

NNT : 2016SACLN057

THÈSE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY
PRÉPARÉE À
L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE DE CACHAN
(École Normale Supérieure Paris-Saclay)

Ecole doctorale n°575 EOBÉ
Spécialité de doctorat : Génie Électrique

par

Adrien Mercier

Contributions à l'étude et la réalisation de composants magnétiques
monolithiques réalisés par PECS/SPS et à leurs applications en
électronique de puissance

Thèse présentée et soutenue à l'ENS Cachan, le 9/12/2016.

Composition du Jury :

Éric Labouré	Professeur à l'Univ. Paris-Sud - GeePs	Président
Emmanuel Sarraute	Maitre de conférences à l' Univ. Toulouse - LAPLACE	Rapporteur
Raul Valenzuela	Professeur à l'Universidad Nacional Autónoma de México	Rapporteur
Hervé Chazal	Maitre de conférences à l'Univ. Grenoble - G2Elab	Examineur
Richard Lebourgeois	Ingénieur de Recherche à Thales R&T	Examineur
Jean-Jacques Rousseau	Professeur à l'Univ. Saint-Étienne - Hubert Curien	Examineur
Vincent Loyau	Maitre de conférences à l'ENS Cachan - SATIE	Encadrant
Frédéric Mazaleyrat	Professeur à l'ENS Cachan - SATIE	Directeur

Sommaire

1	Présentation générale	7
I	Introduction, état de l'art, et généralités concernant les ferrites utilisés pour le génie électrique	9
2	Introduction et état de l'art	11
2.1	Quel matériau pour quelle fréquence ?	11
2.2	Les ferrites	12
2.2.1	Les généralités sur les ferrites	12
2.2.2	Les pertes magnétiques dans les ferrites spinelles	12
2.3	Les micro-inductances et micro-transformateurs	14
2.4	Les composants monolithiques	17
2.5	Le frittage PECS/SPS	19
2.6	Objectif principal de la thèse	20
3	Les grandeurs magnétiques	21
3.1	Introduction	21
3.2	Le champ et l'induction dans la matière	21
3.2.1	Le moment magnétique	22
3.2.2	L'aimantation	22
3.2.3	La polarisation	23
3.2.4	Liens entre les grandeurs	23
3.2.5	Passage du champ externe au champ interne	26
3.2.5.1	Exemple de mesure magnétométrique : le magnétomètre	26
3.2.5.2	Exemple de mesure fluxmétrique : H-coil et B-coil	28
3.2.5.3	Exemple de mesure fluxmétrique : le tore bobiné	29
3.3	La classification des matériaux magnétiques	30
3.3.1	Le diamagnétisme	30
3.3.2	Le paramagnétisme	30
3.3.3	Le ferromagnétisme	34
3.3.4	L'antiferromagnétisme	39
3.3.5	Le ferrimagnétisme	40
3.4	Conclusion	44
4	La fabrication des ferrites	45
4.1	Introduction	45
4.2	Généralités sur les ferrites	46
4.2.1	Propriétés structurales	46

4.2.1.1	Les hexaferrites	46
4.2.1.2	Les ferrites spinelles	48
4.2.1.3	Les ferrites grenats	52
4.2.2	Propriétés électriques	53
4.2.3	Propriétés magnétiques	54
4.3	Synthèse conventionnelle des ferrites spinelles	58
4.3.1	Ferrites monocristallins	58
4.3.2	Ferrites polycristallins	58
4.3.2.1	Matières premières	58
4.3.2.2	Broyage et mélange	59
4.3.2.3	Chamottage	59
4.3.2.4	Mise en forme des pièces	59
4.3.2.5	Frittage	59
4.4	Le frittage SPS/PECS	60
4.4.1	Généralités	60
4.4.2	Les matières premières	61
4.4.3	Le broyage/mélange des matières premières	62
4.4.4	Le séchage	65
4.4.5	L'affinement	65
4.4.6	Le frittage	65
4.4.7	La décarburation et la réoxydation	68
4.4.8	La vérification	69
4.4.9	Conclusion du procédé PECS pour le ferrite NiCuZn	69
4.5	Conclusion	71

II Caractérisation et optimisation du matériau magnétique pour la fabrication de composants monolithiques 73

5	La compensation de la constante d'anisotropie magnétocristalline	75
5.1	Introduction	75
5.2	Les constantes d'anisotropie	76
5.2.1	La balance de torsion	76
5.2.2	L'anisotropie dans le cristal	79
5.2.3	Les valeurs remarquables	87
5.2.4	Le champ d'anisotropie	91
5.3	L'idée de la compensation	93
5.4	La mesure de la constante au SATIE	98
5.4.1	La détection de point singulier	98
5.4.2	La mesure du deuxième harmonique	110
5.5	L'incertitude concernant la compensation	114
5.6	Conclusion	116
6	L'optimisation de la composition chimique du ferrite	119
6.1	Introduction	119
6.2	L'influence du taux de cobalt	119
6.2.1	Les mesures magnétiques	122
6.2.2	Analyses au microscope électronique et au diffractomètre	125
6.3	Étude du défaut de fer	128

6.3.1	Mesures de résistivité	128
6.3.2	La spectrométrie photoélectronique X	131
6.3.3	La spectrométrie Mössbauer	134
6.3.4	Le recuit	135
6.4	Conclusion	136
7	La fabrication des transformateurs monolithiques	139
7.1	Introduction	139
7.2	Le cofrittage	140
7.3	Les matériaux	142
7.3.1	Les spirales de cuivre	143
7.3.2	Le diélectrique	149
7.3.3	Le matériau magnétique	151
7.4	L'assemblage et le cofrittage - version initiale	157
7.5	La validation du protocole par tomодensitométrie	159
7.5.1	1 ^{ers} essais : structure à contacts enfouis	160
7.5.2	2 ^{èmes} essais : structure à contacts sortis sur une face	161
7.5.3	3 ^{èmes} essais : structure à isolation renforcée	163
7.5.4	4 ^{èmes} essais : ajout de CaO dans le ferrite	165
7.5.5	5 ^{èmes} essais : ajout de peinture céramique sur le cuivre	167
7.5.6	6 ^{èmes} essais : ajout d'une protection céramique en alumine	170
7.5.7	7 ^{èmes} essais : ajout de deux protections céramiques	173
7.6	L'assemblage et le cofrittage - version finale	175
7.7	Conclusion	177
III	Utilisation des composants fabriqués. Application au cas d'une alimentation de type VRM	179
8	Caractéristiques mesurées et simulées des transformateurs	181
8.1	Introduction	181
8.2	Schémas équivalents et équations	181
8.3	Résultats de mesure	184
8.3.1	Rapport de transformation	184
8.3.2	Inductances	186
8.3.3	Résistances	189
8.3.4	Mesures avec charge résistive	192
8.4	Résultats de simulation	195
8.5	Conclusion	196
9	Application : la réalisation d'un convertisseur statique DC-DC	197
9.1	Introduction	197
9.2	La structure : le VRM entrelacé couplé	198
9.3	Simulations des formes d'ondes	199
9.4	La réalisation du prototype	200
9.5	Performances de la structure	202
9.6	Conclusion	210

10 Conclusions générales et perspectives **211**
10.1 Conclusions 211
10.1.1 Conclusions de la première partie 211
10.1.2 Conclusions de la deuxième partie 212
10.1.3 Conclusions de la troisième partie 214
10.2 Perspectives 215

Chapitre 1

Présentation générale

Ce manuscrit de thèse peut-être considéré comme le compte-rendu des recherches et des travaux réalisés durant le doctorat. La thèse s'est déroulée au sein du laboratoire Satie¹ (Systèmes et Applications des Technologies de l'Information et de l'Energie), qui se situe sur le campus de l'ENS Cachan. Le principal objectif fixé est de réaliser des transformateurs monolithiques et des les utiliser dans une alimentation à découpage. Ces travaux sont financés par la fondation EADS, et ont débuté au 1^{er} octobre 2012.

Le projet de thèse a été rédigé par le professeur Frédéric Mazaleyrat, qui est aussi le directeur de thèse. Par ailleurs, deux autres personnes viennent s'ajouter à l'équipe d'encadrement : Vincent Loyau maître de conférence et Alexandr Pasko chargé de recherche CNRS.

Le sujet de recherche s'inscrit dans une thématique du laboratoire, où il est question d'étudier et de fabriquer des ferrites spinelles pour le génie électrique. Plusieurs thèses se sont déjà intéressées à la question des ferrites au laboratoire Satie, et on peut évoquer celle d'Antony Lucas en collaboration avec Thalès et soutenue en 2010, ainsi que celle de Karim Zehani soutenu en 2011. Antony Lucas a notamment travaillé sur l'optimisation chimique des ferrites afin de diminuer les pertes magnétiques, et Karim Zehani a montré qu'il est possible de cofritter du cuivre massif avec des ferrites NiCuZn par le procédé PECS/SPS². Dans cette lignée, il est convenu de réaliser des composants magnétiques, dont le ferrite sera fritté autour de deux bobinages en cuivre afin d'obtenir des transformateurs monolithiques. Afin de mener à bien ces travaux, la thèse est organisée selon trois parties.

La **première partie** est constitué de trois chapitres. Le premier concerne l'état de l'art des composants magnétiques haute fréquence, en citant notamment ceux qui sont monolithiques. Le second chapitre est un rappel sur les grandeurs magnétiques, tels que le champ et l'induction, et les différents types de magnétisme. Le troisième chapitre est une présentation sur les ferrites spinelles pour le génie électrique. On évoque un point important qui est la fabrication des ferrites, car le procédé de frittage utilisé durant cette thèse est un élément clé de la réalisation. En effet, on mets en avant les différences entre le frittage classique et le frittage par le procédé PECS/SPS.

La **deuxième partie** comprend aussi trois chapitres. Le premier s'attaque à l'optimisation de la composition chimique des ferrite, en s'appuyant sur la compensation de la

1. Anciennement Lésir (Laboratoire Électricité Signaux Robotique) de 1980 à 2002, 61 avenue du président Wilson, 94230 Cachan.

2. Procédé de frittage portant plusieurs noms, dont les acronymes correspondant à Pulsed Electric Current Sintering et Spark Plasma Sintering. On trouve aussi le nom de frittage flash.

constante d'anisotropie magnétocristalline. Un long développement est nécessaire, car les définitions sont très souvent imprécises dans les ouvrages de la littérature. Il s'ensuit le deuxième chapitre ou une seconde tentative d'optimisation chimique est faite, mais cette fois-ci en modifiant le taux de cobalt ou bien le défaut de fer des ferrites. Enfin, le troisième chapitre présente la fabrication des transformateurs coffrités en utilisant le procédé PECS/SPS. Il est volontairement très illustré par des photographies afin de donner le plus de détails concernant l'élaboration du protocole de réalisation.

La **troisième partie** concerne l'utilisation des transformateurs. Un premier chapitre comprend une série de mesure afin de caractériser les composants, notamment par les grandeurs intéressantes pour le génie électrique. Un second chapitre présente une réalisation d'une alimentation DC-DC non isolée qui permet de mettre en avant les performances des composants magnétiques fabriqués. Le choix s'est tourné vers une structure VRM entrelacée couplée, et des mesures de courants/tensions permettent de déterminer les rendements de la structure ainsi que la densité de puissance, qui sont des contraintes prioritaires dans le but d'une industrialisation.

Enfin, un traditionnel dernier chapitre présente les conclusions majeures des travaux, ainsi que les perspectives associées pour des futurs travaux. Bonne lecture.

Première partie

Introduction, état de l'art, et
généralités concernant les ferrites
utilisés pour le génie électrique

Chapitre 2

Introduction et état de l'art

Sommaire

2.1	Quel matériau pour quelle fréquence ?	11
2.2	Les ferrites	12
2.2.1	Les généralités sur les ferrites	12
2.2.2	Les pertes magnétiques dans les ferrites spinelles	12
2.3	Les micro-inductances et micro-transformateurs	14
2.4	Les composants monolithiques	17
2.5	Le frittage PECS/SPS	19
2.6	Objectif principal de la thèse	20

L'arrivée dans les années 1980 des alimentations à découpage a modifié en profondeur le dimensionnement des composants magnétiques. Afin de réaliser l'isolation galvanique, les alimentations linéaires incorporait auparavant dans leur dispositif un transformateur. Ce transformateur était souvent placé en début de chaîne de conversion. Le circuit magnétique était alors composé de tôles en Fe-Si, et la fréquence du flux magnétique était celle du réseau, 50 ou 60 Hz. L'électronique de puissance a permis de déplacer le transformateur et de le mettre au milieu de la chaîne de conversion, entre les transistors de puissance et le filtrage. La fréquence du flux magnétique est alors identique à la fréquence de découpage, qui est souvent au-delà de 10 kHz. La conséquence immédiate est la réduction en taille et en masse des composants passifs, qui se traduit par un gain économique.

Afin de toujours réduire la taille des alimentations, il existe maintenant une course à l'augmentation de la fréquence de découpage. Cette augmentation se fait conjointement avec une avancée des semi-conducteurs de puissance, et avec une avancée des composants passifs. Les travaux réalisés dans ce manuscrit de thèse concernent exclusivement des composants magnétiques, et il est question ici de présenter un bref état de l'art sur ces composants.

2.1 Quel matériau pour quelle fréquence ?

Le principal intérêt d'utiliser un matériau magnétique en génie électrique, notamment dans une alimentation, est de pouvoir canaliser un flux magnétique. Pour cela, il est judicieux d'utiliser des matériaux ayant la plus grande perméabilité possible ainsi qu'une saturation de la polarisation la plus élevée possible. Les matériaux retenus sont les métaux ferromagnétiques, à savoir le fer, le cobalt et le nickel. Mais pour des raisons économiques,

c'est le fer qui est le plus représenté. En effet, les tôles de Fe-Si sont les matériaux magnétiques les plus vendus dans le monde, car elles constituent la base des circuits magnétiques des transformateurs et des machines tournantes.

Cependant, il devient délicat de les utiliser au delà d'une centaine de hertz, car leur faible résistivité conduit à l'apparition de courants de Foucault. Il est alors nécessaire de se tourner vers d'autres matériaux qui sont moins conducteurs, mais aux dépens d'une plus faible perméabilité ou d'une plus faible polarisation à saturation. De facto, il est possible de dresser une correspondance simplifiée entre la fréquence et l'utilisation des matériaux magnétiques.

TABLE 2.1 – Matériaux magnétiques de puissance selon les bandes fréquentielles d'utilisation.

Bande de fréquence	Matériau
50 Hz - 1 kHz	Alliages Fe-Si
1 kHz - 50 kHz	Amorphes et nanocristallins
50 kHz - 1 MHz	Ferrites Mn-Zn
1 MHz - 1 GHz	Ferrites Ni-Zn

2.2 Les ferrites

2.2.1 Les généralités sur les ferrites

Les généralités sur les ferrites sont regroupées dans l'excellent ouvrage de Jan Smit et Henricus Petrus Johannes Wijn : Ferrites [SW59]. Cet ouvrage est en libre accès sur internet, et il existe une version en langue française. Les deux auteurs s'appuient sur leurs travaux de recherches effectués au laboratoire de recherche Philips. Ils incluent aussi de nombreux résultats issus de la littérature académique, ce qui en fait un livre très illustré et riche en données expérimentales. Dès cette époque, les différentes familles de ferrites sont dressées, et depuis, les travaux de recherches sont axés sur l'évolution et l'amélioration de chacune de ces familles. Par la suite, nous concentrons nos dires sur la famille des ferrites spinelles¹.

2.2.2 Les pertes magnétiques dans les ferrites spinelles

En fonctionnement, les ferrites sont sollicités en tant que circuit magnétique. La variation du flux magnétique entraîne inévitablement des pertes magnétiques, qui sont usuellement séparées en pertes par hystérésis (ou statiques), en pertes classiques (ou par courant de Foucault), et en pertes excédentaires (ou supplémentaires). Très tôt dans l'élaboration des ferrites, des publications concernent la possibilité de diminuer les pertes. Par exemple en 1961, Grelfer, Nakada, et Lessoff publient sur la préparation de ferrites faibles pertes ainsi que leurs propriétés. Les auteurs s'aperçoivent que de faire des substitutions de ferrite de cobalt, ou d'ajouter des petites quantités d'oxyde de molybdène ou d'oxyde de vanadium, dans un ferrite de nickel zinc permet de modifier les pertes magnétiques [GNL61]. Ces deux idées (modification de la composition chimique du ferrite et utilisation d'additif) sont à la base de l'amélioration des propriétés des ferrites. A travers les décennies, on

1. Plus de détails sur les ferrites sont donnés dans le chapitre 4.

peut évoquer quelques exemples d'articles qui reprennent ces concepts pour diminuer les pertes. En 2001, Matsuo, Inagaki, Tomozawa et Nakao ajoutent du MnO_2 [MITN01]. En 2003, Su, Zhang, Tang et Xiang ajoutent du MoO_3 [SZTX04]. En 2007, Parvatheeswara Rao, Kim et Kim ajoutent du V_2O_5 [PKK07]. En 2010, Lucas, Lebourgeois, Mazaleyrat, et Labouré étudient l'influence du taux de cobalt dans les ferrites Co-Ni-Cu-Zn [LLML10], [Luc10].

L'origine et le mécanisme des pertes est toujours un sujet en discussion. Les modèles utilisés sur les tôles magnétiques ne sont pas exportables pour les ferrites. Cela vient principalement de la microstructure, où la forme des domaines magnétiques sont en barre pour les tôles, alors qu'ils sont en méandre pour les ferrites. Par exemple, les pertes par courant de Foucault sont facilement modélisables dans les tôles, ce qui n'est pas le cas pour les ferrites [FBB⁺06]. En conséquence, plusieurs tentatives de modèles sont proposés dans la littérature. Un des plus anciens s'appuie sur le modèle de Snoek [Sno48], qui se base sur la précession gyroscopiques des spins des électrons. L'auteur Roshen quant à lui développe en 2007 une théorie selon laquelle la résistivité des matériaux est fluctuante. En fonction du champ électrique induit par la variation de flux magnétique, il peut apparaître une conduction des électrons par effet tunnel, augmentant ainsi la conductivité et donc les pertes [Ros07a], [Ros07b], [Ros07c]. La même année, Ponomorev approfondit le modèle de la loi de Rayleigh (qui permet de décrire mathématiquement la courbe du cycle d'hystérésis d'un matériau soumis à une faible excitation) afin de prédire les pertes selon diverses paramètres [Pon07]. Enfin, en 2011, Martino LoBue, Vincent Loyau et Frédéric Mazaleyrat tente une approche par des considérations thermodynamiques [LLM11].

Quel que soit le modèle théorique, deux généralités peuvent être dégagées à partir d'observations sur la taille des cristallites : une grande cristallite peut se diviser en plusieurs domaines de Weiss séparés par des parois de Bloch². Cette paroi est souvent la source d'une plus grande perméabilité, mais au dépend de l'augmentation de pertes. Cela signifie que pour un ferrite, les pertes magnétiques ne dépendent pas uniquement de sa composition chimique, mais dépendent aussi de sa microstructure. On voit alors apparaître une catégorie d'article centrés autour de la micrographie. Par exemple, Hsu, Ko, et Chen reprennent l'idée de l'ajout de V_2O_5 dans un ferrite Ni-Cu-Zn en se focalisant sur la taille des cristallites, qui sont illustrées par des images de microscope électronique à balayage et en transmission [HKC95]. En 2007, une deuxième étude sur l'ajout V_2O_5 dans un ferrite Ni-Cu-Zn est présentée par Richard Lebourgeois, Sonia Dugueyb, Jean-Pierre Ganne, et Jean-Marc Heintz [LDGH07]. Ces études sur la microstructure se concluent sur le fait que ces ajouts permettent de diminuer la température de frittage, mais amènent à une légère augmentation des pertes. Effectivement, la température et la durée de frittage conditionnent la taille des cristallites des ferrites, et de manière similaire, Su, Zhang, Tang, et Jing publient en 2008 un article sur l'influence de la microstructure sur la perméabilité et les pertes d'un ferrite Ni-Cu-Zn [SZTJ08]. Les auteurs arrivent classiquement à la conclusion que plus la taille des cristallites est grande, plus les pertes sont importantes en hautes fréquences.

Par ailleurs, la mesure des pertes est elle-même un sujet de recherche à part entière. En effet, les mesures effectuées au-delà du mégahertz nécessitent des précautions pour l'instrumentation. Il est question de prendre en compte les problèmes de propagation des signaux, qui sont une source fréquente d'erreurs. C'est cette direction que prennent les auteurs Behzad Ahmadi, Frédéric Mazaleyrat, Gérard Chaplier, Vincent Loyau et Martino LoBue en 2016 [AMC⁺16]. D'autres approches sont possibles, comme par exemple une

2. Ces notions sont présentées dans le chapitre 3.

détermination des pertes par mesure calorimétrique, proposée par Vincent Loyau, Martino LoBue et Frédéric Mazaleyra en 2010 [LLM10].

Toutes ces études montrent que même si des tendances sont facilement observables, il est difficile de prédire avec précision les pertes d'un ferrite spinelle. Trop de paramètres entrent en jeu, ce qui explique que les modèles sont imprécis.

2.3 Les micro-inductances et micro-transformateurs

Les fréquences de découpage sont devenues suffisamment élevées pour que la conception des inductances soit mise à jour. Classiquement, les inductances dans les systèmes de conversion d'énergie se présentent sous la forme d'un enroulement d'un fil autour d'un circuit magnétique. Depuis le début des années 1990, de nouvelles topologies apparaissent régulièrement. On peut par exemple citer l'institut Tyndall, établi à l'université de Cork en Irlande, qui réalise durant les années 2000 les micro-inductances associées aux convertisseurs suivants :

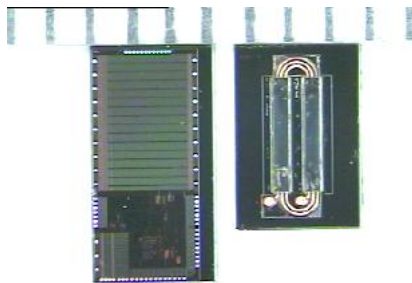


FIGURE 2.1 – Convertisseurs DC-DC 20 MHz faible puissance, avec sa micro-inductance de 110 nH. Institut Tyndall.

Cet exemple montre qu'il existe déjà des technologies de convertisseur DC-DC utilisant des fréquences de découpages de plusieurs dizaines de mégahertz. Cependant, ces technologies sont synonymes de petits volumes et ne permettent pas de transmettre beaucoup de puissance. Ce convertisseur est spécifié pour $V_{in}=3,6$ V, $V_{out}=1,2$ V, $I_{out}=500$ mA, donc avec une puissance de sortie inférieure à 1 W.

Il est aussi possible de trouver une vue en coupe de l'inductance afin de mieux comprendre sa conception.

