

PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

Antiphases périodiques. Transformation antiphase-ordre à grande distance

par

A. HAUPTMAN, R. KLEINBERGER, H. OKUZUMI, P. PERIO et
M. TOURNARIE

Rapport CEA n° **2023**

1961

CENTRE D'ETUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY

CEA 2023 - HAUPTMAN A., KLEINBERGER R., OKUZUMI H., PERIO P.,
TOURNARIE M.

Antiphases périodiques. Transformation antiphase-ordre à grande distance (1961).

Sommaire. — Les antiphases périodiques sont des structures ordonnées dans lesquelles l'élément ordonnable alterne régulièrement entre deux sites disponibles, suivant une ou deux directions.

Nous étudions, dans le travail présenté, deux propriétés particulières des antiphases périodiques :

1° L'irrationalité ou la variation continue de la période d'antiphase.

2° La transition réversible entre l'état antiphase et l'état d'ordre à grande distance.

Nous avons calculé la distribution des amplitudes diffractées pour le modèle « rationnel statistique ». Elles sont facilement identifiables et les deux types de diagrammes observés sont présentés.

CEA 2023 - HAUPTMANN A., KLEINBERGER R., OKUZUMI H., PERIO P.,
TOURNARIE M.

Periodic antiphases. Long distance antiphase-order transformations (1961).

Summary. — Periodic antiphases are ordered structures in which the movable elements alternates regularly between two available sites, in one or two directions.

We study in the present work two particular properties of periodic antiphases:

1° The irrationality or the continuous variation of the periodic antiphase.

2° The reversible transition between the antiphase state and that of long distance order.

We have calculated the distribution of the diffracted amplitudes for the 'rational statistic' model. They can easily be identified and the two types of diagram observed are presented.

Pour la transformation antiphase-ordre à longue distance, nous proposons un modèle de croissance latérale d'un domaine au détriment de l'autre. Le calcul montre que, dans ce cas, certaines réflexions d'ordre réapparaissent, accompagnées de satellites supplémentaires, dont l'amplitude n'est pas proportionnelle à celle des satellites de l'antiphase pure, contrairement au cas d'une double diffraction.

On décrira ensuite l'évolution non réversible d'alliages Au_3Mn , faisant apparaître des interactions entre domaines de type différent.

On montrera enfin un diagramme d'alliage Au_3Mn , où les frontières d'antiphase sont constituées de plans 130.

For the long distance antiphase-order transformation, we propose a model in which a domain grows laterally at the expense of the other. Calculation shows that in this case certain order reflections re-appear accompanied by extra satellites whose amplitude is not proportional to that of the pure antiphase satellites, the opposite of the case of a double diffraction.

The irreversible evolution of Au_3Mn alloys is then described; in this case interactions between domains of different type occur.

Finally a diagram for the alloy Au_3Mn is given; the antiphase boundaries are made up of 130 planes.

ANTIPHASES PERIODIQUES TRANSFORMATION ANTIPHASE-ORDRE A GRANDE DISTANCE

A. HAUPTMAN, R. KLEINBERGER, H. OKUZUMI, P. PERIO, ET M. TOURNARIE
Commissariat à l'Energie Atomique - C.E.N., Saclay, Gif s/Yvette (S. et O.) France

Les antiphases périodiques sont des structures ordonnées dans lesquelles l'élément ordonnable alterne régulièrement entre deux sites disponibles, suivant une ou deux directions.

De nombreux exemples en ont déjà été donnés: Wilkens et Schubert (1957), Ogawa et Watanabe (1954), Fujiwara (1957), Ogawa et al. (1958), Glossop et Pashley (1959), Watanabe (1958), Pianelli et Faivre (1959), Okuzumi, Pério et Tournarie (1959). Dans le travail présenté, nous étudions deux propriétés particulières des antiphases périodiques:

1. L'irrationalité ou la variation continue de la période d'antiphase.
2. La transition réversible entre l'état antiphasé et l'état d'ordre à grande distance.

Les échantillons, préparés par évaporation sous vide ont une épaisseur nominale de 350 Å. Plusieurs méthodes de mesure de cette épaisseur ont été essayées avec un accord au moins qualitatif.

