

# L'effet Hall de l'alliage AgZn équiatomique

Autor(en): **Jan, Jean-Pierre**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **35 (1962)**

Heft VI

PDF erstellt am: **12.07.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-113284>

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

## L'effet Hall de l'alliage AgZn équiatomique

par **Jean-Pierre Jan** \*)

(Laboratoire suisse de recherches horlogères, Neuchâtel)

(19. III. 1962)

The Hall effect has been measured at room temperature in equiatomic AgZn. The Hall coefficient is  $R = (-4,62 \pm 0,11) \cdot 10^{-12} \text{ m}^3/\text{As}$  in partially disordered  $\beta$ -phase (long-range order of 0,6), and  $R = (-5,55 \pm 0,08) \cdot 10^{-12} \text{ m}^3/\text{As}$  in ordered  $\beta$ -phase. Since disorder cannot be retained by quenching, it has been produced by cold-work. The results agree with Frank's work on  $\beta$ -brass. Smirnov's theory, based upon the tight-binding approximation, is unable to explain them. The  $\zeta$ -phase presents the opposite sign of Hall coefficient, with  $R = (+4,4 \pm 0,2) \cdot 10^{-12} \text{ m}^3/\text{As}$ .

### 1. Introduction

La connaissance de la structure électronique de certains éléments métalliques simples, le cuivre en particulier, a accompli ces dernières années de grands progrès. Il en est tout autrement pour les éléments de transition et les alliages. Ces derniers, en particulier, ne se prêtent pas aux études directes de la surface de Fermi, et l'expérimentateur doit se contenter de méthodes indirectes. Parmi celles-ci, l'effet Hall nous semble appelé à jouer un rôle important, car il se révèle particulièrement sensible à certaines transformations, telles que changements de phase, ou phénomènes ordre-désordre. La possibilité de réaliser, à une même température, plusieurs états d'un alliage de composition donnée, est un atout supplémentaire, car elle permet l'étude de transformations tout en éliminant l'influence de la température.

La transformation ordre-désordre peut aller jusqu'à changer le signe de l'effet Hall<sup>1)</sup>. Dans la majorité des cas, le coefficient de Hall se déplace vers les valeurs positives, mais sans nécessairement changer de signe, en passant de l'état désordonné à l'état ordonné. Les nouvelles limites de zones de Brillouin dues à l'ordre à grande distance produisent une déformation de la surface de Fermi: les électrons deviennent moins «libres», et le coefficient de Hall moins négatif. Ce n'est là qu'une grossière explication qualitative, car le phénomène inverse peut se réaliser parfois: l'ap-

\*) Adresse actuelle: National Research Council, Division of Pure Physics, Ottawa 2, Ontario, Canada.

parition de l'ordre déplace le coefficient de Hall ordinaire de  $\text{MnNi}_3$ <sup>2)</sup> et celui de  $\text{Ag}_3\text{Mg}$ <sup>3)</sup> vers les valeurs négatives.

Dans le cadre d'une étude générale des phénomènes ordre-désordre, nous nous sommes proposé l'étude d'alliages du type laiton  $\beta$ , à cause de leur structure très simple, qui se prêterait éventuellement à une analyse théorique. Ce mémoire décrit les premiers résultats, obtenus avec l'alliage  $\text{AgZn}$ .

Au voisinage de la composition équiatomique, l'alliage  $\text{AgZn}$  présente, à haute température, une phase  $\beta$  désordonnée cubique centrée<sup>4)</sup>, qui fournit par trempe, à la température du laboratoire, une phase ordonnée du type  $\text{CsCl}$ . Cet alliage s'apparente donc au laiton  $\beta$ ; en particulier, la structure désordonnée ne peut pas être conservée lors de la trempe. Il en diffère toutefois par l'existence d'une phase rhomboédrique  $\zeta$ , qui se forme au-dessous de  $280^\circ\text{C}$ , et qui est stable à la température du laboratoire. La phase  $\zeta$  empêche l'observation directe de la transformation ordre-désordre, dont la température de transition devrait se situer vers  $270^\circ\text{C}$ .

Il a été possible, par écrouissage, d'obtenir une phase  $\beta$  partiellement désordonnée à la température du laboratoire et de la comparer à la phase ordonnée à cette même température.

## 2. Préparation des échantillons et méthode de mesure

Un lingot cylindrique de 12 mm de diamètre et 60 mm de longueur, pesant environ 60 grammes, est préparé par fusion des constituants dans un tube de quartz évacué et scellé. Le tube de quartz est monté sur une bascule en acier inoxydable, qui permet un brassage énergique du métal fondu, à  $1000^\circ\text{C}$ , dans un four à moufle. La température du four est ensuite ramenée à  $800^\circ\text{C}$  environ, le tube de quartz est extrait en position verticale, et trempé à l'eau. Un bloc en forme de parallépipède rectangle est ensuite fraisé, puis laminé jusqu'à former un ruban de 0,1 mm d'épaisseur, les passes de laminage à froid alternant avec des recuits de dix minutes à  $500^\circ\text{C}$  dans un four à atmosphère de gaz.