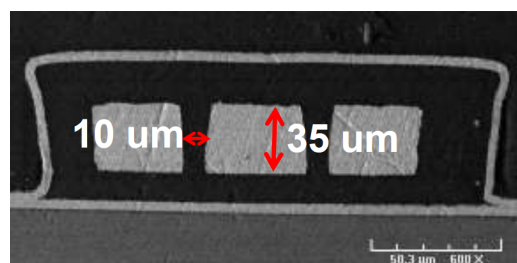


FIGURE 2.2 – Vue en coupe de la micro-inductance. Institut Tyndall.

Sur cette coupe, on retrouve la section rectangulaire du conducteur en cuivre. Tout autour des spires, le constructeur a placé un diélectrique. Le tout est encapsulé par un matériau magnétique (de même niveau de gris sur la figure), et on se doute de par l'épaisseur

de ce matériau qu'il est utilisé afin d'éviter un fort rayonnement (le volume du matériau magnétique est très faible).

Des topologies similaires peuvent se retrouver pour des micro-transformateurs. Par exemple, il suffit de dédoubler le fil de la micro-inductance précédente pour obtenir un micro-transformateur. Des performances d'un tel composant peuvent se trouver dans un article de 1995 écrit par Sullivan et Sanders [SS95].

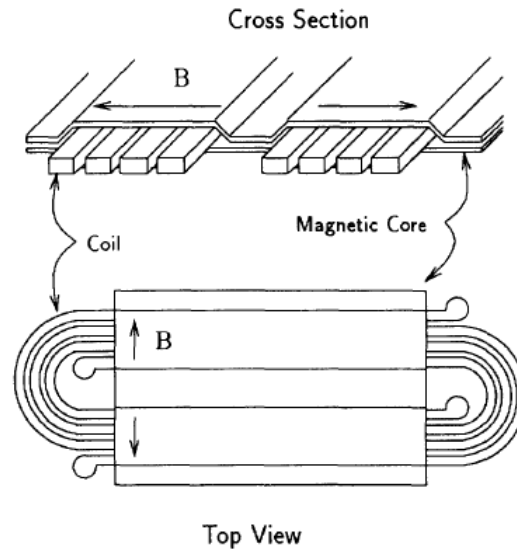


FIGURE 2.3 – Micro-transformateur [SS95].

Le circuit magnétique est composé d'une alternance de couches d'alliage Ni-Fe et de SiO_2 . Les auteurs précisent qu'il est possible d'utiliser un tel composant pour un convertisseur DC-DC 10 MHz 10 W, mais aucune valeur issue de mesure n'est présentée. En revanche, en 2002 Magali Brunet publie un article en utilisant une géométrie de transformateur similaire et réalise un prototype de convertisseur [BOB⁺02].

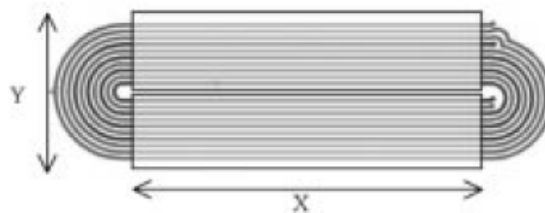


FIGURE 2.4 – Micro-transformateur [BOB⁺02].

Le circuit magnétique est à base de Permalloy ($\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$). Ce transformateur est utilisé dans un convertisseur DC-DC avec un fréquence de découpage de 2 MHz, mais encore une fois pour une faible puissance de sortie : 0,4 W.

Dans le but d'améliorer l'intégration de puissance, on trouve de plus en plus ces micro-inductances et micro-transformateurs "on-chip power module", c'est-à-dire que les conducteurs et les circuits magnétiques sont directement déposés par différentes techniques sur des wafers en silicium, et ces wafers contiennent quant à eux les composants actifs (des transistors en général). Des illustrations pertinentes peuvent être trouvées dans un article de Seok Bae [BHL⁺09].

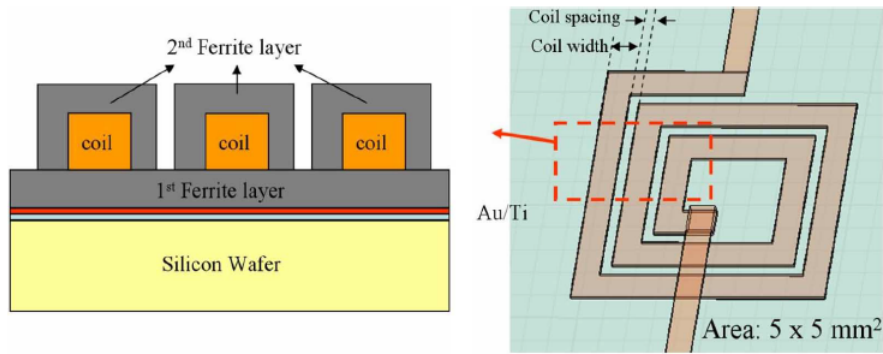


FIGURE 2.5 – Schémas de micro-inductances sur silicium [BHL⁺09].

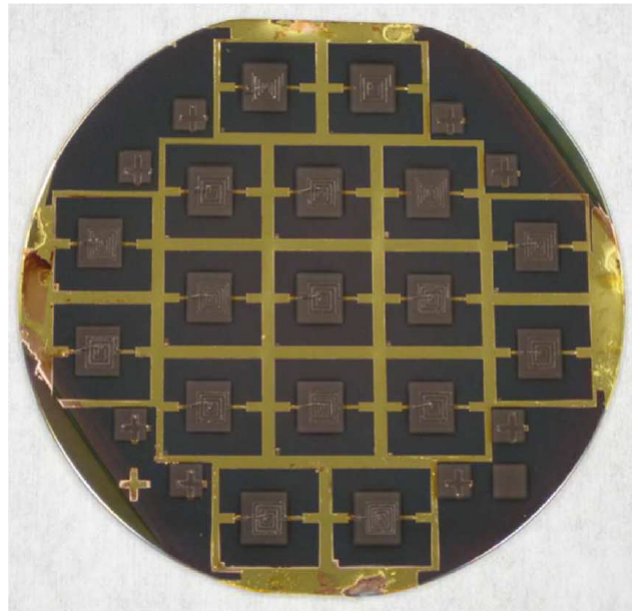


FIGURE 2.6 – Réalisation micro-inductances sur silicium [BHL⁺09].

Enfin, toujours dans la politique de l'intégration de puissance, Magali Brunet publie en 2011 un article où les composants passifs sont intégrés sur silicium ; c'est-à-dire qu'un condensateur est fabriqué en plus d'une inductance afin de réaliser un filtre LC [ABB⁺11]. Les différents composants sont déposés les uns après les autres. A partir d'un substrat en silicium qui est oxydé, une première couche de diélectrique est déposée. Ce diélectrique permet l'apparition d'une faible capacité, mais qui est suffisante pour jouer le rôle de filtre compte tenu des fréquences de découpage utilisées. Par la suite, un film à base d'alliage de Fe-Co-Ni est électro-déposé comme circuit magnétique (qui n'est pas fermé), et enfin, la spirale de cuivre jouant le rôle d'inductance est elle aussi électro-déposée.

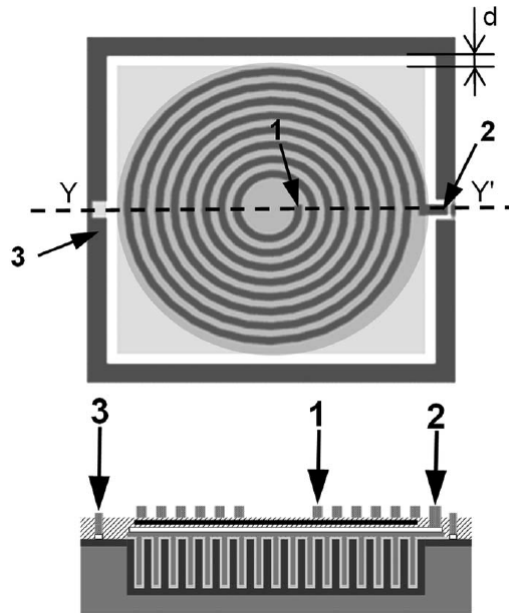


FIGURE 2.7 – Schéma présentant une inductance sur la face supérieure, un condensateur sous l'inductance, le tout déposé sur un wafer en silicium [ABB⁺11].

2.4 Les composants monolithiques

Les différentes techniques de réalisation de micro-inductances et micro-transformateurs nécessitent souvent plusieurs technologies qui peuvent être complexes. Il s'est donc créé une branche particulière où des expériences se concentrent sur la possibilité de fritter le circuit magnétique autour du conducteur. On parle alors de composants monolithiques ou bien de composants réalisés par cofrittage.

Il est souvent fait mention de l'année 1992 dans la littérature, où cinq articles concernant des ferrites ou micro-inductances ont été publiés par des chercheurs du Materials Research Center de TDK Corporation à l'occasion de la sixième conférence internationale sur les ferrites [MNSN92], [NMN92], [Nom92], [NN92], [OMK92]. Ces micro-inductances ont pu être réalisées grâce à deux avancées technologiques : des ferrites NiCuZn frittant à une basse température d'une part, et un conducteur sous forme de pâte d'argent qui résiste à des hautes températures. Les articles sont essentiellement axés sur les problèmes causés par la diffusion de l'argent dans le ferrite.

Un des moyens pour diminuer la température de frittage des ferrites, qui est usuellement comprise entre 1150 °C et 1350 °C, est d'ajouter des espèces chimiques qui facilitent le frittage. Ces espèces sont appelées des fondants, car elles rentrent en fusion à une température inférieure à la température de frittage, et permettent une meilleure diffusion des ions ce qui permet de diminuer la porosité. Il vient qu'il est possible d'obtenir une bonne densité sans pour autant avoir à atteindre des hautes températures. Techniquement, on passe d'un frittage en phase solide [BAB05a] à un frittage en phase liquide [BAB05b]. Par exemple, dès 1973, Kulikowski montre qu'un petit ajout de V_2O_5 (inférieur à 0,5 % massique) permet d'augmenter la densité des ferrites Ni-Zn, mais sans précision quant à la composition exacte du ferrite [Kul73]. En 2007, Richard Lebourgeois publie un article concernant le ferrite $Ni_{0,24}Zn_{0,55}Cu_{0,2}Co_{0,02}Fe_{1,99}O_4$ avec un ajout de V_2O_5 . La température de frittage est de seulement 850 °C [LDGH07].

Toujours dans le but de diminuer la température de frittage, il est possible de jouer

sur la composition chimique du spinelle. C'est ainsi qu'à partir de la famille des ferrites Ni-Zn est née la famille des ferrites Ni-Cu-Zn. En 1996 par exemple, Tatsuya Nakamura publie un article dans lequel des ferrites Ni-Cu-Zn sont frittés à 900 °C, mais cependant la densité de 4,5 reste assez éloignée de la densité théorique [Nak97]. La thèse de Jérôme Ageron soutenue en 1999 est presque entièrement consacrée à l'étude de différents ferrites Ni-Cu-Zn [Age99]. Il conclut en affirmant que la diminution des températures de frittage est une conséquence de la diminution de la température de chamottage et de l'accélération des mécanismes de diffusion à l'origine du frittage. Il ajoute que pour un taux de cuivre de 0,2, la température de chamottage peut-être fixée entre 750 et 800 °C et la température de frittage entre 880 et 950 °C. Il finit sa thèse par la réalisation d'une micro-inductance en cofrittant un fil d'argent dans de la poudre de ferrite à une température de 880 °C.

Plusieurs composants cofrittés ont donc vu le jour depuis le milieu des années 1990, souvent basés sur le procédé multicouche. On vient déposer une électrode en pâte d'argent sur du ferrite, puis on recouvre alternativement l'électrode par du ferrite, puis le ferrite par l'électrode.

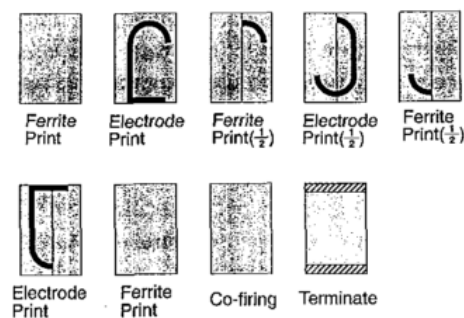


FIGURE 2.8 – Procédé multicouche pour les inductances cofrittées [NOSH99].

On note que le cofrittage est effectué seulement après que l'empilement soit réalisé. Cette technique permet notamment de fabriquer des inductances où le conducteur est parfaitement noyé dans le matériau magnétique, comme illustré sur la figure suivante :

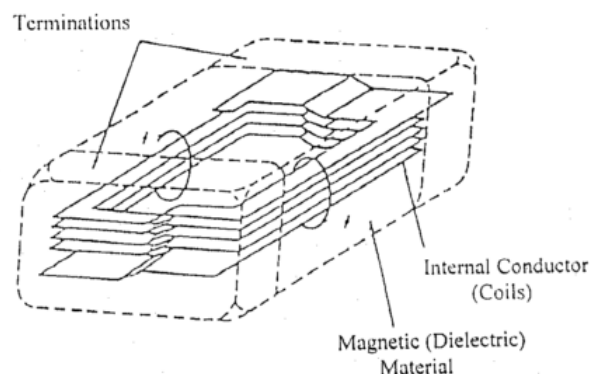


FIGURE 2.9 – Exemple d'inductance cofrittée [HLSC97].

Concernant les transformateurs cofrittés, on peut citer les récents travaux de thèses d'Édouard Brun, où il adopte la technique des multicouches, mais chaque couche est un peu particulière [Bru14]. En effet, chaque couche est réalisée en bande coulée, qui contient du ferrite Co-Ni-Cu-Zn ferrimagnétique mais aussi un ferrite paramagnétique car

volontairement riche en zinc. Le conducteur est justement déposé sur la partie paramagnétique pour que les lignes de champ créées par le primaire se renferment en embrassant le secondaire.

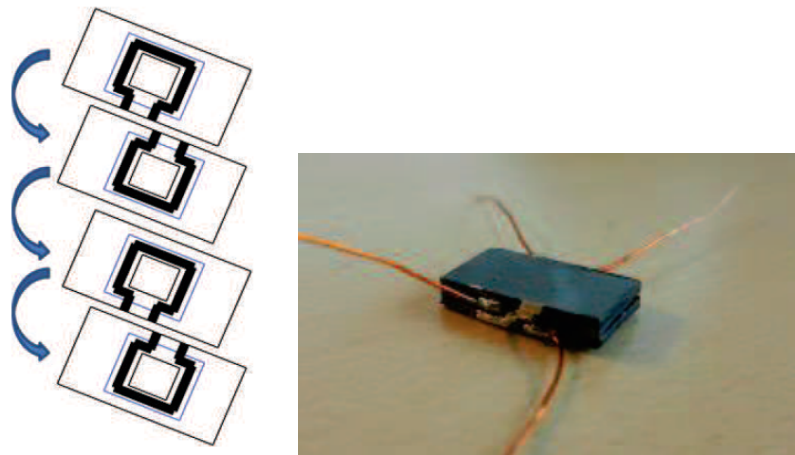


FIGURE 2.10 – Schéma illustratif et réalisation de transformateur cofritté [Bru14].

Une fois l'empilement réalisé correctement, il est ensuite cofritté à 900 °C. Les transformateurs fabriqués possèdent deux spires au primaire, et deux spires au secondaire.

2.5 Le frittage PECS/SPS

Depuis le début des années 2000, une nouvelle technologie de frittage a fait son apparition. Il s'agit du frittage SPS pour Spark Plasma Sintering, qui est rebaptisé PECS pour Pulsed Electric Current Sintering au début des années 2010. En effet, ce procédé permet de fabriquer plusieurs types de matériau, mais en ce qui concerne les ferrites, il n'y a pas de formation de plasma lors du frittage. En revanche, le frittage s'opère par effet joule car un courant traverse le moule contenant le ferrite. L'acronyme PECS correspond alors au phénomène physique utilisé pour fritter. En plus du courant, une pression uniaxiale est appliquée et qui facilite le frittage lui-même car les particules de poudres sont sous contraintes. Une partie du chapitre 4 est consacré à la présentation de ce procédé de frittage, car il sera largement utilisé durant ces travaux de thèse.

Un des plus anciens articles concernant le frittage des ferrites est celui de Yamamoto, Horie, Tanamachi, Kurisu et Matsuuara en 2001 [YHT⁺01]. Les auteurs frittent un ferrite Mn-Zn à une température de 1000 °C pendant seulement 30 minutes. Cette faible durée de frittage (à comparer avec les quelques heures pour un frittage au four) est la spécificité de cette technologie. On peut d'ailleurs lui trouver parfois l'appellation de frittage flash.

En 2002, Sun, Li, Sun, et Qu continuent dans cette voie, et frittent des ferrite Ni-Zn à 900 °C pendant 5 minutes avec une pression uniaxiale de 20 MPa [SLSQ02]. On comprend alors que la température de frittage peut être diminuée grâce à l'apport de la pression.

Il faut attendre 2007 en France pour voir des auteurs publier quant au frittage de ferrite avec le protocole SPS. Millot, Le Gallet, Aymes, Bernard et Grinb frittent des nano-poudres de ferrite de cobalt sous une pression de 40 MPa. Les températures de frittage sont comprises entre 700 et 1000 °C, et ils mesurent sans surprise que la densité diminue avec la température de frittage.

En 2010, Karim Zehani soutient sa thèse qui porte en partie sur l'élaboration d'un protocole de frittage d'un ferrite Ni-Cu-Zn par SPS [Zeh11]. Il montre qu'il est aussi

possible de réaliser des cofrittages avec cette technologie. En effet, une des expériences consiste à placer du cuivre massif dans de la poudre de ferrite, et de fritter l'ensemble. Le ferrite a bien fritté tout autour du conducteur. Une analyse chimique faite au microscope électronique à balayage montre que le cuivre ne diffuse pas dans le ferrite. Il conclut alors qu'il est possible de fabriquer des inductances en utilisant un conducteur en cuivre plutôt qu'en pâte d'argent. Plusieurs inductances de l'ordre du microhenri sont ainsi réalisées. Les quelques tentatives de transformateurs se soldent malheureusement par des échecs, car le diélectrique utilisé pour séparer le primaire du secondaire rentre en fusion et s'écrase sous l'action de la pression, laissant alors apparaître des courts-circuits entre les deux enroulements.

Enfin, un œil aiguisé aura remarqué qu'une part importante des publications citées sont issues de laboratoires français. En effet, il se trouve que plusieurs équipes de recherche de l'hexagone travaillent en lien avec les matériaux magnétiques pour l'électronique de puissance, comme en témoigne ces quelques manuscrits de thèse provenant de différentes universités : [Age99], [Orl07], [Dug07], [Cos07], [Amm07], [Luc10] [Cou10], [All10], [Zeh11], [Dag13], [Bru14], [Ngu14]. Fort est de constater que ces travaux ont en commun un objectif commun : l'amélioration des composants magnétiques passifs pour une plus grande intégration de puissance. C'est avec cette approche que l'on peut nous aussi définir un objectif à cette thèse.

2.6 Objectif principal de la thèse

Au vu de tous ces travaux, on peut se fixer le but suivant : Réaliser un transformateur monolithique. Il est alors question d'utiliser un ferrite Ni-Cu-Zn afin d'avoir une faible température de frittage, et d'utiliser le protocole SPS/PECS car il permet l'emploi du cuivre massif comme conducteur. Contrairement à beaucoup de publications citées précédemment, nous souhaitons aussi mettre en place un convertisseur DC-DC 1 MHz 100 W, afin de valider les performances du transformateur en situation de fonctionnement.

Chapitre 3

Les grandeurs magnétiques

Sommaire

3.1	Introduction	21
3.2	Le champ et l'induction dans la matière	21
3.2.1	Le moment magnétique	22
3.2.2	L'aimantation	22
3.2.3	La polarisation	23
3.2.4	Liens entre les grandeurs	23
3.2.5	Passage du champ externe au champ interne	26
3.3	La classification des matériaux magnétiques	30
3.3.1	Le diamagnétisme	30
3.3.2	Le paramagnétisme	30
3.3.3	Le ferromagnétisme	34
3.3.4	L'antiferromagnétisme	39
3.3.5	Le ferrimagnétisme	40
3.4	Conclusion	44

3.1 Introduction

Depuis la découverte de la magnétite dans l'antiquité, de nombreuses expériences ont été réalisées, et plusieurs grandeurs physiques ont vu le jour afin d'expliquer au mieux les observations. Il paraît d'ailleurs bien difficile de tenir une liste exhaustive des toutes ces grandeurs liées au magnétisme, comme en témoignent les nombreux ouvrages qui peuvent nous paraître parfois incomplets. Nous nous proposons donc dans ce chapitre de passer en revue les différents aspects de la théorie moderne du magnétisme qui nous seront utiles pour la compréhension des expériences menées au cours de ces travaux de thèse.

3.2 Le champ et l'induction dans la matière

Étudier les matériaux magnétiques pour le génie électrique consiste essentiellement à pouvoir identifier et relier deux grandeurs physiques au sein de la matière. Ce sont les grandeurs \vec{B} et \vec{H} qui sont toutes les deux vectorielles. Dans ce manuscrit, \vec{B} est nommé l'induction magnétique et \vec{H} est nommé le champ magnétique qui parfois est qualifié

d'excitateur. Dans le vide, ces deux grandeurs sont reliées par la loi $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$. On note qu'il n'y a qu'un coefficient de proportionnalité qui entre en jeu, donc définir \vec{B} revient à définir \vec{H} par la même occasion. Dans la matière, il est nécessaire d'introduire des nouvelles grandeurs si l'on souhaite déterminer le champ et l'induction.

3.2.1 Le moment magnétique

L'année 1820 est assurément une année charnière pour le magnétisme. A travers l'expérience d'Ørsted, la loi de Biot et Savart et le théorème d'Ampère, il fut clairement établi que les courants électriques sont à l'origine du magnétisme. Or, quelque soit le matériau étudié, il est composé d'atomes donc d'électrons. Le mouvement de chaque électron peut être vu comme un courant élémentaire qui génère une induction magnétique. Cette induction est créée dans tout l'espace : à l'intérieur et à l'extérieur du matériau. Chaque courant élémentaire est modélisable par un moment magnétique par la loi :

$$\boxed{\vec{\mathcal{M}} = I \cdot \vec{S}} \quad (3.1)$$

On note I le courant dû au mouvement de l'électron, et \vec{S} la surface délimitée par la trajectoire de l'électron et orientée selon la règle du tire-bouchon de Maxwell. L'unité du moment magnétique est l'ampère mètre-carré. Il faut bien noter que cette approche est présentée ici par soucis de simplicité ; en effet, l'origine du magnétisme dans la matière est essentiellement due au spin des électrons (moment magnétique de spin) et non pas à la circulation des courants (moment cinétique orbital). On retiendra enfin que la façon dont se couplent tous les différents moments magnétiques dus aux électrons détermine les caractéristiques du matériau.

