l'état désordonné. L'allure très abrupte de la courbe thermomagnétique montrait d'ailleurs que la disparition brutale du magnétisme correspondait, non pas à un véritable point de Curie, mais au retour à l'état désordonné, paramagnétique au-dessus de 560° C. Il est vraisemblable que, dans le cas cité, le point de Curie était supérieur à 590° C, mais qu'il n'a pas été possible de l'atteindre, la courbe thermomagnétique ayant été tronquée par la transformation ordre \rightleftharpoons désordre.

Cas des ferro-nickels complexes. — Cet exemple montre combien l'étude de la relation entre le mode de répartition des atomes et la transformation magnétique s'avère délicate. Pour la rendre plus accessible, une méthode commode consiste à ramener le point de Curie au-dessous de la température critique de la transformation ordre \rightleftharpoons désordre, grâce à l'addition au ferro-nickel d'une petite quantité d'un élément convenablement choisi (Cu, Cr, Mo, etc.). Le molybdène se révèle particulièrement efficace, puisque l'incorporation de 3,60 pour 100 Mo à un ferro-nickel contenant 0,02 pour 100 C,

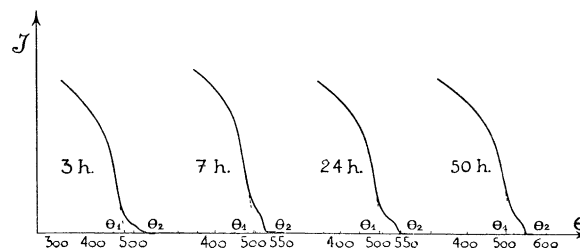


Fig. 3.

0,70 pour 100 Mn et 77 pour 100 Ni abaisse de plus de 100° le point de Curie après trempe, sans affecter de manière trop sensible la température critique T_c . Cette addition semble diminuer les singularités volumétriques associées à la transformation ordre \rightleftharpoons désordre, mais ne les supprime pas. La persistance de cette transformation a d'ailleurs été signalée dans des matériaux contenant jusqu'à 5 pour 100 Mo [4].

Dans cet alliage complexe à 3,6 pour 100 Mo, les déplacements du point de Curie et l'allure générale de la transformation magnétique, permettent de suivre, avec finesse, les modifications structurales qui accompagnent la mise en ordre ou sa disparition. A titre d'exemple, la figure 3 reproduit les courbes thermomagnétiques enregistrées avec des échantillons hypertrempés à 1000° C dans l'huile, puis revenus, pendant des durées variables, à la température uniforme de 450° C. Tous ces échantillons possèdent une transformation magnétique étalée, qui se produit à température d'autant plus élevée que le revenu a été plus prolongé, c'est-à-dire que le degré d'ordre est plus grand. Les courbes se terminent toutes par une partie tronquée, qui traduit

évidemment le retour soudain à l'état désordonné; cette troncature a lieu à température d'autant plus élevée que le séjour à 450°C a été plus long, car l'état ordonné est d'autant plus stable que le degré d'ordre est plus grand. La sensibilité du procédé est telle que l'on peut en tirer parti, dans l'étude des ferro-nickels complexes industriels, pour préciser les modalités du phénomène : détermination de la température critique, action des traitements thermiques, influence des variations de la composition sur l'aptitude à la mise en ordre.

2. Influence du degré d'ordre sur la magnétostriction. — De même que le volume spécifique et le point de Curie, les propriétés magnétostrictives des alliages de la famille du permalloy sont affectées de manière sensible par l'état structural. Si, en désignant par λ_t le coefficient de magnétostriction à saturation mesuré sur des échantillons trempés à 1000°C dans l'huile et par λ_r le même coefficient correspondant aux échantillons trempés, puis revenus 100 h à 450°C, on détermine la grandeur de l'expression $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{\lambda_r - \lambda_t}{\lambda_t}$ pour des alliages fer-nickel de composition variable, on constate que la courbe traduisant les variations de $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ en fonction de la teneur en nickel passe par un maximum très aigu situé sensiblement à l'aplomb de Ni₃Fe. L'existence de ce maximum doit être attribuée au fait que c'est précisément pour Ni₃Fe que le revenu à 450°C présente son efficacité la plus grande; au fur et à mesure que l'on s'éloigne de cette composition, l'aptitude à la mise en ordre s'atténue, et l'effet du revenu sur l'organisation structurale s'affaiblit.