Le ruban final a subi une déformation plastique considérable, les derniers laminages ayant ramené son épaisseur de 0,6 à 0,1 mm sans recuit intermédiaire. Une déformation supérieure détériore les échantillons, qui se fissurent. Quelques échantillons sont alors recuits une heure à  $300^\circ\text{C}$  ou  $500^\circ\text{C}$ , dans un four à atmosphère de gaz d'éclairage, et trempés à l'huile.

Tous les échantillons étudiés par diffraction des rayons X dans une chambre Debye-Scherrer de 57,3 mm de diamètre ont une structure cubique, de paramètre  $a = 3,15 \text{ \AA}$ . Ils présentent tous des raies de surstructure, et une certaine texture. Les raies de surstructure sont toutefois

plus intenses dans les échantillons recuits. Par photométrie des films, il a été possible d'estimer un degré d'ordre à grande distance de 0,6 environ dans un échantillon écroui, la mesure étant faite par rapport à un échantillon recuit où nous avons admis un degré d'ordre unité. Ce résultat est une moyenne sur l'ensemble des raies des diagrammes, et sur des échantillons coupés parallèlement et perpendiculairement à la direction de laminage, dans l'espoir d'éliminer l'influence de la texture.

Les échantillons recuits à 200°C présentent les raies de diffraction de la phase  $\zeta$ .

L'analyse spectrographique du ruban final révèle la présence de faibles quantités de silicium, de cuivre et de magnésium. Les résultats de l'analyse chimique, normalisés pour fournir un total de 100%, sont consignés dans le Tableau 1. Les teneurs en impuretés doivent être considérées comme des limites supérieures. La pureté de l'alliage dépasse donc 99,9% en poids. Relevons encore qu'il s'agit de moyennes sur des échantillons prélevés en trois endroits différents sur le ruban.

Tableau 1  
Composition de l'alliage étudié

	Ag	Zn	Si	Cu	Mg
Pourcent en poids . . .	62,78	37,12	0,03	0,04	0,03
Pourcent atomique . .	50,49	49,26	0,09	0,05	0,11

La mesure de l'effet Hall s'effectue à la température du laboratoire sur des échantillons rectangulaires de  $50 \times 10 \times 0,1$  mm, selon la méthode classique des trois prises de potentiel. Les champs magnétiques sont fournis par un aimant permanent Variflux (Laboratory for Science, Oakland, California); ils sont réglables entre 1000 et 7000 Oe, pour un entrefer fixe de 2 mm et des pièces polaires de 50 mm de diamètre. La mesure du champ s'effectue au moyen d'un gaussmètre Siemens, à effet Hall.

L'échantillon est monté en série avec une résistance étalon de 1 m $\Omega$ ; tous deux sont parcourus par un courant continu de 5 A environ. L'effet Hall est mesuré par comparaison à la résistance étalon, pour quatre champs magnétiques différents, au moyen d'un amplificateur galvanométrique à cellules photoélectriques, monté selon le circuit de MACDONALD<sup>5)</sup>. La sensibilité utilisée pour les mesures d'effet Hall correspond à une déviation du spot de 300 mm par microvolt, la f.é.m. de Hall étant de l'ordre de 0,2  $\mu$ V au maximum. Le signe de l'effet Hall est déterminé par comparaison à un échantillon de cuivre, où l'effet est négatif.

L'épaisseur de l'échantillon est mesurée par un comparateur S.I.P. sensible au micron.

L'échauffement de l'échantillon sous l'influence du courant est négligeable; un thermocouple fixé à l'un des échantillons en phase  $\beta$  a décelé un accroissement de température d'environ 1°C.

### 3. Résultats et discussion

Les résultats portent sur deux échantillons partiellement désordonnés, et sur quatre échantillons ordonnés, dont trois ont été traités à 300°C, et un à 500°C, ainsi que sur deux échantillons en phase  $\zeta$  traités à 200°C. Seize séries de mesures d'effet Hall ont été effectuées vers 22°C. Les résultats sont consignés dans le Tableau 2, où figurent aussi les résultats de mesures de résistivité électrique.