3.2.2 L'aimantation

Il peut être intéressant de ramener le moment magnétique d'un objet d'étude à son volume, autrement dit, de connaître la densité volumique des moment magnétiques. On appelle cette densité l'aimantation, et que l'on peut écrire sous la forme :

$$\boxed{\vec{M} = \frac{d\vec{\mathcal{M}}}{dV}} \quad (3.2)$$

où $d\vec{\mathcal{M}}$ est le moment magnétique contenu dans le volume élémentaire dV . Tout comme le moment magnétique, l'aimantation est une grandeur vectorielle. Cette formulation mathématique montre le caractère local de l'aimantation. Or, il est courant d'assimiler l'aimantation à l'aimantation moyenne dans un matériau. On peut alors lui proposer une autre définition mathématique équivalente d'un point de vue macroscopique :

$$\boxed{\langle \vec{M} \rangle = \frac{1}{V} \sum_{\text{volume}} \vec{\mathcal{M}}} \quad (3.3)$$

où V est le volume du matériau. L'unité de l'aimantation est l'ampère par mètre, qui est la même que le champ magnétique \vec{H} . Ces deux grandeurs vectorielles peuvent donc s'additionner. La différence fondamentale entre \vec{M} et \vec{H} est que l'aimantation existe uniquement dans un matériau et est nulle à l'extérieur de celui-ci, tandis que le champ magnétique s'établit aussi bien à l'intérieur qu'à l'extérieur du matériau.

On peut faire deux remarques. La première est qu'un matériau soumis à un champ magnétique extérieur voit son aimantation modifiée. La seconde est que même en l'absence de champ magnétique exciteur, l'aimantation d'un matériau produit un champ magnétique dans tout l'espace.

3.2.3 La polarisation

Pour comparer l'aimantation à l'induction magnétique et non plus au champ magnétique, il est nécessaire de modifier l'unité par le biais d'une nouvelle grandeur : la polarisation magnétique \vec{J} . Elle est définie par :

$$\boxed{\vec{J} = \mu_0 \vec{M}} \quad (3.4)$$

La polarisation est donc toujours directement proportionnelle à l'aimantation, ces deux grandeurs ont donc le même sens physique ; mais elle a l'avantage d'être exprimée en tesla. Par ailleurs, pour un matériau, ces deux grandeurs tendent vers une valeur finie même si le champ d'excitation magnétique tend vers l'infini (phénomène de saturation).

3.2.4 Liens entre les grandeurs

L'induction magnétique est, comme son nom l'indique, induite par les autres grandeurs à savoir le champ et l'aimantation. On peut écrire la relation suivante :

$$\boxed{\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) = \mu_0 \vec{H} + \vec{J}} \quad (3.5)$$

Cette équation est la seule relation entre l'induction et le champ qui soit définie sans aucune ambiguïté. Mais dans bien des cas, il est possible de la modifier pour la rendre plus simple à l'usage. En effet, comme le champ et l'aimantation s'influencent mutuellement, on peut les relier en posant :

$$\boxed{\vec{M} = \chi \vec{H}} \quad (3.6)$$

où χ est appelée la susceptibilité magnétique et est sans unité. Le mot susceptibilité est ici à prendre au sens propre ; en effet, plus la valeur est grande, plus le matériau est susceptible de s'aimanter sous l'action d'un champ. On peut définir par la suite la perméabilité relative avec la relation $1 + \chi = \mu_r$ pour retrouver la loi très connue :

$$\boxed{\vec{B} = \mu_0 \mu_r \vec{H} = \mu \vec{H}} \quad (3.7)$$

Cette relation entre induction et champ est à utiliser avec beaucoup de précautions. Elle est utile quand la valeur de μ_r (tout comme celle de χ) peut être considérée comme constante et un matériau ayant une grande perméabilité est alors perçu comme un milieu qui amplifie l'induction. Le corolaire associé est une canalisation du champ magnétique dans un milieu ayant une grande perméabilité. Il est donc fréquent de donner cette caractéristique pour un matériau magnétique doux dans une fiche technique, mais il est sous-entendu que cette valeur n'est valable que dans la zone linéaire.

Afin d'illustrer cette complexité autour de cette perméabilité relative, on se propose de tracer la courbe $B = f(H)$ issue d'une mesure sur un matériau magnétique (ferrite NiCuZn). La courbe $B = f(H)$ est implicitement la courbe $\|\vec{B}\| = f(\|\vec{H}\|)$ selon un axe

de mesure. Sur la figure 3.1, la fonction $B = f(H)$ n'est pas identique pour un champ croissant et pour un champ décroissant, on parle alors classiquement de cycle d'hystérésis.

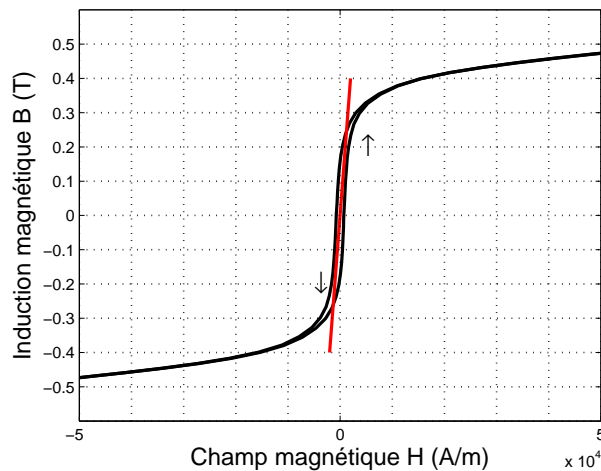


FIGURE 3.1 – Cycle d'hystérésis en noir et approximation de μ en rouge.

On remarque deux zones bien distinctes sur le cycle d'hystérésis : une zone quasi linéaire et une zone saturée. C'est justement dans la zone linéaire où il est possible d'introduire μ_r , en utilisant une linéarisation. A l'aide de la droite rouge, on peut estimer que $B \approx 0,0002 \times H$, d'où $\mu \approx 0,0002$, d'où $\mu_r \approx 160$. Dans la zone saturée, il est toujours possible d'écrire la relation $\vec{B} = \mu \vec{H}$, mais en prenant en compte le fait que la perméabilité relative μ_r n'est plus une constante.

La plupart du temps, il est préférable d'utiliser le modèle explicite de la formule : $\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) = \mu_0\vec{H} + \vec{J}$. Cette formulation valable aussi bien à l'intérieur qu'à l'extérieur d'un matériau mérite quelques approfondissements supplémentaires. En effet, dans le domaine du génie électrique, particulièrement pour les matériaux magnétiques doux, il est très intéressant d'obtenir les cycles d'hystérésis des matériaux ; il faut donc pouvoir faire l'acquisition des courbes $B = f(H)$. Pour connaître les caractéristiques intrinsèques d'un matériau, il est nécessaire d'avoir les mesures du champ et de l'induction à l'intérieur du matériau. Cependant, seules des mesures à l'extérieur du matériau sont possibles. Il faut donc comprendre les mécanismes d'aimantation pour pouvoir passer des grandeurs internes aux grandeurs externes.

Dans cette thèse, il n'est pas nécessaire de comprendre les phénomènes atomistiques ou quantiques qui rentrent en jeu pour expliquer le magnétisme et interpréter correctement les mesures. De nombreux livres décrivent correctement et avec la beauté des mathématiques l'établissement du champ et de l'induction dans la matière ; on se propose ici d'expliquer de manière un peu plus qualitative le processus d'aimantation. Une approche narrative d'un matériau plongé dans un champ peut suffire.

On imagine donc un champ magnétique créé par des courants électriques, à l'instar d'un électroaimant. On place dans ce champ magnétique un échantillon de matière. Le champ magnétique est alors appelé le champ appliqué et est noté \vec{H}_a . Sous l'effet de ce champ, l'ensemble des moments magnétiques \vec{M} du matériau ont tendance à s'aligner suivant la direction de \vec{H}_a , tout comme une boussole s'aligne avec le champ magnétique terrestre. Cette réaction des moments provoque l'apparition d'une aimantation \vec{M} dans l'ensemble du matériau, et ce dernier est alors comparable à un aimant permanent dans le sens où on note la présence de pôles magnétiques qui se situent aux extrémités (un pôle

Nord et un pôle Sud). A l'instar de pôles électriques qui produisent un champ électrique, les pôles magnétiques produisent un champ magnétique dipolaire dans tout l'espace et qui s'additionne au champ exciteur.

$$\boxed{\vec{H} = \vec{H}_a + \vec{H}_{dp}} \quad (3.8)$$

Pour les matériaux magnétiques utilisés en génie électrique ce champ dipolaire \vec{H}_{dp} diminue la norme du champ magnétique \vec{H} car ils sont en opposition dans le matériau. Le champ dipolaire créé par l'aimantation a donc pris le nom de champ démagnétisant et est simplement noté \vec{H}_d . Comme il est une conséquence de l'aimantation sa norme est proportionnelle à celle de l'aimantation ; mais elle dépend aussi d'un coefficient N dit démagnétisant qui est fonction de la forme de l'échantillon¹. Il existe une littérature très spécialisée et très mathématique pour calculer ces coefficients démagnétisants, comme par exemple [FM31] [Os45]. En conséquence, dans le matériau on établit la relation suivante :

$$\boxed{\vec{H}_{dp}^{mat} = \vec{H}_d = -N\vec{M} = -\frac{N\vec{J}}{\mu_0}} \quad (3.9)$$

Il faut bien noter que le signe - reflète que le champ démagnétisant est de direction opposée à l'aimantation et donc à la polarisation. On note aussi que c'est la présence de l'aimantation qui induit la présence du champ démagnétisant, donc la valeur du coefficient N est nécessairement inférieure à 1². Par ailleurs, la relation précédente 3.9 est valable uniquement à l'intérieur du matériau, là où l'aimantation \vec{M} est définie. A l'extérieur du matériau, le champ démagnétisant existe bien, et il est possible de calculer sa norme en utilisant l'équivalence entre aimantation et champ dipolaire. Connaissant l'aimantation, il est possible de connaître le dipôle magnétique équivalent, et il est alors possible de connaître le champ dipolaire dit démagnétisant dans tout l'espace. Cependant, il est rare de vouloir accéder à sa valeur à l'extérieur, puisqu'en général on s'intéresse aux grandeurs internes d'un matériau.

En conséquence, il est possible de détailler à un niveau supplémentaire \vec{H} et \vec{B} dans tout l'espace :

$$\begin{cases} \vec{H} = \vec{H}_a + \vec{H}_{dp} \\ \vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) = \mu_0\vec{H} + \vec{J} \end{cases} \quad (3.10)$$

A l'extérieur du matériau, l'aimantation est nulle donc :

$$\boxed{\vec{B}_{ext} = \mu_0(\vec{H}_a + \vec{H}_d)} \quad (3.11)$$

et à l'intérieur du matériau, l'aimantation étant non nulle et en écrivant $\vec{H}_{dp} = \vec{H}_d$, on a :

$$\boxed{\begin{aligned} \vec{B}_{int} &= \mu_0(\vec{H}_a + \vec{H}_d + \vec{M}) \\ \vec{B}_{int} &= \mu_0(\vec{H}_a - N\vec{M} + \vec{M}) \\ \vec{B}_{int} &= \mu_0(\vec{H}_a + (1 - N)\vec{M}) \end{aligned}} \quad (3.12)$$

1. Le coefficient démagnétisant dépend aussi de la susceptibilité du matériau, mais dans une bien moindre mesure [CPS01] [CPS06].

2. Dans le cas d'une aimantation parfaitement uniforme, il est possible d'établir la relation $N_x + N_y + N_z = 1$. Une aimantation uniforme s'obtient pour des ellipsoïdes de révolution ou dans le cas de géométrie semi-infinie (plan infini, cylindre infini, etc ...).

Cette relation vectorielle permet d'indiquer que les champs \vec{H} , \vec{B} et \vec{M} ne sont pas systématiquement colinéaires. Il est donc parfois délicat de passer de cette somme vectorielle à la somme des normes.

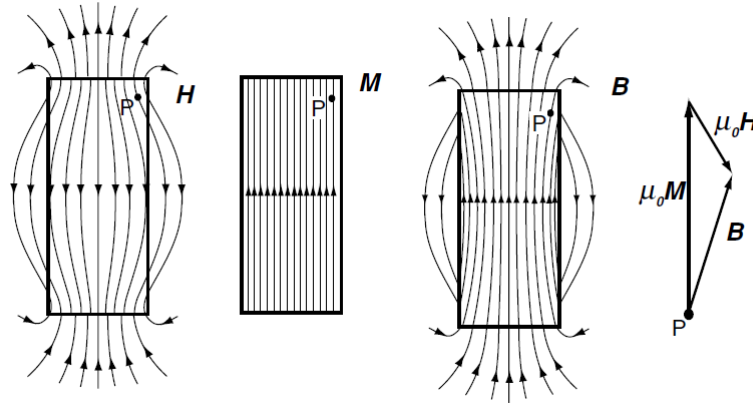


FIGURE 3.2 – Illustration des champs \vec{B} , \vec{H} et \vec{M} pour un aimant permanent [Coe10].

3.2.5 Passage du champ externe au champ interne

Pour caractériser un matériau magnétique, les mesures sont effectuées à l'extérieur de celui-ci. Ceci n'est pas une contrainte lorsque l'on s'intéresse aux caractéristiques externes d'un matériau. On peut ici citer l'exemple d'un matériau dur où on souhaite connaître l'induction qu'il peut développer en fonction d'un champ d'excitation (cycle d'hystérésis externe); notamment dans le cas d'une machine électrique à aimants permanents où le couple est proportionnel à l'induction dans l'entrefer. En revanche, pour les matériaux doux, il est bien souvent plus souhaitable de pouvoir accéder au champ et à l'induction dans la matière pour obtenir les caractéristiques intrinsèques (cycle d'hystérésis interne). Il faut donc pouvoir trouver une correspondance entre les mesures externes et les grandeurs internes.

Comme beaucoup d'informations peuvent être extraites des cycles d'hystérésis, on se cantonnera aux seuls passages du couple de grandeurs $(\vec{H}, \vec{B})_{ext}$ vers $(\vec{H}, \vec{B})_{int}$.

3.2.5.1 Exemple de mesure magnétométrique : le magnétomètre

Comme son nom l'indique, un magnétomètre permet de mesurer l'aimantation d'un échantillon. Il en existe différents types, basés sur des principes physiques différents. Au sein du laboratoire SATIE, le magnétomètre utilisé est dit à échantillon vibrant appelé aussi VSM pour Vibrating Sample Magnetometer³. Il permet de mesurer le moment magnétique $\vec{\mathcal{M}}$ en fonction d'un champ magnétique appliqué \vec{H}_a uniforme créé par un électroaimant. Loin de l'échantillon, on peut faire l'approximation que $\vec{H}_a = \vec{H}$. L'axe de mesure est le même que celui de l'excitation, et selon cet axe on obtient des courbes $\mathcal{M} = f(H_a)$.

3. Le principe du magnétomètre à échantillon vibrant est décrit par Foner en 1959 [Fon59]

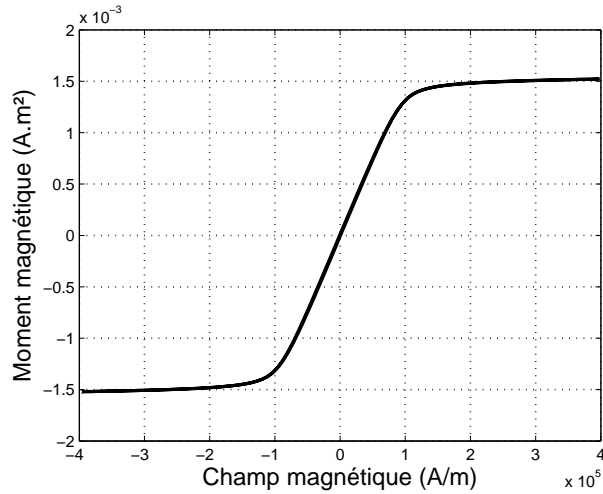


FIGURE 3.3 – Relevé du cycle d’hystérésis du moment magnétique global d’un échantillon de ferrite NiCuZn.

Pour remonter à la caractérisation $B = f(H)$, il faut suivre une série d’opération :

$$\begin{aligned}
 M &= \frac{\mathcal{M}}{V} = \frac{\mathcal{M} \cdot \mu_v}{m} \\
 H &= H_a + H_d = H_a - NM \\
 B &= \mu_0(H + M) = \mu_0(H_a + (1 - N)M)
 \end{aligned}
 \tag{3.13}$$

avec $\left\{ \begin{array}{l} V \text{ le volume de l'échantillon,} \\ m \text{ la masse de l'échantillon,} \\ \mu_v \text{ la masse volumique de l'échantillon,} \\ N \text{ le coefficient démagnétisant.} \end{array} \right.$

Afin d’illustrer au mieux l’effet du champ démagnétisant, pour un ferrite NiCuZn fabriqué au SATIE, on trace les courbes de mesures de l’induction B en fonction du champ appliqué H_a et aussi en fonction du champ magnétique H (qui est bien ici le champ dans le matériau).

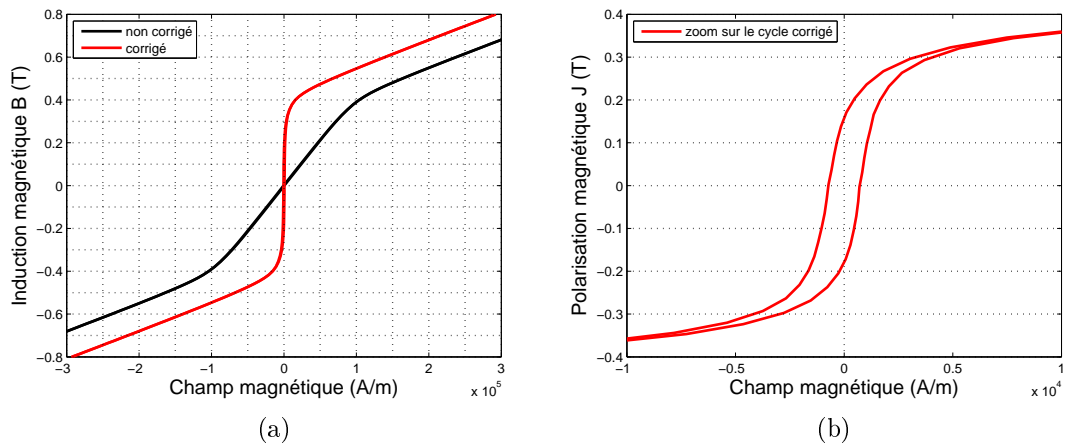


FIGURE 3.4 – Cycle d’hystérésis fonction du champ appliqué (noir) ou interne (rouge).

De même, il est possible de tracer l'aimantation (et la polarisation) en fonction du champ appliqué H_a et aussi en fonction du champ magnétique H .

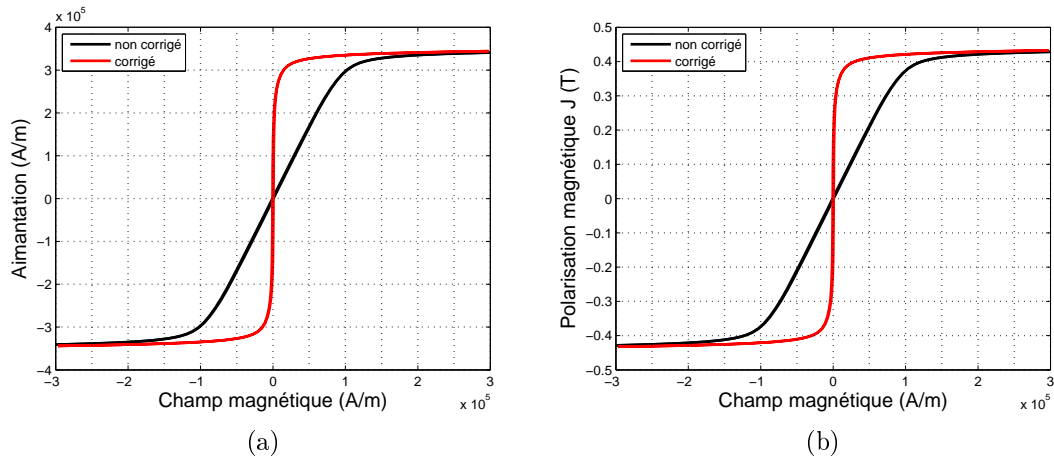


FIGURE 3.5 – Cycle d'hystérésis fonction du champ appliqué (noir) ou interne (rouge).

On note bien que sur les cycles corrigés ainsi que pour une même excursion du champ magnétique appliqué, l'excursion en champ magnétique est réduite par rapport à celle des cycles non corrigé. On comprend donc une fois de plus la dénomination donné au champ démagnétisant : le champ dans le matériau est plus faible que le champ magnétique appliqué loin du matériau.

3.2.5.2 Exemple de mesure fluxmétrique : H-coil et B-coil

Comme son nom l'indique, il s'agit de mesurer le flux. La méthode consiste à utiliser les conditions de passages électromagnétiques d'un milieu à un autre. En effet, depuis les équations de Maxwell, on peut établir que la composante tangentielle du champ se conserve et que la composante normale de l'induction se conserve lors d'un changement de milieu⁴. La technique consiste donc à placer deux bobines de mesures. La première, la B-coil, qui mesure effectivement le flux et qui permet de remonter à l'induction car la section est constante. La deuxième, la H-coil, qui permet de mesurer le flux à la surface et permet de connaître le champ⁵.

4. Ce qui se retient par l'expression " $H_t B_n$ "

5. On parle alors de mesure campométrique.

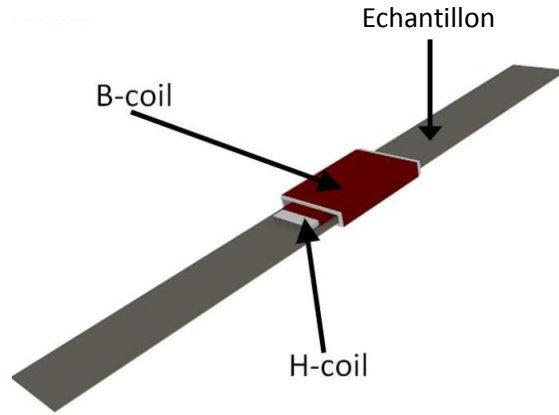


FIGURE 3.6 – Mesure du cycle d’hystérésis sur une tôle [Ham15].

Comme illustré sur la figure 3.6, cette mesure s’applique bien sur les échantillons sous forme de tôles, car les champs \vec{H} et \vec{B} sont canalisés dans le matériau et donc quasi uniformes. Il est alors possible de procéder aux approximations $\|\vec{H}\| = H_t$ et $\|\vec{B}\| = B_n$ et ainsi remonter à un cycle d’hystérésis $B_n = f(H_t)$ qui correspond au cycle d’hystérésis intrinsèque $\|\vec{B}\| = f(\|\vec{H}\|)$.

Excepté le cas des transformateurs, il est tout de même rare d’avoir des dispositifs contenant des matériaux ayant des formes allongées, et sans cette caractéristique morphologique cette mesure n’est pas adaptée pour remonter aux grandeurs internes à partir de mesures de grandeurs externes.