Le permalloy à l'état ordonné possède un coefficient de magnétostriction plus de deux fois plus fort qu'à l'état désordonné, ainsi que le prouvent les chiffres suivants, relatifs à l'alliage à 78,45 pour 100Ni dont l'analyse complète a été donnée ci-dessus :

Après trempe à 1000°C dans l'huile,

$$\lambda_t = 2,0 \cdot 10^{-6}.$$

Après trempe et revenu de 100 heures à 450°C,

$$\lambda_r = 4,8 \cdot 10^{-6}.$$

Il est admis que dans les matériaux magnétiquement doux, une perméabilité élevée et un champ coercitif de valeur réduite sont liés, entre autres facteurs, à une magnétostriction faible. Les chiffres ci-dessus illustrent donc les répercussions impor-

tantes de l'évolution de l'état structural sur les propriétés magnétiques du permalloy et de ses dérivés plus complexes et font ressortir l'intérêt d'une étude approfondie de ces phénomènes. Utilisées conjointement, les méthodes dilatométrique et thermomagnétique se révèlent aptes à l'étude des réorganisations structurales et peuvent compléter utilement la technique radiocristallographique, qui s'avère délicate à mettre en œuvre dans le cas des alliages fer-nickel, en raison des pouvoirs diffractants très voisins des atomes de fer et de nickel.

Remarque de M. Weil. — Les alliages frittés de faible densité se comportent-ils de manière spéciale en ce qui concerne la disparition de l'état d'ordre ?

Réponse de M. Josso. — Mes alliages ont été préparés par frittage à 1180-1200°C, de façon à obtenir un métal très compact, dont la densité se rapproche, autant que faire se peut, de celle des alliages préparés par fusion. Je n'ai pas étudié les alliages frittés à basse température car, au-dessous d'une certaine température, il devient difficile de préparer des échantillons chimiquement homogènes (homogénéité contrôlée au thermomagnétomètre).

Remarque de M. Forrer. — Par chauffage rapide, on peut obtenir pour Ni₃Fe pur ordonné un point de Curie à 610°C supérieur de 15° environ à celui de la phase désordonnée.

Réponse de M. Josso. — Je suis d'accord avec M. Forrer. L'exemple que j'ai cité se rapporte à un alliage industriel à 0,76 pour 100 Mn, mais le même phénomène se retrouve pour les alliages très purs préparés par frittage, dont le point de Curie à l'état désordonné est un peu supérieur à 600°C; avec des vitesses de chauffage suffisamment grandes, on obtient des points de Curie à l'état ordonné supérieurs d'environ 10° à ceux correspondant à l'état désordonné.

Remarque de M. Goldman. — Nous avons mesuré, il y a un an et demi, la magnétostriction du permalloy dans les états d'ordre et de désordre. Nous avons trouvé [5] dans un échantillon trempé une magnétostriction de $1,9 \cdot 10^{-6}$ et dans un échantillon recuit (ordonné) une magnétostriction de $4,15 \cdot 10^{-6}$. Nous avons mesuré la magnétostriction suivant deux directions perpendiculaires pour éliminer l'effet d'une éventuelle direction privilégiée des cristaux ou des domaines.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] LEECH P. et SYKES C. — *Phil. Mag.*, 1939, **27**, 742.
 [2] BRAGG W. L. et WILLIAMS E. J. — *Proc. Roy. Soc.*, 1934, A **145**, 699.
 [3] PEIERLS R. — *Proc. Roy. Soc.*, 1936, A **154**, 207.

- [4] BOOTHLY A. et BOZORTH R. M. — *J. of Applied Physics*, 1947, **18**, 173.
 [5] GOLDMAN J. E. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 471.