Les périodes non entières avaient déjà été signalées mais le plus souvent attribuées à des mélanges statistiques de périodes rationnelles. Nous avons calculé la distribution des amplitudes diffractées pour le modèle irrationnel périodique et le modèle „rationnel statistique”. Elles sont très facilement identifiables et les deux types de diagramme ont été effectivement observés (fig. 1 et 2). Le plus fréquemment rencontré reste le modèle irrationnel périodique. Ceci est à rapprocher des récentes études de magnétisme mettant en évidence des périodes incommensurables avec le réseau cristallin (Herpin et al. 1960).

Nous avons incidemment observé des effets de cohérence entre des domaines d'orientation différente et même des interactions entre domaines de type différent, dont la genèse est probablement à rapprocher de celle des zones de Guinier-Preston (fig. 4). L'évolution thermique de ce genre de structure est irréversible dans nos conditions expérimentales. Par contre, la transition antiphase-ordre à grande distance est, elle, parfaitement définie et réversible.

Les systèmes décrits sont donc thermodynamiquement stables.

Cette transition se traduit, en diffraction d'électrons, par l'apparition, dans le spectre de l'antiphase, de réflexions supplémentaires à la position qu'auraient normalement les réflexions du réseau ordonné. Toutefois, ces taches s'accompagnent d'un nouveau système de satellites (fig. 6) dont l'évolution permet de distinguer entre les processus monophasique et diphasique. Compte tenu d'un possible phénomène de diffraction multiple, cinématique ou dynamique, nous proposons un modèle permettant d'interpréter cette transition continue.

Dans ce modèle, la transformation antiphase-ordre à longue distance, s'effectuerait par la croissance latérale d'un créneau représentant un site d'occupation au détriment de l'autre, la période totale $2M$ restant constante (fig. 5).

Un calcul aisé montre que certaines réflexions d'ordre se rallument progressivement et sont accompagnées d'un système de satellites alignés selon la direction normale aux frontières d'antiphase.