3.2.5.3 Exemple de mesure fluxmétrique : le tore bobiné

L’instrumentation associée est simple, mais la forme de l’échantillon doit respecter la conditions suivante : ce doit être un tore. Il faut alors le bobiner avec un enroulement primaire et un enroulement secondaire. Contrairement à l’exemple précédent, l’accès au champ magnétique se fait par une mesure du courant primaire et en appliquant le théorème d’Ampère ; et la mesure de la tension secondaire permet d’accéder à l’induction magnétique via la loi de Lenz-Faraday.

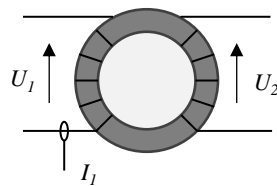


FIGURE 3.7 – Mesure fluxmétrique.

Le principal intérêt de cette mesure est qu’il est possible de s’affranchir du problème du champ démagnétisant. En effet, pour un bobinage idéal où les spires sont jointives et équiréparties, les pôles magnétiques n’apparaissent pas⁶. Cette méthode est donc très simple à mettre en place si un tore est disponible.

6. Un tore peut être vu comme un barreau replié sur lui même. Comme les pôles sont sensés apparaître aux extrémités du barreau, ils sont rejetés à l’infini.

3.3 La classification des matériaux magnétiques

Les matériaux étudiés dans la suite de cette de cette thèse sont des ferrites. Ils possèdent un ordre magnétique qui leur est propre : le ferrimagnétisme. Afin d'expliquer cette théorie, il convient de faire un bref rappel sur les autres mécanismes d'aimantation qui sont plus classiques.

3.3.1 Le diamagnétisme

Le diamagnétisme est un comportement des matériaux qui les conduit, lorsqu'ils sont soumis à un champ magnétique, à créer une très faible aimantation opposée au champ extérieur, et donc à générer une induction magnétique opposée au champ extérieur. Lorsque le champ n'est plus appliqué, l'aimantation disparaît. En effet, sous l'action d'une induction magnétique extérieure, chaque électron subit une force de Lorentz $\vec{F} = q\vec{v} \wedge \vec{B}$. Les électrons des atomes voient alors leur trajectoire quelque peu modifiée autour des noyaux, et ce déséquilibre provoque une induction magnétique opposée à l'excitation⁷.

En conséquence, tous les matériaux sont diamagnétiques ; mais ce phénomène étant faible, il peut être masqué par d'autres. En corolaire, il vient que la susceptibilité magnétique est négative puisque l'induction est opposée au champ excitateur $\vec{B} \propto -\vec{H}$.

Certains matériaux sont connus justement pour leur propriété diamagnétique, on cite ici le cas du Bismuth ($Z = 83$) qui a un caractère diamagnétique les plus prononcé où $\chi \approx 16,6 \times 10^{-5}$. Enfin, on évoque le cas des supraconducteurs qui peuvent être considérés comme des matériaux diamagnétiques parfaits de susceptibilité magnétique $\chi = -1$: tout champ magnétique entraîne en leur sein des super-courants sans apport d'énergie du fait de l'absence de résistance électrique. Ces super-courants créent un champ magnétique qui compense exactement le champ magnétique extérieur à l'intérieur du supraconducteur.

3.3.2 Le paramagnétisme

Le paramagnétisme désigne en magnétisme le comportement d'un milieu matériel qui ne possède pas d'aimantation spontanée mais qui, sous l'effet d'un champ magnétique extérieur, acquiert une aimantation dirigée dans le même sens que ce champ d'excitation. Un matériau paramagnétique possède donc une susceptibilité magnétique de valeur positive (contrairement aux matériaux diamagnétiques), et en général assez faible. Cette aimantation disparaît lorsque le champ d'excitation est coupé, il n'y a donc pas de phénomène d'hystérésis. On peut néanmoins observer un phénomène de saturation de la susceptibilité qui correspond au cas où tous les moments magnétiques du matériau sont alignés dans le même sens que le champ magnétique excitateur.

Pour modéliser le phénomène du paramagnétisme d'un point de vue macroscopique (c'est-à-dire sans faire appel à la mécanique quantique), deux noms font leur apparition : Pierre Curie et Paul Langevin⁸.

La loi de Curie énonce que la susceptibilité magnétique d'un matériau paramagnétique

7. Les électrons sont considérés ici seulement comme des particules. La mécanique quantique apporte une vision plus fine sur le diamagnétisme, notamment sur la quantification du mouvement orbital des électrons.

8. Loi de Curie incluse dans la thèse de Pierre Curie de 1895 et la théorie du paramagnétisme de Paul Langevin publiée en 1905

est inversement proportionnelle à la température. Elle s'écrit :

$$\boxed{\chi = \frac{C}{T}} \quad (3.14)$$

où T est la température en kelvin et C est une constante appelée constante de Curie exprimée en kelvin également. Cette constante est propre à chaque matériau.

Par la suite, Paul Langevin introduit l'idée selon laquelle le moment magnétique d'un corps peut être la somme des moments magnétiques de chaque atome. Il utilise alors la physique statistique de Boltzmann pour interpréter le fait que la susceptibilité des matériaux paramagnétiques varie avec la température. Une augmentation de la température apporte de l'agitation thermique qui entraîne la désorientation des moments magnétiques des atomes, malgré l'influence du champ magnétique extérieur. Les propriétés magnétiques de ces matériaux sont alors interprétées comme le compromis entre la tendance des petits aimants à s'aligner et l'agitation thermique qui tend à leur donner une direction aléatoire.

Toujours en utilisant la statistique de Boltzmann, Paul Langevin établit une équation reliant l'aimantation d'un matériau en fonction du champ magnétique et de la température, équation qui porte aujourd'hui son nom. Elle s'écrit de la manière suivante :

$$\boxed{M(H, T) = N \mathcal{M} \mathcal{L} \left(\frac{\mu_0 \mathcal{M} H}{k_B T} \right)} \quad (3.15)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} M \text{ l'aimantation selon l'axe de mesure en } A.m^{-1} \\ N \text{ le nombre de particule paramagnétique par unité de volume en } m^{-3} \\ \mathcal{M} \text{ le moment magnétique d'une particule paramagnétique en } A.m^2 \\ H \text{ le champ magnétique selon l'axe de mesure en } A.m^{-1} \\ k_B \text{ la constante de Boltzmann} \\ T \text{ la température en } k \\ \mathcal{L} \text{ la fonction de Langevin} \end{array} \right.$$

La fonction de Langevin est définie ainsi :

$$\boxed{\mathcal{L}(x) = \coth(x) - \frac{1}{x}} \quad (3.16)$$

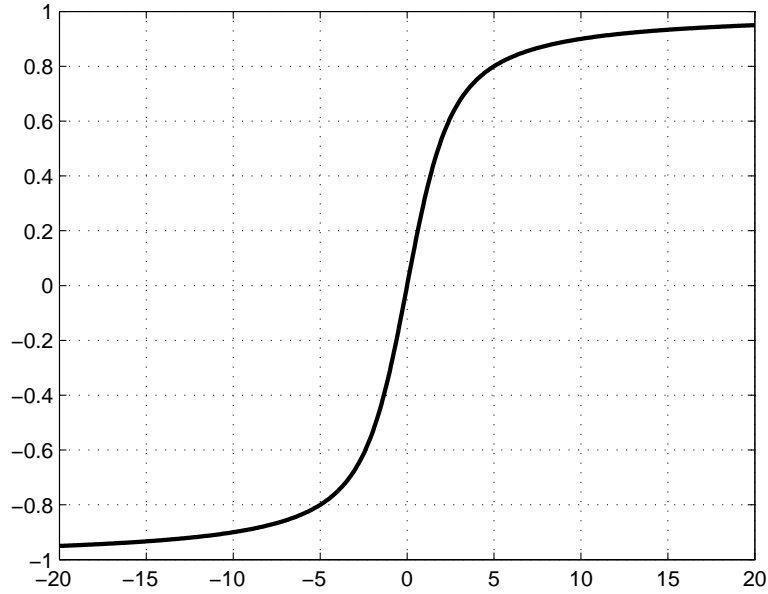


FIGURE 3.8 – Représentation graphique de la fonction de Langevin.

et pour $|x| \ll 1$, donc pour $|\frac{\mu_0 N \mathcal{M} H}{k_B T}| \ll 1$, elle peut se développer en série de Taylor :

$$\mathcal{L}(x) = \frac{1}{3}x - \frac{1}{45}x^3 + \frac{2}{945}x^5 - \frac{1}{4725}x^7 + \frac{2}{93555}x^9 + \dots \quad (3.17)$$

Le premier corollaire de cette écriture est qu'il est nécessaire d'avoir de fort champ magnétique ou bien de faible température pour atteindre une aimantation à saturation. Le second corollaire est qu'il est possible de remonter à la valeur de la susceptibilité pour des faibles valeurs de champ magnétique. En effet :

$$\mathcal{L}(x) \xrightarrow{x \rightarrow 0} \frac{x}{3} \implies M(H) \xrightarrow{H \rightarrow 0} \frac{\mu_0 N \mathcal{M}^2 H}{3k_B T} \quad (3.18)$$

Il s'en déduit la susceptibilité paramagnétique :

$$\chi = \frac{\mu_0 N \mathcal{M}^2}{3k_B T} \quad (3.19)$$

Et il est possible ici d'en déduire la constante de Curie :

$$C = \frac{\mu_0 N \mathcal{M}^2}{3k_B} \quad (3.20)$$

Ce modèle porte le nom de paramagnétisme de Langevin, et est conforme aux expériences qui vérifient l'hypothèse de base : les particules magnétiques sont indépendantes les unes des autres et n'interagissent pas entre elles⁹. Dans la plupart des cas, le réseau cristallin ne permet pas de vérifier cette hypothèse, et les mesures expérimentales ne correspondent pas au modèle. Une fois encore, c'est la mécanique quantique qui permet de consolider la théorie du paramagnétisme. Dans le modèle quantique, on ne considère plus

9. Cette hypothèse forte amène à ne pouvoir utiliser le modèle de Langevin que dans le cas du superparamagnétisme.

un continuum d'orientation pour le moment magnétique $\vec{\mathcal{M}}$, mais on considère qu'il prend des valeurs discrètes. Sans entrer dans les détails, on note juste qu'il faut faire intervenir le nombre quantique de moment angulaire total que l'on note J , avec $J = S + L$ où S est le nombre quantique de spin ¹⁰ et L le nombre quantique azimutal ¹¹. Ces valeurs dépendent de la nature des matériaux étudiés. L'aimantation d'un matériau magnétique peut être décrite non plus par une fonction de Langevin, mais par une fonction de son doctorant : une fonction de Brillouin [Bri27]. On exprime alors l'aimantation par :

$$M(H, T) = NgJ\mu_B \mathcal{B}_J \left(\frac{\mu_0 g J \mu_B H}{k_B T} \right) \quad (3.21)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} M \text{ l'aimantation selon l'axe de mesure en } A.m^{-1} \\ N \text{ le nombre de particule paramagnétique par unité de volume en } m^{-3} \\ g \text{ le facteur de Landé} \\ J \text{ le nombre quantique de moment angulaire total} \\ \mu_B \text{ le magnéton de Bohr} \\ H \text{ le champ magnétique selon l'axe de mesure en } A.m^{-1} \\ k_B \text{ la constante de Boltzmann} \\ T \text{ la température en } k \\ \mathcal{B}_J \text{ la fonction de Langevin d'ordre } J \end{array} \right.$$

On note que les équations de Langevin 3.15 et de Brillouin 3.21 ont une écriture analogue, mais la présence de la quantification se fait sentir en remplaçant le moment d'une particule paramagnétique \mathcal{M} par son équivalent en mécanique quantique : $gJ\mu_B$.

La fonction de Brillouin d'ordre J est définie ainsi :

$$\mathcal{B}_J(x) = \frac{2J+1}{2J} \coth \left(\frac{2J+1}{2J} x \right) - \frac{1}{2J} \coth \left(\frac{1}{2J} x \right) \quad (3.22)$$

Il est à noter que si le moment angulaire des spins peut prendre une infinité de valeur (ce qui est le cas du superparamagnétisme), alors $J = \infty$ et les fonctions de Langevin et de Brillouin sont égales $\mathcal{L}(x) = \mathcal{B}_\infty(x)$.

10. Le spin d'un électron étant égale à $\pm \frac{1}{2}$, le nombre quantique de spin est un multiple de $\frac{1}{2}$.

11. L détermine la géométrie de l'orbitale atomique. Dans un cristal, il y a blocage du moment orbital dû aux interactions électrique du réseau, donc $L = 0$.

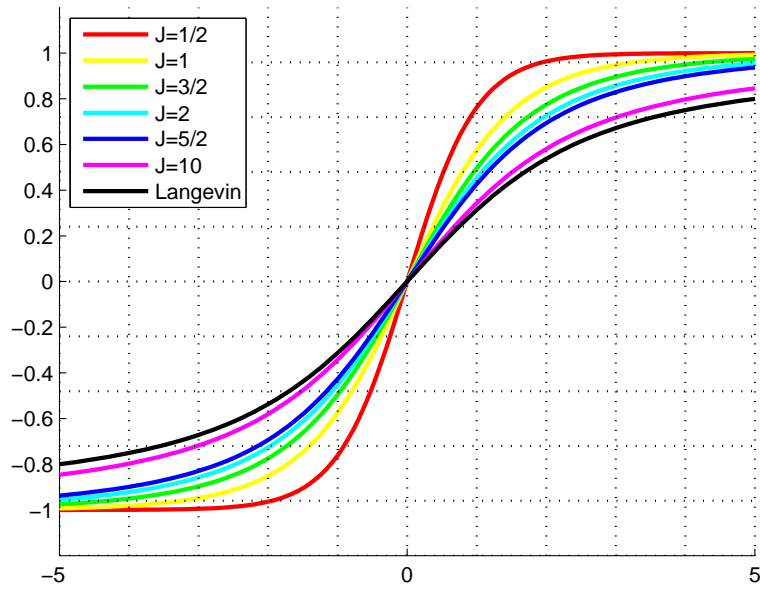


FIGURE 3.9 – Représentation graphique de quelques fonctions de Brillouin.

3.3.3 Le ferromagnétisme

Contrairement au paramagnétisme, dans un matériau ferromagnétique les particules ayant un moment magnétique ont une influence entre elles. Les moments magnétiques de chaque atome sont couplés entre eux et ce couplage se traduit par une énergie d'échange qui s'écrit, au sens d'Heisenberg [Hei28] :

$$E_{ex} = -2J_{ex}\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j = -2J_{ex}S_iS_j \cos(\phi) \quad (3.23)$$

où S_i et S_j sont les moments angulaires de spin des atomes i et j , ϕ est l'angle entre les moments magnétiques de spin, et J_{ex} est appelée l'intégrale d'échange et dépend de chaque matériau. J_{ex} se trouve être la différence d'énergie entre deux atomes dont les spins sont colinéaires. Lorsque cette intégrale d'échange est positive, la configuration minimisant l'énergie se présente pour $\phi = 0$, donc pour des spins ayant la même direction. Par un phénomène de proche en proche, les spins d'un matériau ferromagnétique ont tendance à tous s'aligner dans la même direction, et ce, même sans excitation d'un champ magnétique exciteur.

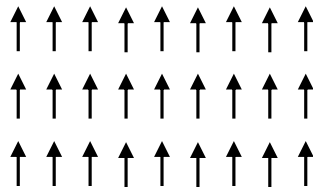


FIGURE 3.10 – Ordre ferromagnétique.

Néanmoins, la concurrence avec la température existe toujours. Il existe une température T_C dite de Curie au-dessus de laquelle ces matériaux perdent leur comportement

ferromagnétique, et due à l'agitation thermique, ils adoptent un comportement paramagnétiques. En reprenant les idées de Pierre Curie et de Paul Langevin, Pierre Weiss exprime alors la susceptibilité des matériaux ferromagnétiques lorsque la température est au-dessus de T_C :

$$\boxed{\forall T > T_C, \chi = \frac{C}{T - T_C}} \quad (3.24)$$

Cette équation porte aujourd'hui le nom de loi de Curie-Weiss, et plusieurs subtilités ont été apportées depuis pour améliorer sa précision¹². C est ici aussi la constante de Curie, mais son expression diffère de celle vue à l'équation 3.20 pour les matériaux paramagnétiques.

Lorsque la température est inférieure à celle de Curie, le comportement ferromagnétique s'exprime. On peut alors observer des différences dans les cycles d'hystérésis selon les matériaux. Un matériau ayant une grande surface de cycle est qualifié de matériau magnétique dur. A l'inverse, un matériau ayant une faible surface de cycle est qualifié de matériau magnétique doux¹³.

12. Pour $T \approx T_C$, cette loi ne correspond pas aux mesures expérimentales. En effet, des calculs détaillés mènent à une expression de la susceptibilité de la forme : $\chi \approx \frac{1}{(T-T_c)^{1.33}}$ en bon accord avec les valeurs expérimentales pour T proche T_c . Pour des températures $T \gg T_c$, on trouve un bon accord avec : $\chi = \frac{C}{(T-\theta)}$ c'est-à-dire une expression très proche de la loi de Curie-Weiss avec un paramètre θ plus grand que la température de transition réelle T_c . Pour distinguer ce paramètre de la température de Curie, on l'appelle parfois température de Weiss.

13. Respectivement hard magnet et soft magnet en anglais.

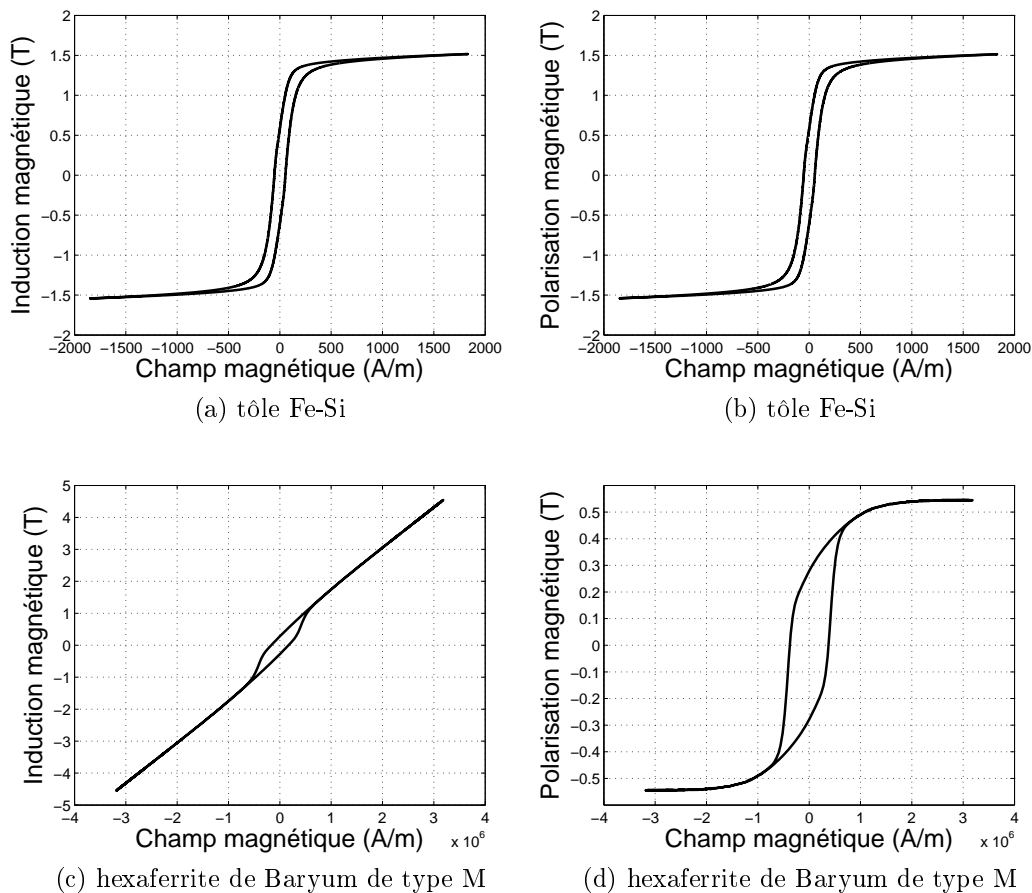


FIGURE 3.11 – Différence entre matériau doux et dur.

Sur la figure 3.11, des acquisitions de cycle d’hystérésis ont été tracées pour différents types de matériaux ferromagnétiques. Dans le cas du matériau doux qui est une tôle de Fe-Si, on note que l’excursion en champ est faible pour tracer le cycle, ce qui implique que l’induction et la polarisation prennent des valeurs quasi identiques. Pour le cas du matériau dur qui est un ferrite de baryum, comme l’excursion en champ est ici importante pour atteindre la saturation, on observe une forme de cycle très différente selon que l’on trace l’induction ou la polarisation. Enfin, la surface du cycle de ces matériaux n’est pas la même. La différence se fait principalement sur la valeur du champ coercitif¹⁴ : pour la tôle de Fe-Si, il est de 55 A/m, et pour l’hexaferrite de baryum de type M, il est de 380 000 A/m. En revanche, entre les deux matériaux, la valeur de la polarisation rémanente¹⁵ est du même ordre de grandeur : 0,55 T pour la tôle et 0,28 T pour l’hexaferrite.

Ces deux types de comportement amènent à des applications différentes. Pour le cas des matériaux magnétiques durs, on note que l’aimantation reste quasi constante quelque soit l’intensité du champ magnétique¹⁶. C’est exactement l’effet recherché pour les aimants permanent où il est désirable de conserver une induction rémanente. Pour le cas des matériaux magnétiques doux, l’aimantation à saturation est souvent plus élevée et elle

14. Le champ coercitif est la valeur du champ magnétique pour laquelle la polarisation magnétique est nulle.

15. La polarisation rémanente est la valeur de la polarisation magnétique pour laquelle le champ magnétique est nul.

16. Ce qui se vérifie d’autant plus pour les matériaux magnétiques durs tels que les Nd-Fe-B.

peut facilement se renverser en suivant l'orientation du champ magnétique. Ces matériaux sont usuellement utilisés pour la conversion d'énergie.

Que le matériau ferromagnétique soit dur ou doux, il existe bien un couplage entre les spins, si bien qu'il existe au sein du matériau au moins une région qui se trouve magnétiquement homogène où tous les spins sont alignés parallèlement entre eux. On peut alors représenter l'aimantation de cette région par un vecteur unique.

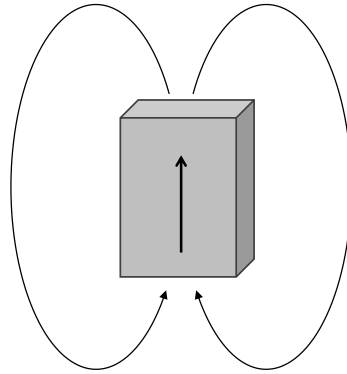


FIGURE 3.12 – Matériau ferromagnétique uniformément aimanté et lignes d'induction.