Tableau 2  
Effet Hall et résistance électrique de l'alliage AgZn

	Coefficient de Hall à 22°C $R \cdot 10^{12} \text{ m}^3/\text{As}$	Résistivité à 22°C $\rho \cdot 10^8 \Omega \text{ m}$	Coefficient thermique de la résistivité entre 0 et 22°C $\alpha \cdot 10^3$
Phase $\beta$ écrouie (partiellement désordonnée)	$-4,62 \pm 0,11$	$5,7 \pm 0,2$	4,0
Phase $\beta$ recuite (ordonnée) . . . . .	$-5,55 \pm 0,08$	$5,7 \pm 0,2$	4,0
Phase $\zeta$ . . . . .	$+4,4 \pm 0,2$	$14 \pm 1$	1,4

Les incertitudes représentent l'erreur moyenne quadratique. L'écart entre les valeurs relatives à l'effet Hall de la phase  $\beta$  dépassant nettement la marge d'erreur, on peut conclure à une influence du désordre d'écrouissage sur le coefficient de Hall. Une influence indépendante du phénomène ordre-désordre semble exclue; en effet, l'écrouissage d'un élément métallique comme le cuivre ne modifie le coefficient de Hall que de 1%<sup>6)</sup>.

Il est intéressant de noter le renversement du signe de l'effet Hall en passant de la phase  $\beta$  à la phase  $\zeta$ . Quant à la résistivité électrique, elle n'est pas influencée par le degré d'ordre, à la précision de nos expériences près.

Les résultats ci-dessus sont, à notre connaissance, les premiers permettant d'étudier l'influence du degré d'ordre dans un alliage du type laiton  $\beta$ , à une même température. Il est toutefois possible de tenter une comparaison avec le travail de FRANK<sup>7)</sup> qui a étudié divers laitons en fonction de la température. La Figure 1 reproduit les résultats de FRANK pour un laiton  $\beta$  à 47,7% at. de zinc. L'alliage ordonné présente, à la température du laboratoire, un coefficient de Hall de  $-6 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3/\text{As}$ , alors qu'une extrapolation linéaire fournirait  $-4 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3/\text{As}$  pour l'alliage désordonné à cette même température. L'ordre de grandeur et le

signe de la variation sont en bon accord avec nos résultats. Les résultats de YONEMITSU et SATO<sup>3)</sup> sur le laiton  $\beta$  ne sont pas assez précis pour permettre une comparaison.

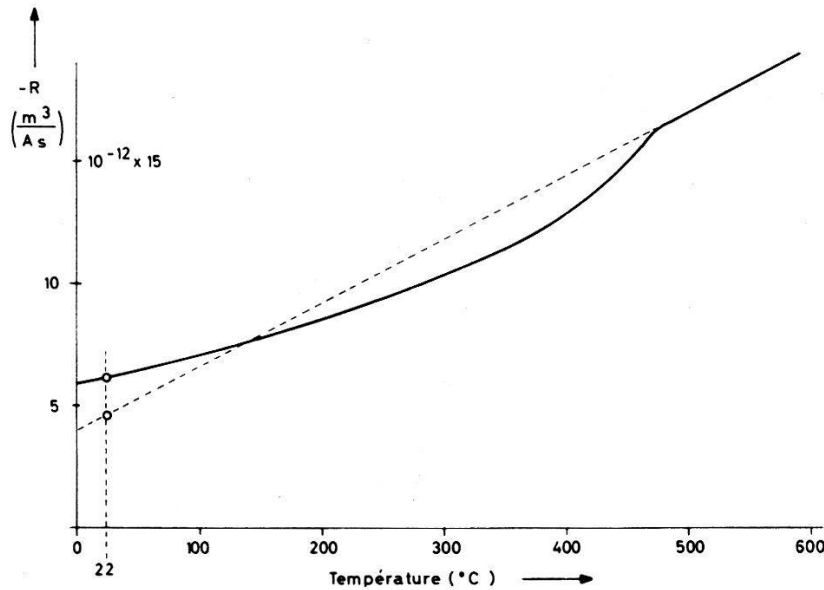


Fig. 1

Coefficient de Hall du laiton  $\beta$  (47,7% at. Zn) en fonction de la température, selon FRANK<sup>7)</sup>. L'extrapolation est une tentative d'estimer le coefficient de l'alliage désordonné, à la température du laboratoire.