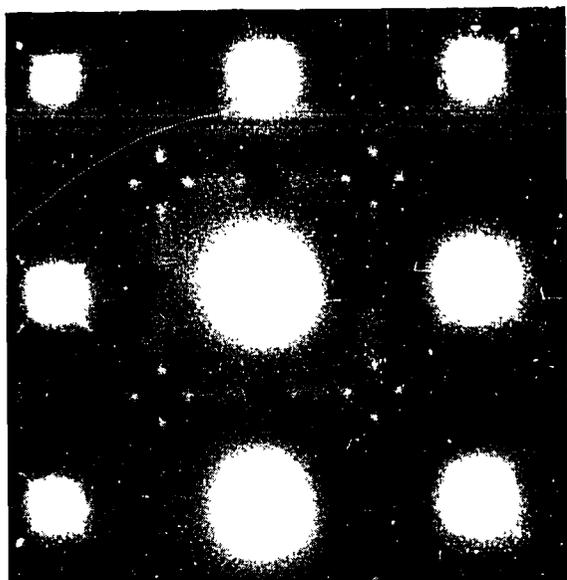


Fig. 1 Antiphase du type statistique

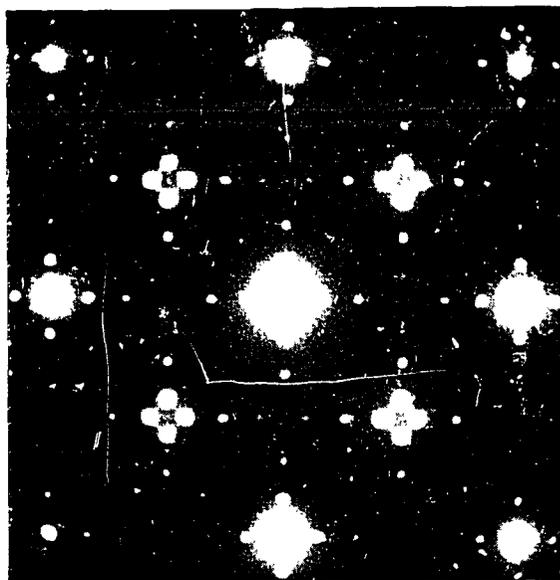


Fig. 2 Antiphase irrationnelle à une direction type AuCu. $M = 3.15$

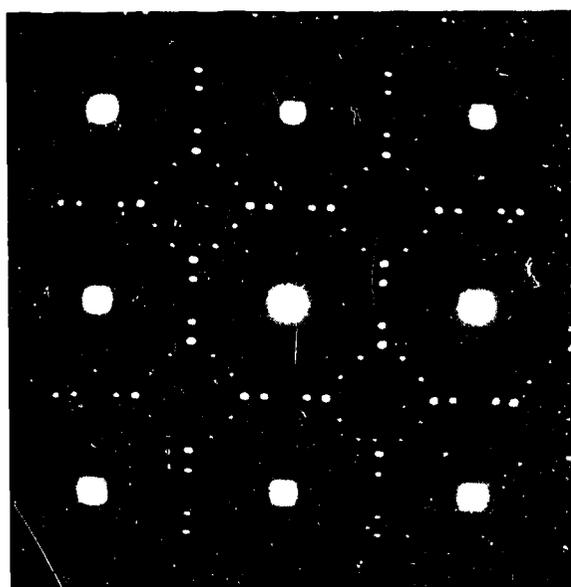


Fig. 3 Antiphase à deux directions type Au_3Mn . $M_1 = 1.17$
 $M_2 = 2.25$

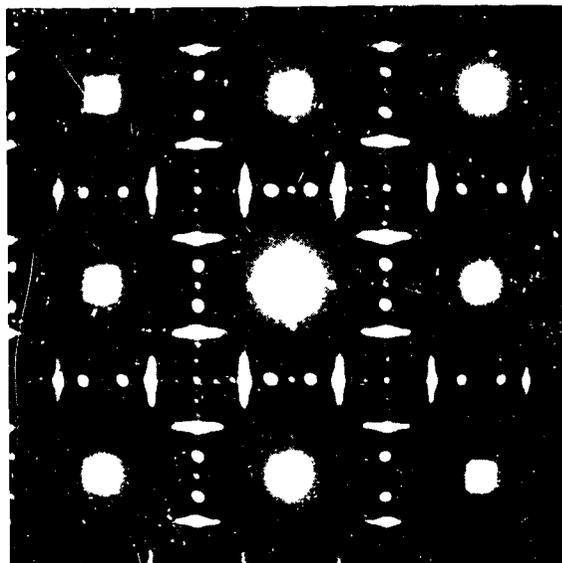


Fig. 4 Effets de cohérence entre domaines de type différent (barrettes) Au_3Mn

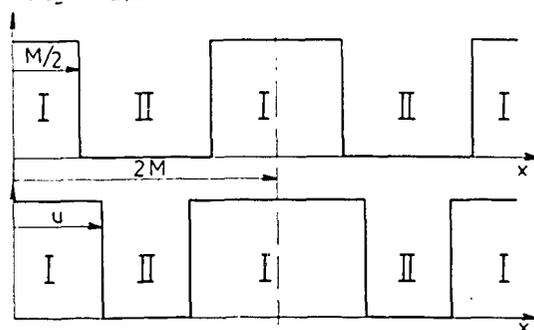


Fig. 5 Schéma proposé de la transformation antiphase-ordre à grande distance

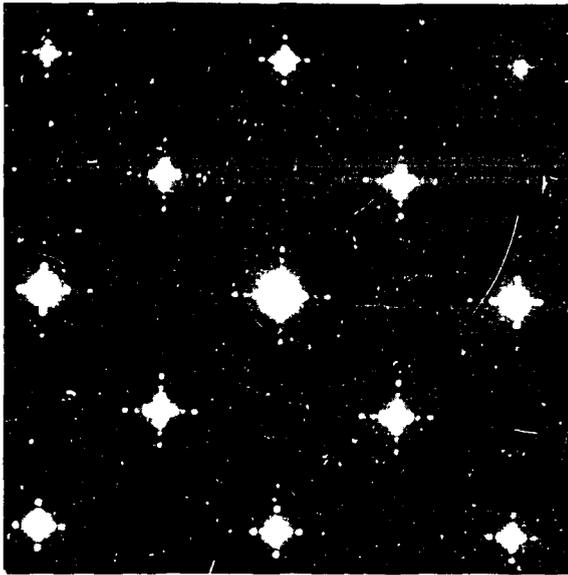


Fig. 6 Transition antiphase-ordre à grande distance. Apparition des réflexions [110] et des satellites pairs