Cependant, dans cette configuration, les nombreuses lignes d'induction magnétique laissent penser qu'une énergie magnétostatique¹⁷ est créée. Afin de minimiser l'énergie totale du système, il existe une configuration qui permet de réduire l'énergie magnétostatique : il suffit de diviser la région en deux domaines antiparallèles pour que les lignes d'induction issues d'un des domaines se referment sur l'autre.

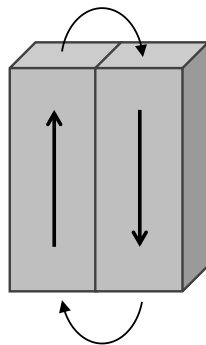


FIGURE 3.13 – Réduction de l'énergie magnétostatique avec l'apparition de domaines.

Par rapport à la figure 3.13, il est encore possible de réduire l'énergie magnétostatique en introduisant des domaines dits de fermeture, dont l'aimantation est orientée différemment.

17. Energie de type $E_m = \int_{\text{espace}} \frac{B^2}{2\mu_0} dV$

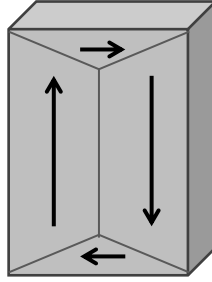


FIGURE 3.14 – Illustration des domaines de fermeture.

Sur la figure 3.14, bien que les flèches n'aient pas la même taille, la norme de l'aimantation est identique. Cette configuration montre qu'il y a apparition de domaines magnétiques dits de fermeture. Tous ces domaines sont appelés des domaines de Weiss, car leur existence a été suggéré en 1906 par Pierre Weiss. Chaque domaine est séparé par une paroi qui délimite la rupture dans l'orientation de l'aimantation. Elles se nomment parois de Bloch en référence à Félix Bloch. Cependant, la création de ces parois n'est pas gratuite : dans un matériau ferromagnétique, deux spins voisins de chaque côté de la paroi sont antiparallèles et ont donc une énergie d'échange positive ($E_{ex} > 0$)¹⁸. La largeur et la surface des parois ainsi que la taille des domaines sont donc le résultat d'une compétition énergétique entre l'énergie magnétostatique, l'énergie de paroi, et l'énergie d'anisotropie magnétocristalline (qui est présentée dans un prochain chapitre). Un article de Pierre Brissonneau reprend en détail ces considérations énergétiques [Bri74]. Il en résulte que les domaines peuvent avoir des formes très différentes selon la nature des matériaux.

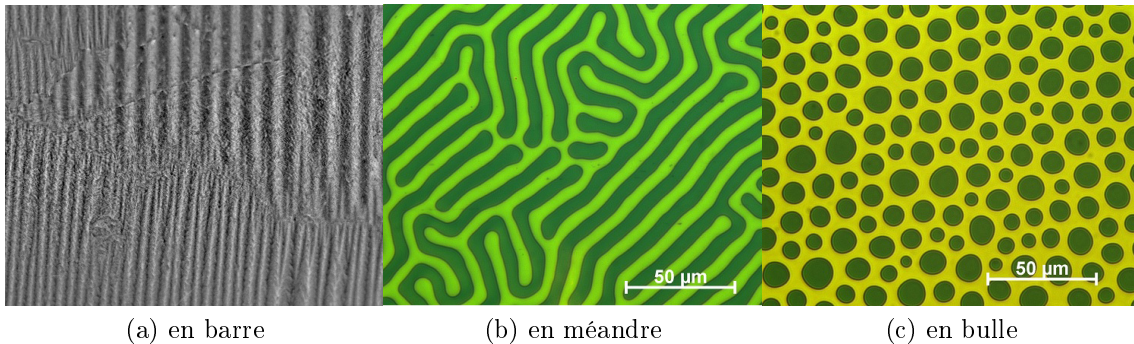


FIGURE 3.15 – Différents types de domaines de Weiss.

Chaque domaine est donc quasi uniformément aimanté, la valeur de l'aimantation est identique d'un domaine à l'autre, et elle dépend de la nature des matériaux. Lorsqu'un matériau ferromagnétique est soumis à un champ magnétique exciteur, l'aimantation de celui-ci varie, et s'explique par deux phénomènes. Premièrement, comme l'aimantation

18. En règle générale, la paroi n'est pas infiniment fine. Le renversement de l'aimantation d'un domaine à l'autre ne s'opère pas brutalement entre 2 atomes voisins, mais s'effectue progressivement sur plusieurs rangées atomiques. Anatole Globus expose une théorie des mécanismes d'aimantation relative à la taille des parois [Glo77], une autre étude porte sur le calcul de la forme de la paroi [Mag86]. Si l'aimantation pivote en sortant du plan, on parle bien de paroi de Bloch, mais dans le cas des couches minces, l'aimantation pivote en restant dans le plan, on parle alors de paroi de Néel.

de chaque domaine reste identique, c'est la croissance de certains domaines au détriment d'autres qui provoque une variation de l'aimantation résultante. Ce mécanisme est possible car la paroi de Bloch peut se déplacer (on parle même de dynamique de paroi [Bec51]), et il est possible de définir une susceptibilité de paroi [GD66], [GD68] [GDG71]. Deuxièmement, l'orientation de l'aimantation a tendance à s'aligner sur l'axe du champ magnétique excitateur. On assiste alors à un phénomène de rotation de spin.

Pour le cas bien connu des tôles magnétiques conçues pour les transformateurs ou les machines électriques, le mouvement de paroi intervient avant la rotation de spin. On trouve dans chaque ouvrage sur les matériaux magnétiques, des schémas illustrant ces phénomènes. Des articles sont d'ailleurs consacrés à la vitesse de déplacement des parois [WSK50].

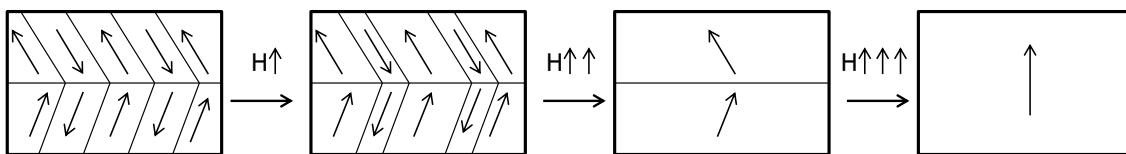


FIGURE 3.16 – Augmentation de la taille des domaines, puis modification de leur orientation suite à l'application d'un champ magnétique.

Dans beaucoup de ferrites Mn-Zn et Ni-Zn, les deux phénomènes se produisent simultanément pour une même intensité de champ magnétique. Dans le cas où il n'y a qu'un seul domaine par cristallite, aucune paroi n'existe par définition, seule peut se produire la rotation de spin.

Enfin, on évoque ici que principalement trois métaux purs sont ferromagnétique : le fer, le nickel, et le cobalt. Plusieurs éléments chimiques appartenant à la famille des lanthanides le sont aussi, mais il est rare de les rencontrer en abondance. Enfin, l'ensemble des matériaux ferromagnétiques pour le génie électrique sont issus de différents alliages : tôles fer-silicium, tôles fer-cobalt, aimants samarium-cobalt, aimants néodyme-fer-bore, etc. Un catalogue regroupant leurs caractéristiques peut se trouver dans la référence [LR94].

3.3.4 L'antiferromagnétisme

La principale différence avec le ferromagnétisme concerne l'intégrale d'échange. Il est toujours possible de définir une énergie d'échange par :

$$E_{ex} = -2J_{ex}\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j = -2J_{ex}S_iS_j \cos(\phi) \quad (3.25)$$

mais concernant les matériaux antiferromagnétiques, la valeur de J_{ex} est négative. Pour minimiser l'énergie, il faut donc que l'angle ϕ soit égal à 180° . Chaque particule voit alors ses proches voisins dans une direction antiparallèle.

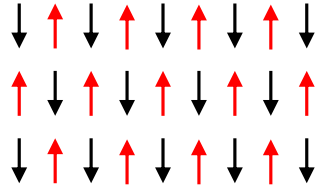


FIGURE 3.17 – Ordre antiferromagnétique.

Sur la figure 3.17, chaque particule magnétique d'un même matériau est représentée par une flèche indiquant sa direction. Dans ce réseau, on peut distinguer deux sous-réseaux, un en noir et l'autre en rouge, qui ont chacun un comportement ferromagnétique. L'aimantation résultante est donc nulle. Cependant, une excitation magnétique orthogonale à l'orientation des moments peut le faire dévier ; on assiste alors à une variation d'aimantation qui se rapproche d'un type de comportement paramagnétique. En revanche, il faut un fort champ magnétique appliqué dans la même direction que les moments pour les renverser.

Enfin, la courbe de Bethe–Slater permet d'illustrer le caractère ferromagnétique ou antiferromagnétique de certains éléments appartenant aux métaux de transitions.

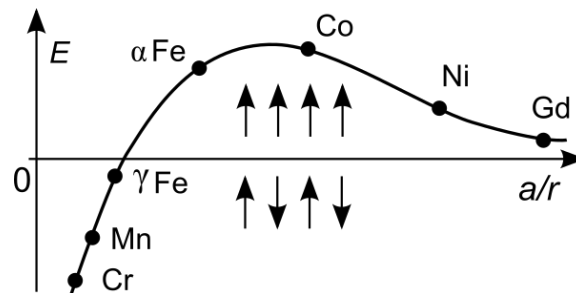


FIGURE 3.18 – Courbe de Bethe–Slater

Sur la figure 3.18, l'ordonnée est l'énergie d'échange, et l'abscisse est le ratio entre la distance interatomique et le rayon de la couche électronique qui porte les moments magnétiques (couche $3d$ ou $4f$).

3.3.5 Le ferrimagnétisme

Le ferrimagnétisme est l'ordre magnétique qui s'applique pour les ferrites, matériaux utilisés dans cette thèse. Les ferrites, qui sont des oxydes magnétiques, ont dans un premier temps été considérés comme des matériaux ferromagnétiques car ils possèdent de nombreuses propriétés similaires. Notamment, ces matériaux peuvent s'aimanter, et il est possible de mesurer leur température de Curie. On peut aussi classer ces oxydes magnétiques selon leur champ coercitif, et en déduire s'ils sont des matériaux doux ou durs (comme par exemple le ferrite de manganèse-zinc et le ferrite de cobalt respectivement). On se souvient par la même occasion que le premier aimant naturel découvert, à savoir la magnétite, n'est autre que le ferrite de fer Fe_3O_4 .

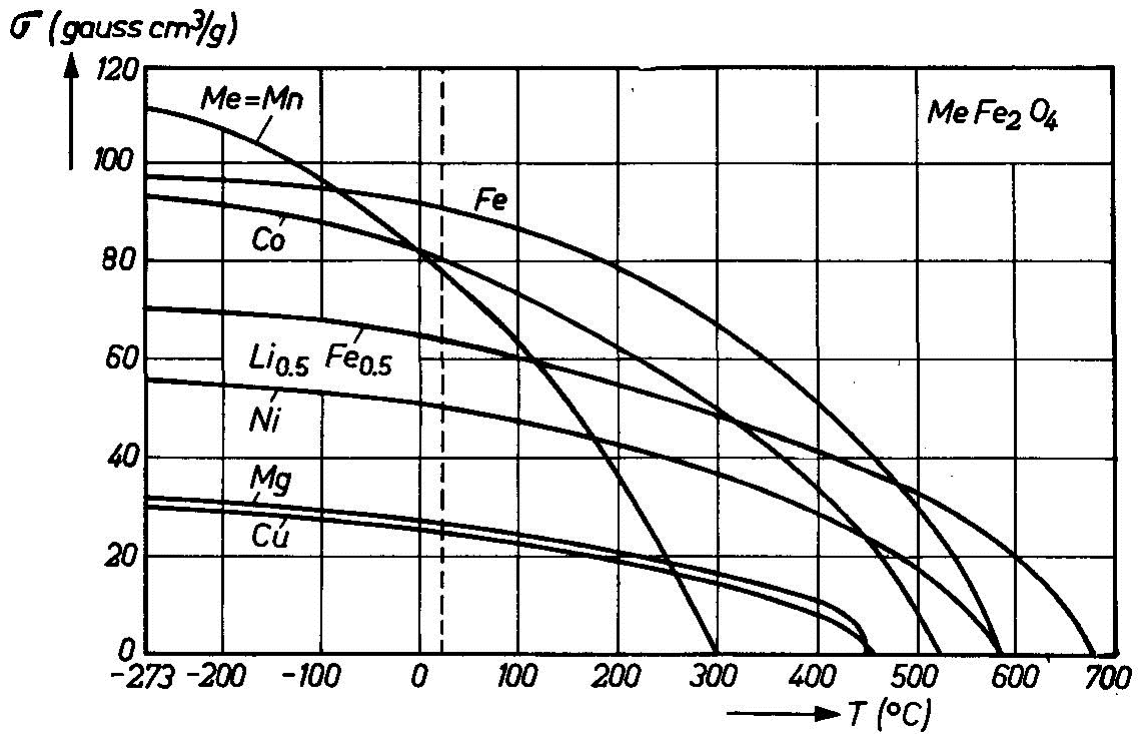


FIGURE 3.19 – L'aimantation à saturation par gramme de ferrites simples, portée en fonction de la température [SW59].

Sur la figure 3.19, l'unité utilisée (du système c.g.s qui est maintenant désuet) est le gauss centimètre cube par gramme, qui équivaut dans le système d'unité internationale à l'ampère mètre carré par kilogramme (dans le système S.I.).

$$1 \text{ G.cm}^3.\text{g}^{-1} = 1 \text{ A.m}^2.\text{kg}^{-1}$$

Pour retrouver une valeur avec les unités courantes, il faut donc multiplier par la masse volumique pour obtenir l'aimantation, mais aussi par la perméabilité du vide pour obtenir la polarisation.

$$M = \sigma.\mu_v \quad J = \sigma.\mu_v.\mu_0$$

où μ_v est ici la masse volumique. Par exemple, le ferrite simple de manganèse qui possède une masse volumique d'environ 5000 kg.m^{-3} présente une aimantation à saturation 0 k d'environ 550000 A.m^{-1} et une polarisation à saturation d'environ $0,691 \text{ T}$.

Cependant, quelques cas particuliers de ferrites comme celui du lithium-chrome présente une aimantation anormale qui ne peut pas être expliquée avec la théorie du ferromagnétisme. La plus ancienne courbe représentant clairement une aimantation anormale fut publié par Gorter et Schulkes en 1953 [GS53].

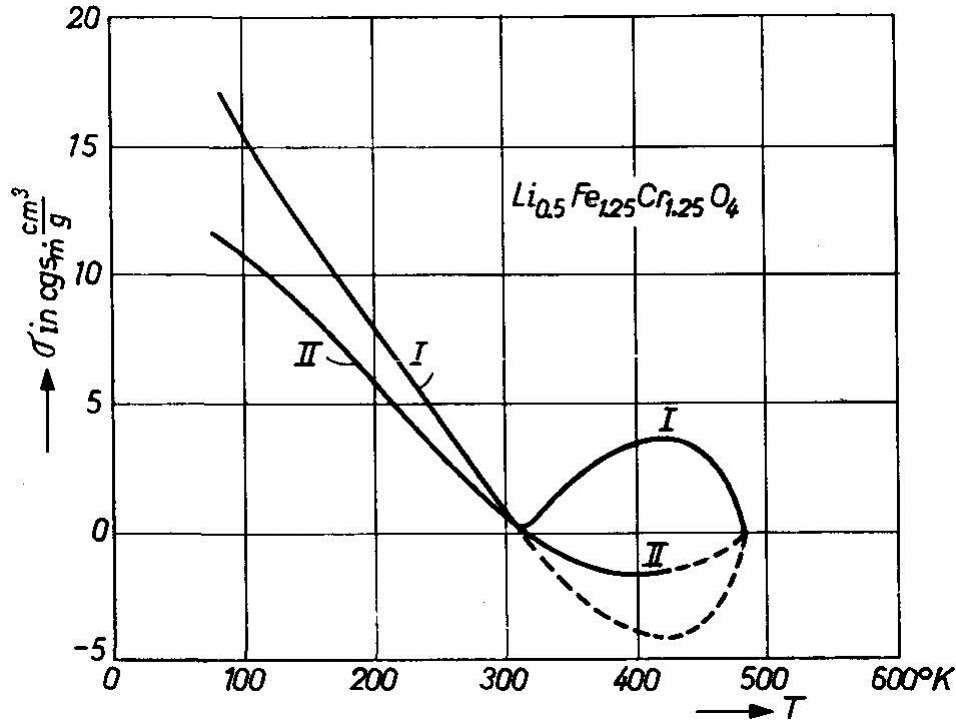


FIGURE 3.20 – L’aimantation du $\text{Li}_{0,5}\text{Cr}_{1,25}\text{Fe}_{1,25}\text{O}_4$, portée en fonction de la température. La courbe I représente l’aimantation spontanée et la courbe II l’aimantation rémanente [GS53].

L’aimantation mesurée (courbe I) s’annule pour deux valeurs de température, comme s’il y avait deux température de Curie. Cette surprenante courbe ne peut s’expliquer qu’avec la théorie du ferrimagnétisme introduite par Louis Néel en 1948 [Née48]¹⁹. Les ferrites sont composés de deux sous-réseaux comme les matériaux antiferromagnétiques²⁰, mais chaque sous-réseau a une aimantation différente.

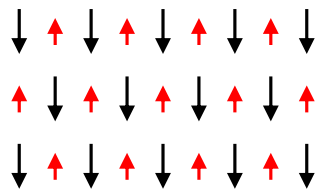


FIGURE 3.21 – Ordre ferrimagnétique.

L’aimantation résultante d’un matériau ferrimagnétique est la somme de l’aimantation de chaque sous-réseau. Cependant, l’évolution de l’aimantation en fonction de la température est différente pour chacun des sous-réseaux. Il en résulte deux configurations possibles pour l’aimantation résultante d’un tel matériau.

19. L’élaboration des théories de l’antiferromagnétisme et du ferrimagnétisme a tout de même valu à Louis Néel un prix Nobel de physique.

20. Des éléments de calcul expliquant l’arrangement antiferromagnétique des ferrites se trouvent dans l’article [YK52].

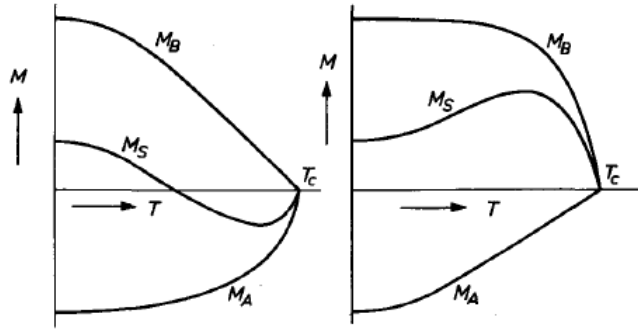


FIGURE 3.22 – Origine des courbes anormales. Les courbes M_A et M_B représentent l'aimantation des sous-réseaux ; M_S représente l'aimantation résultante [SW59].

Il est à noter que les mesures d'aimantation aboutissent à une valeur de M positive, ce qui explique le rebond de la courbe I de la figure 3.20. La courbe théorique où l'aimantation se renverse est tracée en pointillé. La température où l'aimantation s'annule se nomme la température de compensation.

On relève ici aussi que les deux sous-réseaux ont la même température de Curie, ce qui implique bien qu'ils sont couplés et ne sont pas totalement indépendant comme on pourrait le laisser croire. Si chaque moment magnétique est couplé avec un proche voisin, il serait donc tentant d'écrire une équation impliquant une énergie d'échange via une intégrale d'échange. Cependant, l'énergie d'échange n'est pas directe dans le cas du ferrimagnétisme, car les ions porteurs de moment magnétique sont plus ou moins séparés par les ions oxydes O^{2-} . Le couplage se faisant par ces ions, on parle alors d'échange indirect ou de superéchange²¹. Afin d'expliquer ce processus, considérons un système compris de deux ions métalliques M_1 et M_2 , séparés par un ion d'oxygène.

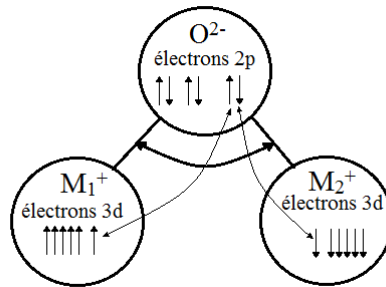


FIGURE 3.23 – Liaison de superéchange.

Il manque deux électrons à l'oxygène afin de compléter sa couche externe ($1s^2 2s^2 2p^4$), il va donc avoir tendance à en capter deux. Un électron e_1 sera capturé en provenance de l'ion métallique M_1 , et un autre électron e_2 de l'autre ion métallique. Cependant ces électrons ne restent pas que sur l'atome d'oxygène mais retournent aussi à leur atome

21. Hans Kramers, sur une proposition de Félix Bloch, énonce déjà en 1934 que l'interaction d'échange dans un sel paramagnétique s'effectue par les atomes "non-magnétiques" [Kra34]. Les premières propositions de mécanismes d'interaction magnétique appliquées au cas particulier du ferrimagnétisme ont été publiées par John Hasbrouck Van Vleck [Van51]. Par la suite, les règles concernant les possibilités de superéchange ont depuis été résumées par Junjiro Kanamori et John Goodenough (qui est quelqu'un d'assez bon). Il est possible de trouver quelques valeurs de ces constantes d'échanges dans [SSN79].

métallique d'origine. Au sein de ce dernier, e_1 (respectivement e_2) doit satisfaire la règle de Hund relativement à l'ion M_1 (respectivement M_2). Il ne peut y être que si son spin a une orientation en accord avec le moment résultant de spin de l'ion. De plus, ces deux électrons occupent les deux états d'énergie maximum dans la couche $2p$ de l'oxygène, le principe de Pauli leur impose d'avoir des spins opposés. Par conséquent les moments magnétiques de M_1 et M_2 sont orientés de façon antiparallèle. La forme de l'orbitale $2p$ implique que la liaison de superéchange est la plus forte pour un angle entre les ions métalliques de 180° et est minimum pour un angle de 90° .

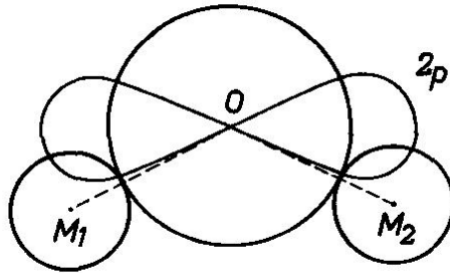


FIGURE 3.24 – Orientation des orbitales $2p$ de l'ion d'oxygène par rapport aux ions métalliques responsables de l'interaction d'échange indirecte [SW59].

3.4 Conclusion

Une vue bien réduite du magnétisme a été abordée durant ce chapitre, mais elle suffisante pour appréhender les notions mises en jeu durant la suite de ce manuscrit de thèse. Nous avons notamment mis l'accent sur le lien entre les grandeurs magnétiques usuelles \vec{H} , \vec{B} , \vec{M} et \vec{J} . Nous avons aussi montré qu'il faut faire attention lorsque l'on évoque la perméabilité (ou la susceptibilité) car il est nécessaire de bien la définir, et que selon l'application on peut trouver différentes définitions. Nous avons par la suite mis en exergue le fait que les mesures magnétiques ne sont pas immédiates, car le champ démagnétisant est difficile à prendre en compte ce qui implique de faire des mesures sur des échantillons ayant une forme bien particulière. Enfin, nous avons défini les différents types de matériau magnétique pour expliquer le ferrimagnétisme.