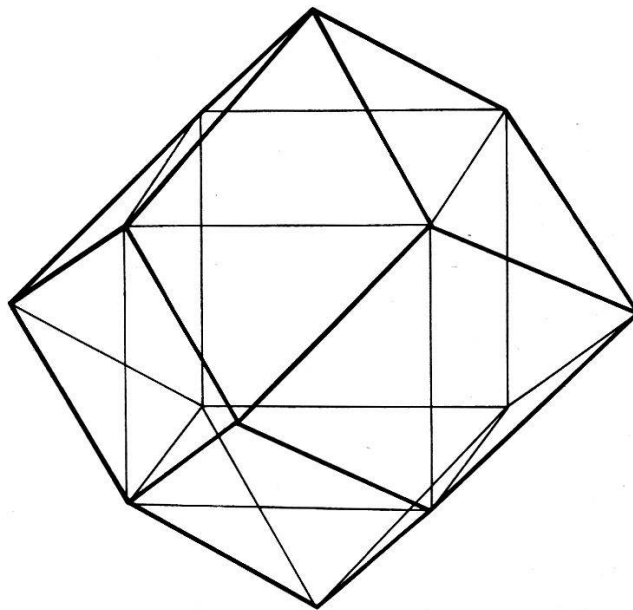


Fig. 2

Première zone de Brillouin du réseau cubique centré; le cube inscrit est la première zone due à la surstructure.

En comptant 1,5 électrons libres par atome, on obtient un coefficient de Hall valant  $-65 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3/\text{As}$ , alors que les valeurs trouvées pour la phase  $\beta$  sont inférieures d'un ordre de grandeur. La première zone de

Brillouin de l'alliage désordonné est un dodécaèdre régulier contenant deux électrons par atome, alors que pour l'alliage ordonné, elle est un cube de volume moitié (Fig. 2). Le côté du cube étant pris pour unité, la sphère contenant 1,5 électrons libres par atome a un rayon de 0,710, alors que la distance du centre à une face du dodécaèdre est légèrement inférieure, et vaut 0,707. Il n'est donc pas étonnant que le modèle des électrons libres soit inapplicable, la surface de Fermi étant probablement très différente de la sphère, même dans l'alliage désordonné. Une prédiction théorique de la valeur numérique du coefficient de Hall et de sa variation lors de la transformation ordre-désordre nécessite la connaissance des surfaces d'énergie dans l'espace  $k$ , et de leur variation en fonction du degré d'ordre à grande distance. Le coefficient de Hall s'exprime en effet par des intégrales étendues à la surface de Fermi, et qui contiennent la vitesse de groupe et la masse effective des électrons. SMIRNOV<sup>8)</sup> a calculé l'énergie des électrons pour le réseau qui nous intéresse ici, en utilisant l'approximation des électrons fortement liés, et en tenant compte du degré d'ordre et de la composition. Les résultats permettent de prédire un effet Hall indépendant du degré d'ordre, pour ce type d'alliage<sup>9)</sup>. L'approximation des électrons fortement liés, utilisée par SMIRNOV, n'explique donc pas la variation que nous observons. Signalons toutefois que le modèle de SMIRNOV est capable de prédire, pour d'autres types d'alliage, un changement du signe de l'effet Hall.

Quant à la valeur positive du coefficient de Hall pour la phase  $\zeta$ , elle est évidemment liée à une modification de la structure électronique de l'alliage. En l'absence de théorie quantitative, il faut se contenter de cette affirmation qualitative.

L'auteur exprime ses remerciements à la firme Métaux Précieux S.A. à Neuchâtel, pour avoir gracieusement laminé les échantillons, ainsi qu'à MM. RENAUD et DELALOYE pour l'analyse chimique de l'alliage.

### Bibliographie

- 1) Voir les données numériques compilées par R. JAGGI dans «LANDOLT-BÖRNSTEIN, Zahlenwerte und Funktionen», 6<sup>e</sup> édition, Vol. 2, 6<sup>e</sup> partie, Springer, Berlin 1959, p. 161-222. Voir aussi T. MUTO et Y. TAKAGI, *Solid State Physics* 7, 193 (1955); J.-P. JAN, *Solid State Physics* 5, 1 (1957).
- 2) S. FONER, F. E. ALLISON et E. M. PUGH, *Phys. Rev.* 109, 1129 (1958).
- 3) K. YONEMITSU et T. SATO, *J. Phys. Soc. Japan* 13, 998 (1958).
- 4) W. B. PEARSON, «*A Handbook of Lattice Spacings of Metals and Alloys*», Pergamon Press, 1958.
- 5) D. K. C. MACDONALD, *J. Sci. Instr.* 24, 232 (1947).
- 6) B. WIENER et G. GROETZINGER, *J. Appl. Phys.* 23, 441 (1952).
- 7) V. FRANK, *Kgl. Danske Videnskab. Selskab Mat.-fys. Medd.* 30, N° 4 (1955).
- 8) A. A. SMIRNOV, *Zhur. Eksptl. i Teoret. Fiz.* 17, 730 (1947).
- 9) A. A. SMIRNOV, *Zhur. Tekh. Fiz.* 18, 153 (1948).