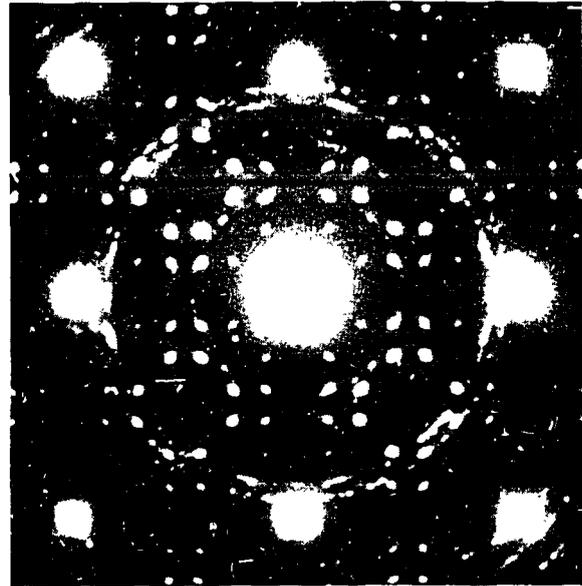


Fig. 7 Antiphase à une direction type Au_3Mn . Frontières d'antiphase parallèles à des plans d'indice [130]

L'amplitude de la série des satellites est donnée par

$$A_m = \sum_m (-1)^{m+1} \frac{1}{2m+1} \cos \pi (2m+1) \left(\frac{u}{M} - \frac{1}{2} \right) \delta \left(X - \frac{2m+1}{2M} \right) \\ + \sum_m (-1)^{m+1} \frac{1}{2m} \sin 2\pi m \left(\frac{u}{M} - \frac{1}{2} \right) \delta \left(X - \frac{2m}{2M} \right).$$

la tache centrale valant $-2 \left(\frac{u}{M} - \frac{1}{2} \right)$, M et U étant les demi-période et demi-largeur du créneau. La série des harmoniques pairs n'apparaît que pour $u \neq \frac{M}{2}$ et il n'y a pas de proportionnalité entre leur amplitude et celle des taches correspondantes de la série impaire, contrairement au cas d'une double diffraction.

Ce modèle permet, incidemment, de lever certaines anomalies apparaissant dans des diagrammes de diffraction d'alliages du type $AuCu_3$. L'évolution de l'image cohérente en microscopie électronique est parfaitement conciliable avec ce modèle.

Finalement, nous avons observé l'existence, dans le système Au_3Mn , d'antiphases périodiques dont les frontières sont constituées de plans à indice élevé [130] (fig. 7) au lieu des [100] classiques pour les systèmes cubiques et pseudo-cubiques.

Références

- Fujiwara, K., *J. Phys. Soc. Japan* **12**, 7, 1957.
 Glossop, A. et Pashley, D. W., *Proc. Roy. Soc. A* **250**, 132, 1959.
 Herpin, A., Mériel, P. et Villain, J., *Phys. Radium* **21**, 67, 1960.
 Ogawa, S. et Watanabe, D., *J. Phys. Soc. Japan* **9**, 475, 1954.
 Ogawa, S., Watanabe, D., Watanabe, H. et Komoda, T., *Acta Cryst.* **11**, 872, 1958.
 Okuzumi, H., Pério, P. et Tournarie, M., *Acta Cryst.* **12**, 1039, 1959.
 Pianelli, A. et Faivre, R., *C. R. Acad. Sci.* **248**, 1661 et 1663, 1955.
 Wilkens, W. et Schubert, K., *Z. Metallk.* **48**, 550, 1957.

FIN