Chapitre 4

La fabrication des ferrites

Sommaire

4.1	Introduction	45
4.2	Généralités sur les ferrites	46
4.2.1	Propriétés structurales	46
4.2.2	Propriétés électriques	53
4.2.3	Propriétés magnétiques	54
4.3	Synthèse conventionnelle des ferrites spinelles	58
4.3.1	Ferrites monocristallins	58
4.3.2	Ferrites polycristallins	58
4.4	Le frittage SPS/PECS	60
4.4.1	Généralités	60
4.4.2	Les matières premières	61
4.4.3	Le broyage/mélange des matières premières	62
4.4.4	Le séchage	65
4.4.5	L'affinement	65
4.4.6	Le frittage	65
4.4.7	La décarburation et la réoxydation	68
4.4.8	La vérification	69
4.4.9	Conclusion du procédé PECS pour le ferrite NiCuZn	69
4.5	Conclusion	71

4.1 Introduction

Les ferrites sont les matériaux magnétiques utilisés dans ces travaux de thèses. Une brève description est présentée ici. Ce chapitre est très largement inspiré d'un ouvrage majeur : Les Ferrites par Jan Smit et Henricus Petrus Johannes Wijn [SW59]¹, lui-même inspiré par celui de Snoek [Sno49]. Une première approche permet de débroussailler ce domaine grâce aux articles des techniques de l'ingénieur de Richard Lebourgeois [Leb00] et [Leb05].

1. Ce livre, monstre de résultats théoriques et expérimentaux, définit l'ensemble des différents types de ferrites. L'historien des sciences Frédéric Mazaleyra se prononce même : "Depuis la parution du Smit et Wijn, aucune nouvelle espèce de ferrite n'a été découverte, mais chaque espèce a évolué dans sa niche écologique".

4.2 Généralités sur les ferrites

Les ferrites sont des oxydes magnétiques qui ont été découverts au début du vingtième siècle. Il faudra attendre les années 1940 pour que le physicien Louis Néel élabore sa théorie du ferrimagnétisme en vue d'expliquer le magnétisme des ferrites et qui, par la suite, a été vérifiée par de nombreuses expériences. Si cette première théorie s'intéressait surtout aux propriétés statiques des ferrites, des études ultérieures ont montré que leur utilisation dans le domaine des hautes fréquences était très appropriée étant donné leur faible conductivité. Ces ferrites sont donc couramment utilisés dans le domaine des composants électromagnétiques des hautes fréquences (10 kHz à 100 MHz). Au sein de l'électronique de puissance, on les retrouve dans des convertisseurs statiques où ils servent la plupart du temps à réaliser des inductances ou des transformateurs.

Il existe deux grandes familles de ferrites : les ferrites durs et les ferrites doux. Les ferrites durs sont employés comme aimants permanents². Ils ne sont pas l'objet central de cette étude, mais seront évoqués dans la partie 4.2.1.1. Les ferrites doux sont utilisés comme noyaux magnétiques faibles pertes pour la réalisation de transformateurs et d'inductances. Cela provient de leur forte résistivité électrique, qui est généralement supérieure à $1\Omega.m$. Cette valeur joue un rôle important quand on utilise des champs magnétiques variables, car la variation de flux magnétique entraîne l'apparition d'un champ électrique induit dans la matière. Pour éviter les pertes par effet joule dues aux courants induits, il est préférable d'avoir une résistivité la plus grande possible.

4.2.1 Propriétés structurales

Dans la famille des ferrites durs, on trouve les hexaferrites ; et dans la famille des ferrites doux, on trouve les ferrites spinelles et les ferrites grenats. Ces appellations proviennent de leurs structures cristallographiques. Il convient donc de détailler ces points pour mieux comprendre leurs différentes caractéristiques associées.

4.2.1.1 Les hexaferrites

Ces matériaux durs, donc des aimants, ont été développés au début des années 1950. Depuis les années 1970, la production des aimants de types ferrites a dépassé celle des autres types d'aimants et sont de loin le type le plus utilisé dans le monde. Cela est dû aux raisons suivantes :

- le matériau est bon marché,
- les matières premières utilisées ne sont ni rares ni stratégiques,
- les propriétés magnétiques obtenues ont permis le développement de nombreuses applications dans les marchés grand public.

Ce type de matériau existe à l'état naturel sous forme de ferrite de plomb. Il a été découvert dans les années 1930 et est appelé magnétoplombite. Sa formule chimique est $PbFe_{12}O_{19}$. Afin d'éviter d'utiliser le plomb, dans les aimants synthétiques il est remplacé soit par le baryum pour obtenir des matériaux ayant une induction rémanente élevée, soit par le strontium pour les matériaux soumis à un fort champ démagnétisant et qui doivent donc posséder un champ coercitif élevé.

2. La grande majorité des aimants permanents produits dans le monde sont à base de ferrites durs. Ils représentent 90 % du marché en volume des aimants permanents.

Le nom d'hexaferrite provient du fait que leur structure cristalllographique est hexagonale. Cette forme présente une anisotropie magnétocristalline ce qui permet d'avoir une rémanence magnétique.

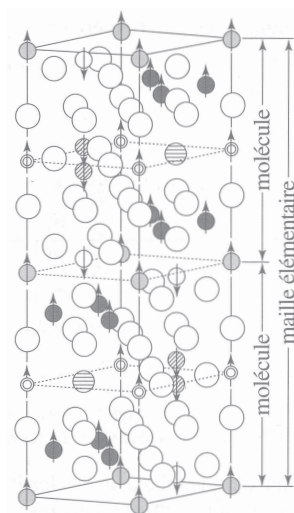


FIGURE 4.1 – Structure cristalline hexagonale [dL99].

Sur la figure 4.1 issue de [dL99] à la page 59 du tome 2, les positions des ions O^{2-} sont repérées par les gros cercles blancs, celles des ions Pb^{2+} (ou Ba^{2+} ou Sr^{2+}) correspondent aux gros cercles hachurés horizontalement. Les petits cercles indiquent les positions des ions Fe^{3+} dans leur différents sites : les sites bipyramidaux occupés par les ions Fe^{3+} auxquels est attribuée l'anisotropie magnétocristalline sont signifiés par les deux cercles concentriques.

Ces ferrites se présentent initialement sous forme de poudre, où chaque grain possède un moment magnétique résultant non nul. Il est possible d'orienter ces grains avec un champ magnétique externe pour maximiser l'aimantation de l'échantillon. Lorsque cette poudre est frittée, elle forme un aimant rigide que l'on peut fixer sur un tableau blanc. Si par ailleurs on mélange ces grains à des agents liants, notamment des polymères, il est alors possible de réaliser des aimants rigides lorsque l'on utilise des résines thermodurcissables, ou alors des aimants souples lorsque l'agent liant est un thermoplastique souple. Et c'est ainsi que l'industrie des hexaferrites s'est fortement développée, grâce aux efforts de l'entreprise Le Gaulois, qui a pris soin d'insérer dans chacune des boîtes de cordons bleus des aimants souples qui ravissent le cœur des aristocrates du ventre qui peuvent eux-mêmes les disposer sur les réfrigérateurs, objet central du foyer familial.



FIGURE 4.2 – Collection "Départ'aimants" par "Le Gaulois", complétée avec l'aide des familles nombreuses.

Pour clore sur ce sujet, il est à noter que l'induction rémanente de ces matériaux varient typiquement entre 0,4 et 0,48 teslas, ce qui est faible pour une utilisation sur machine électrique où on utilisera plutôt des aimants Néodyme-Fer-Bore, mais c'est une valeur adéquate quand il s'agit de pouvoir les coller et les décoller facilement à volonté dans le cas d'un apprentissage de la géographie.

4.2.1.2 Les ferrites spinelles

Le spinelle est une espèce minérale de la famille des oxydes de formule $MgAl_2O_4$. C'est en référence à la structure cristallographique de ce minéral que sont ainsi nommés les ferrites spinelles. Cette structure est cubique à faces centrées. Au sein même de la famille des ferrites spinelles, on trouve deux sous-famille. La première sous-famille regroupe les ferrites de type manganèse-zinc et sont utilisés dans une gamme de fréquence de 1 kHz à 1 MHz. La deuxième sous-famille concerne les ferrites de type nickel-zinc ou nickel-cuivre-zinc et sont utilisés pour des fréquences allant de 1 MHz à 500 MHz car leur résistivité peut atteindre $10^8 \Omega.m$.

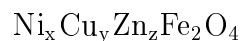
Que ce soit l'une ou l'autre sous-famille, les ferrites spinelles peuvent tous s'écrire sous la forme : $MeFe_2O_4$ où Me représente un cation métallique divalent. Le fer, en revanche, se trouve dans un état trivalent³. Afin d'avoir les caractéristiques voulues, l'ion Me représente une association d'ions :

- monovalent : Li^+
- divalents : Mn^{2+} , Fe^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} , Cu^{2+} , Zn^{2+}
- trivalents : Mn^{3+} , Fe^{3+}
- tétravalents : Ti^{4+} , Sn^{4+}

La sélection de ces ions a été possible car leurs rayons ioniques sont compatibles avec le volume des sites interstitiels disponibles. Par ailleurs, pour l'association des différents ions, il faut respecter l'électroneutralité. Ceci nous conduit dans le cas particulier des ferrites Mn-Zn à :



et dans le cas des ferrites Ni-Zn ou Ni-Cu-Zn à :



3. Sauf dans le cas du ferrite de fer Fe_3O_4 , où deux atomes se trouvant dans l'état trivalent et un atome se trouve dans l'état divalent.

avec dans les deux cas la condition $x + y + z = 1$.

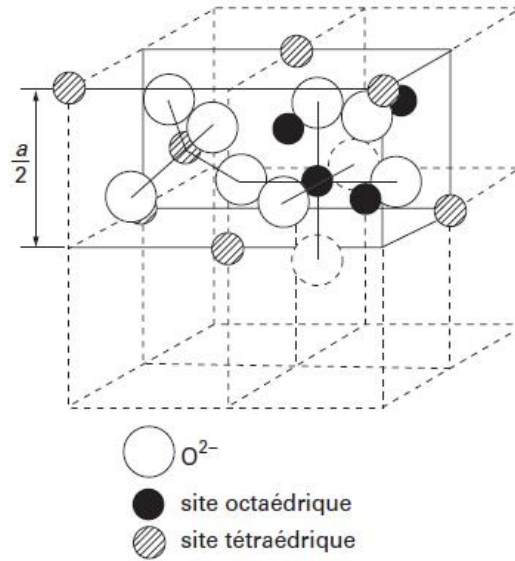


FIGURE 4.3 – Structure spinelle [Leb00].

Il existe deux sortes de sites dans la structure spinelle : tétraédrique et octaédrique. Ils sont respectivement au nombre de 64 et de 32 par maille. Les sites tétraédriques sont symbolisés par la lettre A, et les sites octaédriques par la lettre B. Tous les sites ne sont pas occupés, seulement 8 A et 16 B le sont. On en conclut qu'il a 8 groupements de cellules élémentaires MeFe_2O_4 par maille.

Il est intéressant de constater que la pierre d'aimant, appelée magnétiite dans le jargon des céramistes, de formule Fe_3O_4 rentre bien dans le cadre des ferrites spinelles. Pour ce matériau, on a donc un fer divalent Fe^{2+} et deux fer trivalents Fe^{3+} . Les électrons cédés sont captés par les oxygènes environnants. Cependant, contrairement aux cations ferriques, le cation ferreux peut subir une nouvelle oxydation en libérant un électron supplémentaire. Cet électron ne sera pas capté par l'oxygène car ses couches électroniques sont déjà remplies. L'électron supplémentaire peut sauter sur un autre ion ferrique, et il en résulte qu'il existe une conduction électrique dans le matériau de type semi-conducteur⁴. La résistivité est de l'ordre de $10^{-4} \Omega \cdot \text{m}$, ce qui pose un problème notoire quant à l'utilisation en haute fréquence à cause des pertes par courant de Foucault. C'est précisément la raison pour laquelle on cherche à substituer l'ion Fe^{2+} par un ion Me^{2+} . Selon la position de cet ion métallique dans la maille cristalline (site A ou B), les spinelles sont dits directs ou inverses.

En fonction de la nature de l'ion inséré, différents couplages peuvent avoir lieu. Il faut calculer, pour les différentes possibilités, l'énergie totale du système et retenir la configuration qui minimise l'énergie. A chaque groupement MeFe_2O_4 correspond un moment magnétique résultant dû aux ions métalliques. On énumère dans le tableau 4.1 les différentes configurations possibles en faisant apparaître les moments magnétiques atomiques en fonction des différentes positions des ions. On note au passage que lorsque les deux ions Fe^{3+} sont chacun dans un site B, on dit que le ferrite spinelle est direct, alors que lorsqu'ils sont dans les deux sites différents A et B, on dit que le ferrite spinelle est inverse.

4. Comme ce matériau n'est pas utilisé comme un semi-conducteur, le terme anglophone pour désigner ce type de conduction électrique est hopping conduction

La position du cation Me^{2+} dépend de considérations électro-thermo-chimiques qui ne sont pas étudiées ici, mais en première approximation, on peut dire que les ions les plus volumineux s'insèrent dans les sites octaédriques qui sont les plus spacieux. On évalue ici les différentes configurations possibles des ions Fe^{3+} et Me^{2+} dans les ions, ainsi que leur orientation.

TABLE 4.1 – Configuration des ions dans les sites interstitiels.

N°	site (A)	site [B]	
	tetra	octa	
	(Me^{2+})	$[\text{Fe}^{3+}$	$\text{Fe}^{3+}]$
1	↑	↑	↑
2	↓	↑	↑
3	↑	↓	↑
	(Fe^{3+})	$[\text{Fe}^{3+}$	$\text{Me}^{2+}]$
4	↑	↑	↑
5	↓	↑	↑
6	↑	↓	↑

On note que les configurations ferromagnétiques 1 et 4 sont celles qui maximisent l'énergie d'échange, et sont donc à exclure. Toutes les interactions étant antiferromagnétiques, la configuration de plus basse énergie est en général celle d'aimantation minimale. Par ailleurs, en se souvenant que les ions sont entourés d'oxygène, l'échange entre les ions métalliques ne se fait pas directement, mais par l'intermédiaire des oxygènes environnants; on appelle ce type d'interaction super-échange (voir 3.3.5). Et au sein d'une maille, il en existe trois :

- l'interaction A-A
- l'interaction B-B
- l'interaction A-B

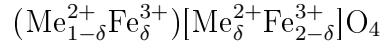
En supposant que l'intégrale d'échange est du même ordre de grandeur pour les trois interactions citées précédemment, et sachant que le moment magnétique le plus fort est porté par Fe^{3+} , on peut donc en déduire les configurations qui correspondent aux ferrites spinelles directs et inverses, voir le tableau 4.2

TABLE 4.2 – Répartition des ions dans les sites du spinelle.

direct			inverse		
(A) (Me^{2+}) tétra	$[B]$ $[\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{3+}]$ octa	O_4	(A) (Fe^{3+}) tétra	$[B]$ $[\text{Fe}^{3+}\text{Me}^{2+}]$ octa	O_4
↑	↑↓		↓	↑ ↑	

Quelque soit la structure, on note que les moments magnétiques dus aux Fe^{3+} se compensent. L'état magnétique est alors déterminé par le métal divalent. Lorsque le métal n'est porteur d'aucun moment magnétique, comme le zinc ou le cadmium, l'aimantation résultante est donc nulle. En associant ces ions ayant un moment magnétique non nul, on peut régler l'aimantation résultante du ferrite en jouant sur le rapport ions amagnétiques/ions magnétiques.

Pour terminer, on peut citer que certains ferrites sont mixtes, c'est à dire qu'ils présentent une structure cristalline intermédiaire. En symbolisant les sites tétraédriques et octaédriques respectivement entre parenthèses et crochets, la répartition cationique s'écrit alors



où δ représente le degré d'inversion cationique. Si $\delta = 0$ le ferrite est direct et si $\delta = 1$ le ferrite est inverse. Pour avoir accès à la nature de la structure, il est possible d'utiliser une étude par diffraction de rayons X ou par diffraction de neutrons. La diffraction de rayon X permet de remonter au paramètre de maille. En revanche, si on souhaite déterminer précisément la répartition cationique dans les sites tétraédriques et octaédriques, seule la diffraction de neutrons permet d'obtenir cette information. En connaissant cette répartition, on en déduit si le ferrite spinelle est direct ou inverse.

TABLE 4.3 – Exemples de ferrite spinelle.

Ferrite	Structure
Zn	direct
Fe, Co, Ni, Cu	inverse
Mn-Zn, Mn	mixte

Enfin, on termine cette présentation des ferrites spinelles en donnant quelques grandeurs caractéristiques de ferrites simples issues du livre de Smit et Wijn [SW59].

TABLE 4.4 – Grandeurs caractéristiques de quelques ferrites simples (1).

Ferrite	Distribution des ions métalliques	Paramètre de maille a pm	Masse molaire $g.mol^{-1}$	Masse volumique μ_v $kg.m^{-3}$
MnFe ₂ O ₄	(Mn _{0,8} Fe _{0,2}) [Mn _{0,2} Fe _{1,8}]	850	230,6	5000
Fe ₃ O ₄	(Fe) [Fe ^{II} Fe]	839	231,6	5240
CoFe ₂ O ₄	(Fe) [CoFe]	838	234,6	5290
NiFe ₂ O ₄	(Fe) [NiFe]	834	234,4	5380
CuFe ₂ O ₄	(Fe) [CuFe]	-	239,2	5350
ZnFe ₂ O ₄	(Zn) [Fe ₂]	844	241,1	5330
Li _{0,5} Fe _{2,5} O ₄	(Fe) [Li _{0,5} Fe _{1,5}]	833	207,1	4750

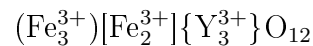
TABLE 4.5 – Grandeurs caractéristiques de quelques ferrites simples (2).

Ferrite	M_{sat} à 0 K ($kA.m^{-1}$)	M_{sat} à 293 K ($kA.m^{-1}$)	J_{sat} à 0 K (T)	J_{sat} à 293 K (T)	Température de curie (°C)
MnFe ₂ O ₄	558	390	0,70	0,49	300
Fe ₃ O ₄	516	478	0,65	0,60	585
CoFe ₂ O ₄	495	431	0,62	0,54	520
NiFe ₂ O ₄	303	271	0,38	0,34	585
CuFe ₂ O ₄	160	135	0,20	0,17	455
ZnFe ₂ O ₄	0	0	0	0	-
Li _{0,5} Fe _{2,5} O ₄	336	308	0,42	0,39	670

Les valeurs de la table 4.5 sont calculées à partir des courbes de la figure 3.19. On rappelle que M_{sat} et J_{sat} sont respectivement l'aimantation à saturation et la polarisation à saturation. D'autres caractéristiques moins primordiales, comme le rayon des cations, peuvent être trouvées dans la référence [ON83].

4.2.1.3 Les ferrites grenats

La structure cristallographique des ferrites grenats est également cubique. Le nom donné à ce type de structure provient du fait qu'ils possèdent la même structure que le minéral $Mn_3Al_2Si_3O_{12}$; mais de manière plus générale, la formule d'un ferrite grenat s'écrit sous la forme $Tr_3Fe_5O_{12}$ où Tr est souvent un ion de terre rare. La structure est un peu plus complexe que la structure spinelle. Aux sites tétraédriques et octaédriques il faut ajouter des sites dodécaédriques correspondant à un environnement de 8 ions oxygènes. Si on prend l'exemple du grenat ferrimagnétique d'yttrium-fer, surnommé YIG, la formule chimique est la suivante



dans laquelle les symboles (), [], { } indiquent respectivement les sites tétraédriques, octaédriques et dodécaédriques. On peut voir l'emplacement des ces sites sur la figure 4.4.

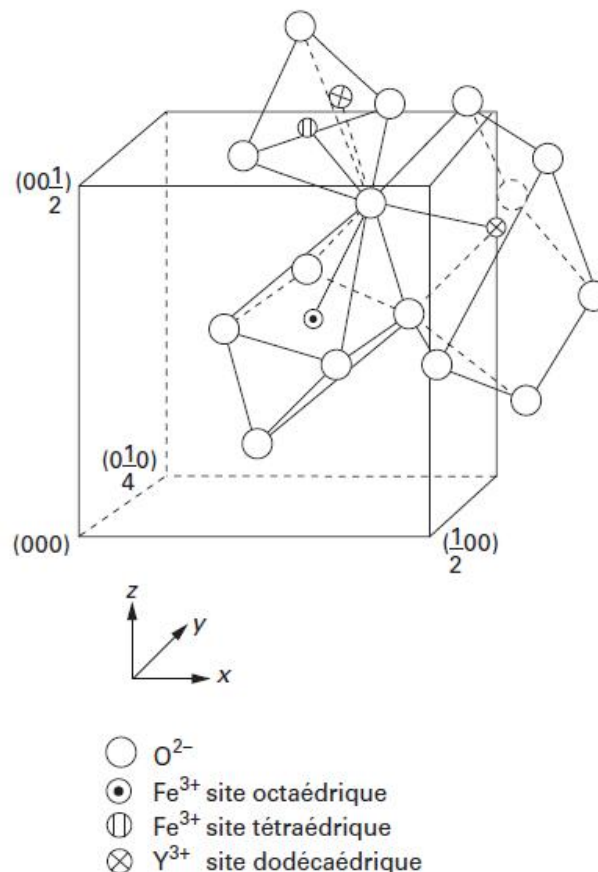


FIGURE 4.4 – Structure grenat [Leb00].

On précise que le dodécaèdre a bien 12 faces. Ici, ce polygone a 8 sommets ce qui implique 18 arrêtes. Il est aussi remarquable que toutes ces faces soient des triangles équilatéraux. Ce dodécaèdre particulier porte le nom de disphénoïde adouci.

Il est à noter que cette structure ne permet pas la présence d'ions Fe^{2+} . Or, ce sont ces ions qui sont responsables des pertes électriques dans les ferrites spinelles, car ils peuvent s'oxyder une nouvelle fois et fournir un électron de conduction. Il en résulte que le spinelle grenat n'est pas un conducteur électrique, sous réserve que le cristal ne présente pas de défaut. C'est précisément la raison pour laquelle ils sont des matériaux de choix pour les dispositifs hyperfréquences. Toutefois, cette structure est aussi responsable des aimantations à saturation modestes de ces matériaux. C'est pourquoi ils sont moins intéressants que les ferrites spinelles pour les applications en moyennes et hautes fréquences (10 kHz à 500 MHz) puisque leur aimantation à saturation est plus faible.

4.2.2 Propriétés électriques

Ce sont les propriétés électriques qui font que les ferrites se démarquent des autres matériaux magnétiques. Ces matériaux ont une résistivité électrique bien supérieure aux autres matériaux magnétiques. A titre de comparaison, la résistivité des ferrites spinelles Mn-Zn est de l'ordre de $1 \Omega \cdot \text{m}$, tandis que celle du fer est de l'ordre de $10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$. Les ferrites spinelles Ni-Zn peuvent quant à eux atteindre des résistivités de l'ordre de $10^8 \Omega \cdot \text{m}$. L'intérêt immédiat est de pouvoir réduire fortement (voire supprimer) les pertes par courant de Foucault, notamment lors d'une utilisation en haute fréquence.

Les ferrites sont des composés ioniques constitués d'ions oxygènes et de cations métalliques. Leur résistivité dépend :

- de la nature des cations et de leur valence,
- des défauts prédominants qui définissent les écarts par rapport à la stœchiométrie, c'est à dire les lacunes cationiques et anioniques ainsi que les cations et les anions en positions interstitielles qui ont pour conséquence des conductivités de type P ou N,
- des conditions de synthèse, il est notamment possible de réaliser des traitements thermiques sous oxygène qui mènent à des résistivités élevées dues à l'oxydation du ferrite.

Plus particulièrement, dans les ferrites spinelles non complètement oxydés, on observe une conduction due aux sauts d'électrons des ions Fe^{2+} vers les ions Fe^{3+} . Cette conduction est de type N, en référence à celle que l'on peut trouver dans les semi-conducteurs. Ce phénomène est caractéristique de la magnétite Fe_3O_4 qui a la résistivité la plus basse des ferrites. C'est une des raisons pour lesquelles, pour les applications fréquentielles, on cherchera donc à remplacer les Fe^{2+} par d'autres cations divalents tels que Ni^{2+} ou Zn^{2+} .

Un autre inconvénient de la présence de l'ion Fe^{2+} concerne les propriétés magnétiques ; on le présente ici car la sous-section 4.2.3 qui suit traite essentiellement des pertes magnétiques. L'inconvénient en question concerne l'anisotropie magnéto-cristalline. Le couplage spin-orbite de l'électron que l'on considère ici comme excédentaire introduit une anisotropie. Celle-ci a pour effet direct de diminuer la perméabilité relative. Or, pour canaliser au mieux le flux, cette perméabilité doit être la plus grande possible. Par ailleurs, une anisotropie importante a tendance à augmenter la surface du cycle d'hystérésis ; cela est bien sûr recherché dans les hexaferrites mais ce n'est pas le cas pour les matériaux doux. Pour s'affranchir de cette anisotropie, il faut substituer le Fe^{2+} par un ion qui naturellement possède un moment orbital nul, qui se note dans la littérature $\mathbb{L} = 0^5$. C'est pour cela que l'on peut aussi remplacer l'ion ferreux par les ions Mn^{2+} ou encore une fois Zn^{2+} .

5. \mathbb{L} est le nombre quantique secondaire, appelé aussi nombre quantique azimutal, appelé encore nombre quantique orbital

4.2.3 Propriétés magnétiques

Quelque soit l'application, l'utilisation d'un matériau magnétique s'accompagne de pertes. Les pertes sont généralement visualisées avec le cycle d'hystérésis associé au matériau. En effet, l'énergie volumique dissipée par cycle s'écrit, en J.m^{-3} :

$$\boxed{w_{\text{cycle}} = \int_{\text{cycle}} H \, dJ \quad \text{en } \text{J.m}^{-3}} \quad (4.1)$$

L'intégration s'opère bien avec la différentielle de la polarisation J , car J est bien la grandeur reflétant l'état magnétique du matériau. Cependant, il est difficile d'accéder expérimentalement à la polarisation J , car c'est l'induction B qui est mesurée. En revanche, il est toujours possible d'écrire que $B = \mu_0 H + J$, et que :

$$\int_{\text{cycle}} H \, dB = \int_{\text{cycle}} \mu_0 H \, dH + \int_{\text{cycle}} H \, dJ \quad (4.2)$$

Cette intégrale avec la différentielle de l'induction B est la somme d'une intégrale représentant une énergie non dissipée (un stockage et une restitution) d'énergie sur un cycle et de l'intégrale représentant la dissipation des pertes magnétiques. Sur un cycle d'hystérésis, il vient donc que l'on peut calculer les pertes magnétiques en intégrant par rapport à la polarisation ou bien par rapport à l'induction. Par raison de commodité de mesure, il est courant d'intégrer par rapport à B . On écrit donc :

$$\boxed{w_{\text{cycle}} = \int_{\text{cycle}} H \, dB \quad \text{en } \text{J.m}^{-3}} \quad (4.3)$$

Cette intégrale représente l'aire du cycle d'hystérésis, et représente la totalité des pertes. On peut distinguer 3 types de pertes :

- les pertes statiques, ou encore appelées pertes par hystérésis : elles se mesure en calculant l'aire du cycle pour une fréquence quasi-nulle,
- les pertes classiques, ou encore appelées pertes par courant de Foucault : elles représentent les pertes dues aux courant induits dans le matériau à cause du champ magnétique variable,
- les pertes supplémentaires, ou encore appelées pertes excédentaires : elles sont dues aux variations de la taille des domaines de Weiss du fait du déplacement des parois de Bloch ; elles peuvent être modélisées en haute fréquence par un effet de résonance-relaxation.

Plusieurs théories permettent d'expliquer qualitativement et quantitativement l'origine de ces pertes. Dans la suite de cette sous-section, une approche simple est présentée mais elle a l'avantage de conduire à un résultat intéressant et utilisable.

On suppose qu'en fonctionnement, la saturation des ferrites doux n'est pas atteinte ; donc le cycle d'hystérésis parcouru est un cycle mineur dont la forme est une ellipsoïde légèrement inclinée dans le repère (O, \vec{h}, \vec{b}) ; cette hypothèse est valable pour les faibles niveaux d'induction. Si la surface du cycle est non nulle, c'est qu'il existe un déphasage entre le champ magnétique \vec{H} et l'induction magnétique \vec{B} . \vec{B} étant induit par \vec{H} , \vec{B} est nécessairement en retard par rapport à \vec{H} . Dans le cas d'une analyse harmonique, il est possible d'utiliser la notation complexe en posant :

$$\boxed{\underline{\mu}(f) = \mu'(f) - i\mu''(f) \Leftrightarrow \underline{\mu} = \mu' - i\mu''} \quad (4.4)$$

où μ' est la partie réelle de la perméabilité relative et qui est souvent assimilée à μ_r dans les documentations techniques, et μ'' est la partie imaginaire de la perméabilité et qui modélise les pertes⁶. Ceci conduit à :

$$\begin{array}{l} B = \underline{\mu}\mu_0 H \\ B = (\mu' - i\mu'')\mu_0 H \\ B = |\mu|\mu_0 H \cdot e^{i\phi} \end{array} \quad (4.5)$$

$$\text{avec } \begin{cases} |\mu| = \sqrt{\mu'^2 + \mu''^2} \\ \phi = \arctan\left(\frac{\mu''}{\mu'}\right) \end{cases}$$

On peut visualiser ce déphasage dans le plan complexe en figure 4.5

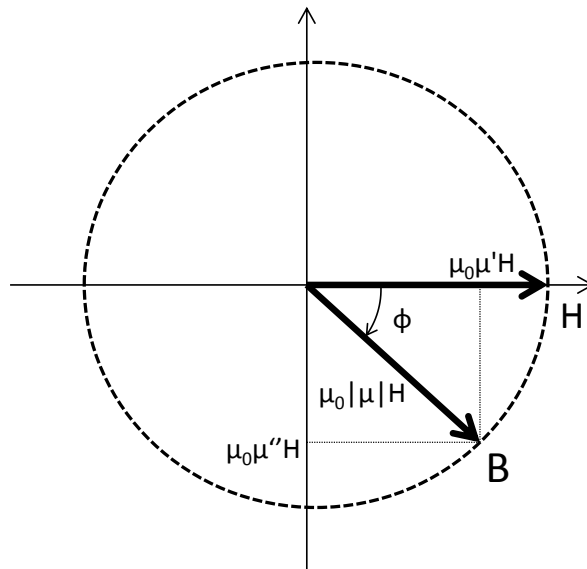


FIGURE 4.5 – Représentation de H et B dans le plan complexe.

Bien qu'orienté dans le sens horaire et non dans le sens trigonométrique, l'angle ϕ est positif car la définition de $\underline{\mu}$ inclut un signe moins sur la partie imaginaire. On peut désormais calculer la puissance des pertes volumiques issues de ce déphasage en posant au préalable que :

$$\begin{aligned} H(t) &= H_0 \sin(\omega t) \\ B(t) &= B_0 \sin(\omega t - \phi) \end{aligned}$$

6. L'introduction du signe moins dans l'expression de la perméabilité $\mu' - i\mu''$ est volontaire, car cela permet d'obtenir une expression mathématique des pertes qui est positive

ce qui permet de calculer

$$\begin{aligned}
p(t) &= \frac{dw}{dt} & (4.6) \\
&= H \times \frac{dB}{dt} \\
&= H_0 \sin(\omega t) \times B_0 \omega \cos(\omega t - \phi) \\
&= \frac{B_0^2}{\mu_0 |\mu|} \omega \times \frac{1}{2} (\sin(\omega t + \omega t - \phi) + \sin(\omega t - \omega t + \phi)) \\
p(t) &= \frac{\pi \cdot f \cdot B_0^2}{\mu_0 |\mu|} \times (\sin(2\omega t - \phi) + \sin(\phi)) & (4.7)
\end{aligned}$$

Si maintenant on veut calculer les pertes volumiques sur un cycle, il faut sommer les pertes sur une période $T = \frac{2\pi}{\omega}$:

$$\begin{aligned}
p_{cycle} &= \int_0^T p(t) dt & (4.8) \\
&= \int_0^T \frac{\pi \cdot f \cdot B_0^2}{\mu_0 |\mu|} \times (\sin(2\omega t - \phi) + \sin(\phi)) dt \\
&= \frac{\pi \cdot f \cdot B_0^2}{\mu_0 \cdot |\mu|} \times \sin(\phi) \times T \\
&= \frac{\pi \cdot B_0^2}{\mu_0 \cdot |\mu|} \times \sin(\phi) \\
&= \frac{\pi \cdot B_0^2}{\mu_0} \times \frac{1}{\sqrt{\mu'^2 + \mu''^2}} \times \sin\left(\arctan\left(\frac{\mu''}{\mu'}\right)\right) \\
&= \frac{\pi \cdot B_0^2}{\mu_0} \times \frac{1}{\sqrt{\mu'^2 + \mu''^2}} \times \frac{\frac{\mu''}{\mu'}}{\sqrt{1 + \left(\frac{\mu''}{\mu'}\right)^2}} \\
p_{cycle} &= \frac{\pi \cdot B_0^2}{\mu_0} \times \frac{\mu''}{\mu'^2 + \mu''^2} = \pi \cdot H_0^2 \cdot \mu_0 \cdot \mu'' & (4.9)
\end{aligned}$$

On note que les pertes volumiques par cycle sont nulles uniquement si μ'' est nul. C'est bien ce terme qui modélise les pertes. $\mu'' = 0$ revient à avoir un déphasage nul entre le champ magnétique et l'induction magnétique. Un exemple de mesure est donné figure 4.6.

Lorsque l'on écrit classiquement $\vec{B} = \mu_0 \mu_r \vec{H}$, on garde en tête que la valeur de μ_r n'est une constante que dans le cas linéaire, ce qui se vérifie dans le cas où on est loin de la saturation. Or μ_r dépend de la fréquence et de l'amplitude du champ magnétique. Il en va de même lorsqu'on écrit $B = \underline{\mu} \mu_0 H$ avec $\underline{\mu} = \mu' - i\mu''$, à la différence que cette écriture sous-entend justement que l'on veut faire apparaître la dépendance en fréquence de la perméabilité.

Dans certains cas particuliers, il est possible de modéliser les perméabilités par un modèle de Debye, qui est un modèle du premier ordre (comme un filtre passe-bas en électronique). Un exemple est donné pour un ferrite spinelle Mn-Zn que l'on trouve classiquement dans le commerce. En mesurant l'impédance complexe d'une inductance à noyau torique de ferrite doux, on peut remonter à la valeur de la perméabilité. On commence par calculer les parties réelle et imaginaire de l'impédance à l'aide d'une mesure

à l'analyseur d'impédance et ce à différentes fréquences. En effet, pour un tore, il suffit de poser que l'inductance complexe prend la forme :

$$\underline{L} = \frac{n^2}{\mathcal{R}} = \mu_0(\mu' - j\mu'') \frac{S}{l} n^2 \quad (4.10)$$

avec \mathcal{R} la réluctance du circuit magnétique. Ceci permet d'en déduire l'impédance :

$$\underline{Z} = j\underline{L}\omega = j\mu_0(\mu' - j\mu'') \frac{S}{l} n^2 \omega = \mu_0\mu'' \frac{S}{l} n^2 \omega + j\mu_0\mu' \frac{S}{l} n^2 \omega \quad (4.11)$$

Cette impédance est précisément la grandeur que l'on mesure à l'analyseur d'impédance, et cette appareil nous délivre une valeur sous la forme :

$$\underline{Z} = R + jX \quad (4.12)$$

Ce qui permet d'en déduire les perméabilités :

$$\mu' = \frac{X \cdot l}{\mu_0 \cdot 2\pi f \cdot S \cdot n^2}$$

$$\mu'' = \frac{R \cdot l}{\mu_0 \cdot 2\pi f \cdot S \cdot n^2}$$

avec $\left\{ \begin{array}{l} l \text{ la longueur moyenne du tore} \\ A \text{ la section du tore} \\ n \text{ le nombre de spire} \\ f \text{ la fréquence} \end{array} \right.$

Le tracé de $\mu'(f)$ et de $\mu''(f)$ peut être comparé avec le modèle de relaxation de Debye

$$\underline{\mu} = \frac{\mu_s}{1 + i \cdot f/f_r} \quad (4.13)$$

où μ_s est la valeur de μ' pour $f \mapsto 0$ et f_r la fréquence de relaxation où μ'' est maximale. On visualise l'allure des perméabilité sur la figure 4.6.

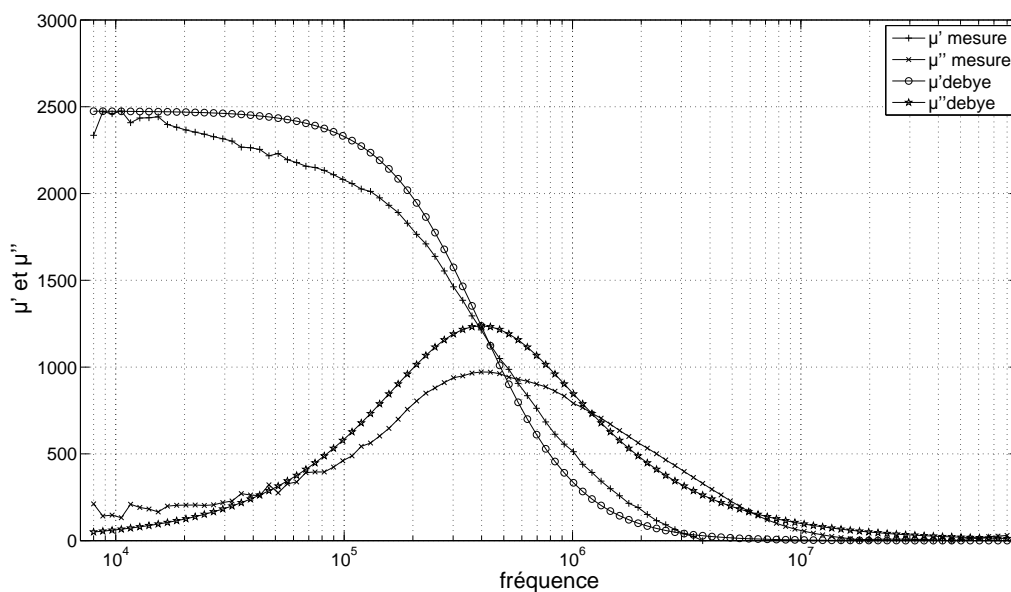


FIGURE 4.6 – Perméabilités relatives d'un ferrite Mn-Zn.

On remarque que sur cette courbe, la perméabilité μ' chute à partir d'environ 100 kHz, ce qui est bien en accord avec ce qui a été dit précédemment : les ferrites spinelles de type manganèse-zinc sont utilisés dans une gamme de fréquence de 1 kHz à 1 MHz.

4.3 Synthèse conventionnelle des ferrites spinelles

La synthèse conventionnelle⁷ des ferrites est parfaitement décrite dans [Leb00]. Les descriptions de cette section 4.3 en sont donc largement inspirées.

Les ferrites sont des oxydes synthétiques mixtes élaborés à haute température à partir des oxydes primaires de métaux de transition. Par exemple, les ferrites de manganèse-zinc $Mn_xZn_{1+x}Fe_2O_4$ sont synthétisés à partir des oxydes de fer, de manganèse et de zinc, respectivement Fe_2O_3 , Mn_3O_4 et ZnO . Un autre exemple, le ferrite de nickel $NiFe_2O_4$ est synthétisé à partir des oxydes de fer et de nickel, respectivement NiO et Fe_2O_3 . Leur synthèse conduit la plupart du temps à des matériaux polycristallins qui représentent aujourd'hui les céramiques magnétiques les plus vendues. Il est aussi possible de fabriquer des monocristaux, mais ils sont bien moins présents du fait qu'ils sont bien moins faciles à réaliser.

4.3.1 Ferrites monocristallins

Les ferrites monocristallins peuvent être synthétisés par différentes méthodes : synthèse hydrothermale, croissance en milieu d'oxydes fondus et synthèse par tirage. C'est principalement cette dernière que l'on utilise pour les monocristaux industriels. L'avantage de ce type de produit est d'avoir un matériau très dense avec un état de surface de très bonne qualité (un polissage est néanmoins nécessaire). Les inconvénients sont plus nombreux : hétérogénéité de la composition chimique, formats limités (plaque ou disque), usinage délicat et coût élevé. Les ferrites à l'état de monocristal ont surtout été utilisés jusqu'à présent pour des applications spécifiques de têtes d'enregistrement magnétique. Dans le domaine de la recherche, les monocristaux ont été utilisés afin de déterminer des caractéristiques des matériaux, comme par exemples les constantes d'anisotropies.

4.3.2 Ferrites polycristallins

Les ferrites polycristallins industriels sont élaborés selon un procédé céramique conventionnel.

4.3.2.1 Matières premières

Comme énoncé précédemment, il faut choisir comme matières premières les oxydes des métaux sous forme de poudres qui constitueront le ferrite. Ces oxydes sont par exemple Fe_2O_3 , Mn_3O_4 , ZnO pour les ferrites de manganèse-zinc et Fe_2O_3 , NiO , ZnO , CuO pour les ferrites de nickel-zinc et de nickel-cuivre-zinc. Une attention particulière est portée sur la pureté des matières premières, car cela influera directement sur les performances électromagnétiques du ferrite. La répartition granulométrique de chaque poudre d'oxyde joue également un rôle important. En général, on préfère des oxydes à grains fins (autour du micromètre) et présentant une dispersion granulométrique réduite, surtout pour l'oxyde de fer qui est majoritaire dans toutes les compositions. En effet, plus la granulométrie est

7. La synthèse conventionnelle est aussi appelée synthèse par voie solide.

fine, meilleure sera le frittage. Une poudre ayant des grains présentant un fort rapport surface sur volume (dit aussi une forte surface spécifique) est qualifiée de poudre ayant une forte réactivité⁸.

4.3.2.2 Broyage et mélange

Cette opération est essentielle pour l'optimisation des réactions chimiques. Elle permet d'améliorer la finesse des matières premières pour augmenter leur réactivité. Les broyeurs industriels (broyeurs à boulets ou par attrition) sont le plus souvent en acier inoxydable ce qui oblige le fabricant à prendre en compte leur usure pour ajuster précisément la composition finale du matériau. On pense notamment à la pollution du fer dans les poudres qui modifiera la résistivité des ferrites. Le broyage permet aussi le mélange intime des oxydes indispensable à une bonne homogénéité chimique après réaction à haute température.

4.3.2.3 Chamottage

Après la première opération de mélange-broyage des oxydes de départ, le produit obtenu est porté à haute température (1 000 à 1 100 °C) pour permettre une réaction en phase solide : les oxydes simples réagissent entre eux pour former la phase spinelle (toujours sous forme de poudre). C'est l'opération de chamottage dont le but est d'obtenir la poudre la plus homogène possible chimiquement sans toutefois que la taille des grains ne soit trop importante pour conserver une bonne réactivité. La poudre calcinée, appelée chamotte, est à nouveau broyée pour diminuer la taille des grains et augmenter sa réactivité.

4.3.2.4 Mise en forme des pièces

Les formats des noyaux en ferrite sont très variés. Pour les transformateurs, on dispose de noyaux en forme de U ou de E, de pots ou bien de tores. La réalisation de ces noyaux nécessite des moules de même forme dans lesquels est pressée la poudre de ferrite. Avant cela, il est nécessaire d'incorporer un produit organique qui servira de liant et assurera la cohésion mécanique des grains entre eux jusqu'au frittage. On choisit le plus souvent l'alcool polyvinylique (PVA) qui sera éliminé par décomposition thermique lors du frittage. Le pressage industriel des pièces est axial. Il existe toutefois une technique de pressage dit isostatique utilisée essentiellement en laboratoire qui permet, d'une part d'appliquer à la poudre la même pression dans toutes les directions et, d'autre part, de ne pas ajouter de liant pour assurer la tenue mécanique du produit pressé. Les pièces pressées ainsi sont le plus souvent cylindriques.

4.3.2.5 Frittage

Après le pressage, la pièce dite crue n'a pas une solidité suffisante, ni même les propriétés magnétiques requises. Il est nécessaire pour cela de la porter à haute température (1 200 à 1 350 °C pour les ferrites manganèse-zinc et nickel-zinc, 900 à 950 °C pour les ferrites nickel-cuivre-zinc). Cette opération, appelée frittage, est de première importance car elle permet à la fois la densification du matériau ainsi que l'ajustement de la

8. Le mot réactivité est ici à prendre au sens chimique : c'est la capacité de réaction d'une molécule ou d'un corps chimique. Un matériau présentant une bonne réactivité est un bon candidat pour une réaction chimique.

composition chimique, l'objectif étant d'obtenir une céramique dense avec la composition chimique et la microstructure souhaitées. Pour les ferrites Ni-Zn et Ni-Cu-Zn, le frittage s'effectue sous air ou parfois sous oxygène. Pour les ferrites Mn-Zn, le frittage est plus délicat car il convient de conserver au cours du refroidissement la phase qui s'est formée à haute température sans oxyder totalement les ions Mn^{2+} et Fe^{2+} . Pour ce faire, on ajuste l'atmosphère selon une loi dans laquelle le logarithme de la pression partielle d'oxygène est inversement proportionnel à la température. Cela est délicat à mettre en œuvre dans les fours industriels qui sont pour la plupart des fours à passage et par conséquent pas complètement étanches. On utilise alors des fours à compartiments ; la précision du degré d'oxydation dépend donc directement du nombre de compartiments.

4.4 Le frittage SPS/PECS

Le frittage SPS/PECS est le nom de la technologie utilisée au sein du laboratoire SATIE pour fabriquer des échantillons de ferrite spinelle. Un protocole de fabrication a été mis au point par Karim Zehani durant ses travaux de thèses en 2011 [Zeh11]. Une des particularité présentée dans ces travaux est la réalisation de frittages réactifs ; cela signifie qu'à partir d'un mélange d'oxydes simples, il est possible de synthétiser la phase spinelle, puis de fritter au sein d'une même opération de chauffe.

4.4.1 Généralités

Cette technologie porte plusieurs noms. Le premier nom est SPS qui est l'acronyme de Spark Plasma Sintering. Comme un doute existe sur la formation de plasma durant le frittage, un deuxième nom a fait son apparition, celui de PECS pour Pulsed Electrical Current Sintering, ce qui correspond au fonctionnement de cette technologie. Un auteur, Zuhair A. Munir, a rédigé un compte rendu en 2006 sur l'utilisation du SPS [MATO06], et ce même auteur a actualisé ce compte rendu en 2011 en nommant cette technologie uniquement sous l'appellation PECS [MQO11]. Si le courant n'est pas pulsé, il est possible de trouver l'acronyme ECAS pour Electric Current Activated/Assisted Sintering [OLL⁺09]. Le nom de frittage flash existe aussi dans la littérature, en raison de la courte durée nécessaire au frittage. Enfin, de manière cocasse, il est possible de le nommer FAST ; ce nom ayant un double sens, un premier faisant écho à la rapidité du frittage, et un second à l'acronyme Field Assisted Sintering Technique [GZ00].

Par la suite, nous avons choisi de garder le nom PECS, car c'est cette appellation qui nous semble la plus en adéquation avec les principes physiques mis en jeu lors de ce type de frittage.

Quelque soit le nom, l'idée de type de frittage est très simple : plutôt que d'apporter de l'énergie sous forme de chaleur par une source située à l'extérieure de l'échantillon comme c'est le cas dans un four, l'énergie calorifique est apportée de l'intérieur en faisant passer un courant électrique par le moule⁹. Ce courant peut être continu, alternatif, ou pulsé. La poudre d'oxyde est généralement introduite dans un moule en graphite soumis à

9. Une question est récurrente quant à ce procédé de frittage : par où passe le courant ? A température ambiante, les oxydes étant isolants, et la résistance du graphite étant faible, on peut affirmer que le courant passe par le moule et non l'échantillon. Cependant, en augmentant la température, la résistivité du carbone diminue, mais celle des oxydes aussi. Il se peut donc qu'à haute température, une partie du courant passe par l'échantillon. Des simulations par éléments finis illustrant la circulation du courant peuvent être trouvées dans l'article [GGJD⁺14]

une pression uniaxiale qui peut atteindre 200 MPa. L'usage du graphite permet en outre d'atteindre des températures de 2000 °C s'il le faut. Le moule et l'ensemble des pistons agissent comme source de chaleur. Un schéma de principe est présenté en figure 4.7.

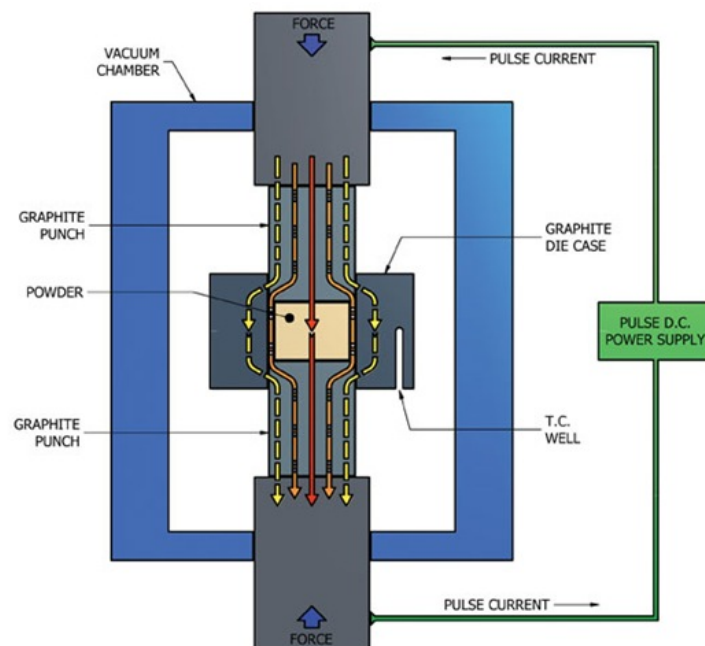


FIGURE 4.7 – Schéma de principe du Pulsed Electrical Current Sintering.

La conséquence immédiate concerne les vitesses de chauffage. Elles sont bien plus élevées avec le procédé PECS, de l'ordre d'environ 600 °C par minute, d'où le nom de frittage flash. Seulement, étant donné que la fabrication diffère par rapport au procédé conventionnel, les caractéristiques physiques des matériaux fabriqués s'en trouvent elles aussi modifiées. Une partie de la recherche actuelle sur le sujet consiste à optimiser le procédé afin de pouvoir comparer les caractéristiques des matériaux selon leur fabrication.

Enfin, un dernier point mérite d'être cité : il existe deux utilisations possibles du PECS en ce qui concerne les ferrites spinelles. La première est le **frittage simple** dans lequel la phase spinelle est déjà formée. Seule la manière de fritter diffère par rapport à la fabrication conventionnelle. La deuxième utilisation est ce qu'on appelle le **frittage réactif**. La phase spinelle est formée durant l'étape de chauffe. La fabrication de ferrites par ces deux voies sont détaillées dans les sous-sections qui suivent.

4.4.2 Les matières premières

Les matières premières sont des oxydes sous forme de poudre.

Dans le cas où l'on souhaite faire un **frittage simple**, nous avons utilisé de la poudre fabriquée par Marion Technologies¹⁰, et fournie par Thierry Lebey du laboratoire Laplace. Afin de s'assurer que les poudres étaient bien oxydées, nous avons fait une réoxydation sous air dans un four à 1000 °C pendant 3 heures. La formule brute de la poudre de ferrite spinelle est $Ni_{0,27}Cu_{0,16}Zn_{0,57}Fe_2O_4$.

Dans le cas du **frittage réactif**, les matières premières sont, comme dans le cas conventionnel, des oxydes simples du type Fe_2O_3 , NiO , ZnO , CuO . Pour nos échantillons,

10. Parc Technologique Delta Sud, 09340 Verniolle

les poudres sont achetées chez Sigma-Aldrich¹¹, en veillant à ce que la taille de particules (les grains de poudre) soient nanométriques, car une petite taille est primordiale pour ce type de frittage rapide. En effet, il est nécessaire d'avoir le plus grand rapport surface sur volume, ce qui revient à avoir la plus grande surface spécifique possible par unité de masse ou de volume¹² afin d'obtenir la plus grande réactivité possible. La formule brute du ferrite spinelle désiré est déterminée par une pesée précise de chacun des oxydes simples.

4.4.3 Le broyage/mélange des matières premières

Dans le cas où l'on souhaite faire un **frittage simple**, il est nécessaire de réduire la taille des particules de poudre ferrites spinelles pour augmenter la densité du matériau fritté. Pour casser les grains, il est nécessaire de faire une opération de broyage. Pour cette étape, on se sert d'un broyeur planétaire à billes¹³. Dans un premier temps, il faut déposer 5,5 grammes de poudre dans une jarre, puis il faut insérer 18 billes de diamètre 7 millimètres et de masse 1,4 grammes¹⁴. De plus, il faut ajouter environ quelques millilitres d'éthanol qui sert à augmenter la viscosité de poudre. En effet, durant le broyage, les billes vont venir heurter les grains, et si la poudre est trop fine et trop volatile, elle sera chassée par les billes et ne sera pas choquée. A vue d'œil, l'ajout d'éthanol doit changer l'apparence de la matière à broyer ; typiquement, il faut passer d'une poudre à une pâte la plus fluide possible. Il ne faut pas pour autant que l'éthanol se trouve en excès et qu'il subsiste une épaisseur liquide¹⁵. D'autres lubrifiants seraient sans doute plus efficaces, mais l'éthanol a cet avantage certain d'être volatile. On pourra donc facilement s'en débarrasser par la suite en plaçant la jarre dans une étuve. De manière empirique, en utilisant le broyeur Pulverisette 6 de la marque Fritsch, broyer aux alentours de 450 tours par minute pendant 3 heures permet d'obtenir une poudre suffisamment fine¹⁶ pour un frittage de qualité, qui correspond dans cette étude à obtenir un matériau avec la plus grande densité possible.

11. St. Louis, Missouri, United States

12. La surface spécifique désigne la superficie réelle de la surface d'un objet par opposition à sa surface apparente. On l'exprime en général en surface par unité de masse, en mètre carré par kilogramme ($m^2.kg^{-1}$), on parle de ce fait parfois d'aire massique. On peut éventuellement l'exprimer en surface par unité de volume, soit en mètre carré par mètre cube ($m^2.m^{-3} = m^{-1}$).

13. Ce nom provient du mouvement des jarres pendant le fonctionnement. A l'instar d'une planète, la jarre tourne sur elle-même mais aussi autour d'un centre de rotation. Le nom est planetary mill en anglais.

14. Les billes de broyage utilisées ne sont pas des billes de broyage vendues par les fabricants de broyeur car elles sont trop coûteuses. Nous avons choisi d'utiliser des billes d'acier chromé employées dans les roulements à billes. Nous nous avons acheter des billes CIMAP 100CR6 chez le distributeur Sefi Rungis.

15. L'analogie peut ici se faire avec le sable et l'eau de mer. Pour obtenir une pâte, il faut mouiller le sable. Plus on mouille, meilleur ce sera. En effet, cela permet de bien agglomérer les grains de sable entre eux. Cependant, il faut éviter que l'eau se trouve en excès. Le constructeur conseille d'avoir une apparence entre le dentifrice et l'huile d'olive.

16. Aucune mesure de taille de particule n'a été réalisée, mais avec une vitesse de rotation inférieure à 450 tr/min ou bien une durée inférieure à 30 min, les ferrites frittés étaient de faible densité.



FIGURE 4.8 – Poudre dans la jarre avant broyage.

Dans le cas du **frittage réactif**, le protocole est quasi identique. Il faut placer l'ensemble des poudres (qui doit peser environ 5,5 grammes) dans la jarre, avec 18 billes de diamètre 7 millimètres et de masse 1,4 grammes, ainsi que quelques millilitres d'éthanol. Ici, il n'est pas nécessaire de casser les grains de poudre car ils sont déjà suffisamment petits, en revanche il faut tout de même mélanger efficacement les différents oxydes simples. On abandonne alors le terme de broyage pour adopter celui de mélange. Pour cela, il est possible d'utiliser le broyeur Pulverisette 7 de la marque Fritsch¹⁷ avec une vitesse de rotation de 400 tours par minute pendant 30 minutes. Après cette étape, l'ensemble du mélange ressemble toujours à une pâte.



FIGURE 4.9 – Mélange après le broyage.

17. On précise ici qu'il est possible d'utiliser indifféremment la Pulverisette 6 ou 7 que ce soit pour une application de frittage simple ou réactif. Le changement de matériel provient simplement du fait que les travaux de thèse ont porté dans un premier temps sur le frittage réactif en utilisant la Pulverisette 7 qui se trouve sur le site du CNRS à Thiais. Dans un second temps, les travaux ont porté sur le frittage simple, et au même moment, la Pulverisette 6 a été achetée au SATIE, ce qui explique ce changement de matériel.

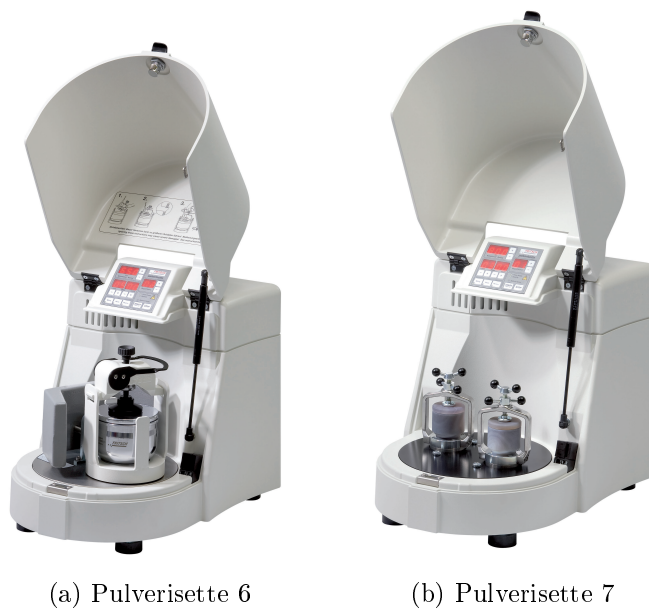


FIGURE 4.10 – Broyeurs planétaires.

Il faut bien noter que cette étape de broyage ou de mélange est très empirique. En effet, un grand nombre de paramètres intervient, et il est quasi impossible de prédire l'état final de la poudre (en terme d'homogénéité et de taille de particule). On peut citer ici quelques paramètres qui jouent un rôle :

- la vitesse de rotation du plateau,
- la vitesse de rotation de la jarre sur elle-même,
- la durée,
- le volume de la jarre,
- le diamètre de la jarre,
- la matière que constitue la jarre (inox, acier trempé, corindon, ...),
- les éléments chimiques constituant la poudre,
- la masse de poudre,
- la taille initiale des poudres,
- le nombre de billes,
- la masse des billes,
- la taille des billes,
- la matière que constitue les billes (inox, acier trempé, corindon, ...),
- la nature de lubrifiant,
- la quantité du lubrifiant,
- l'atmosphère (il est possible de broyer sous argon),
- etc...

Pour cette raison, il n'est pas toujours possible de reproduire un broyage/mélange si on ne possède pas le même matériel. Dans la littérature, quelques auteurs mettent en avant une grandeur particulière dans leurs articles scientifiques. Cela peut être le rapport masse de poudre sur masse de bille, ou bien l'énergie cinétique des billes due à la vitesse de rotation, ou encore le rapport entre le diamètre de jarre et le diamètre de bille. Ceci explique le fait qu'une fois qu'un protocole valable est mis au point, il devient difficile de s'en éloigner.

4.4.4 Le séchage

Comme mentionné précédemment, il faut à présent évacuer l'éthanol. Pour cela, il suffit juste de placer la jarre contenant le mélange dans une étuve à une température comprise entre 50 et 100 °C. Une fois sec, le mélange est alors constitué d'amas.



FIGURE 4.11 – Mélange après séchage.

4.4.5 L'affinement

Afin d'obtenir une poudre fine, il faut écraser les amas. On se sert ici simplement d'un mortier.



FIGURE 4.12 – Mélange après écrasement au mortier.

C'est cette poudre fine dont on va se servir pour réaliser le frittage.

4.4.6 Le frittage

Pour réaliser le frittage, il faut utiliser un moule en graphite. Il se présente sous la forme d'un cylindre creux auquel vient s'ajouter deux pistons. Les parois internes du moule doivent être revêtues de papiex (papier souple carboné). Le papiex a deux rôles. Le premier est d'éviter que la poudre fritte avec le moule. Le second est d'assurer un bon

contact électrique et thermique entre le moule et la poudre pendant le frittage. On y place ensuite le ferrite sous forme de poudre, et on positionne l'ensemble dans le PECS.

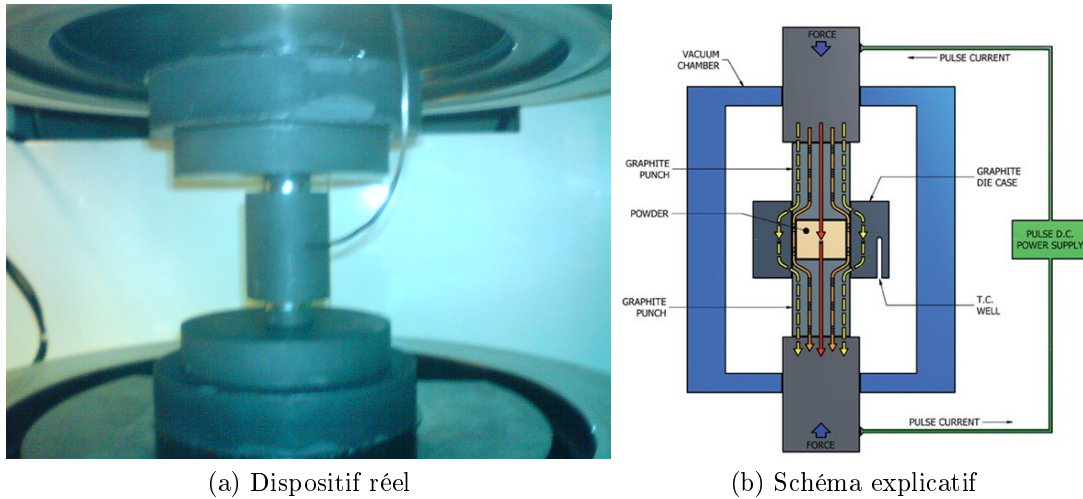


FIGURE 4.13 – Moule contenant l'échantillon à fritter.

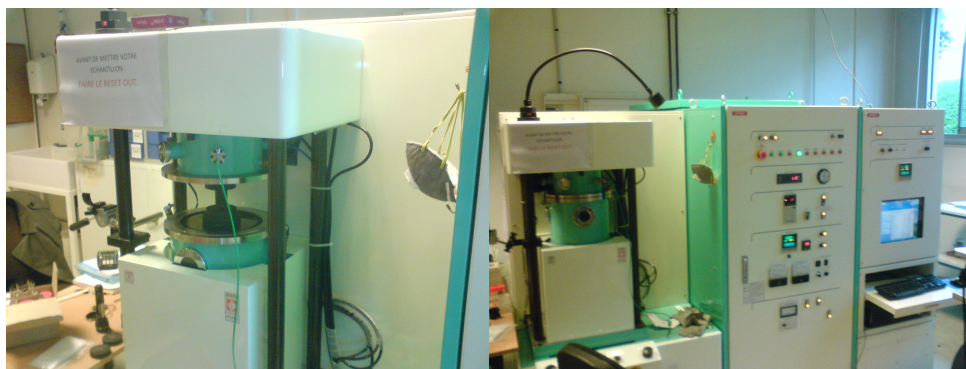


FIGURE 4.14 – Baraque à fritter complète permettant le frittage par procédé PECS.

Avec cet appareil, il est possible de contrôler la température ainsi que la pression uniaxiale pour optimiser les conditions de frittage.

Dans le cas où l'on souhaite faire un **frittage simple**, il suffit d'apporter de la chaleur sous forme d'effet joule pour atteindre la température souhaitée, et de maintenir un palier de température le temps que la réaction de frittage s'opère, et enfin de redescendre en température. Un exemple de température de consigne est donnée sur la figure 4.15. Durant tout le processus, une pression uniaxiale de 50 MPa est appliquée sur les pistons, ce qui a pour effet de favoriser le contact entre les grains et ainsi réduire la porosité.

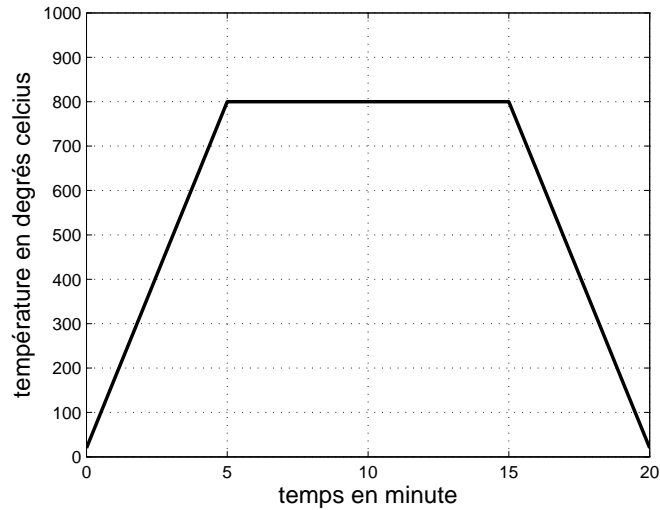


FIGURE 4.15 – Allure temporelle de la température pour un frittage simple.

A la vue de la durée nécessaire, on comprend ici pourquoi ce frittage est aussi nommé frittage flash. En comparaison, pour un frittage conventionnel le palier dure généralement quelques heures. Enfin, on note aussi la faible température de frittage. Pour une valeur d'environ 1300 °C pour le cas conventionnel, elle n'est ici que de 800 °C.

Dans le cas du **frittage réactif**, il est nécessaire de réaliser deux paliers de température. Le premier, à 580 °C, est le palier de réaction. C'est à cette température que les oxydes simples réagissent entre eux pour former la phase spinelle (toujours sous forme de poudre). Le second palier est identique à celui du frittage simple, il est réalisé à une valeur de 800 °C et permet le frittage de la poudre. Ici aussi, il est nécessaire de contraindre la poudre par une pression uniaxiale de 50 MPa pour favoriser aussi bien la réaction que le frittage.

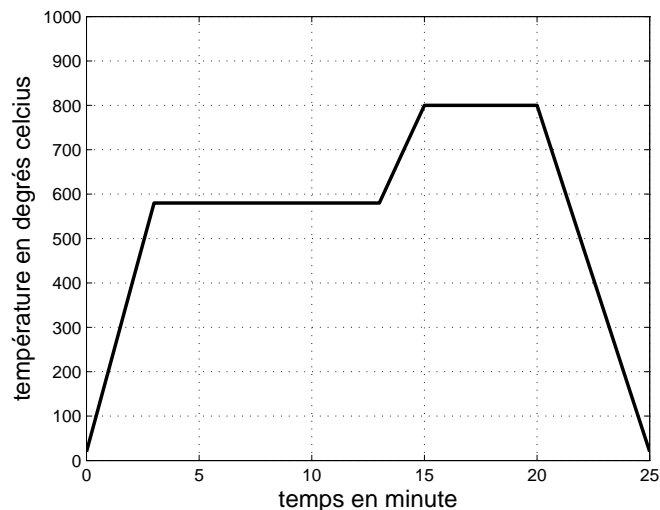


FIGURE 4.16 – Allure temporelle de la température pour un frittage réactif.

Les allures temporelles des températures pour les deux types de frittages sont déterminantes pour obtenir de bons résultats. Notamment, plus la montée en température se fait rapidement, meilleur sera le frittage. De même, il est possible de contrôler la décroissance

en température grâce à un circuit de refroidissement à eau. Cette décroissance peut être très rapide et il est possible de se rapprocher d'une trempe lente. Par ailleurs, la grande dynamique de contrôle de la température permet de réaliser des allures temporelles très particulières, notamment des surtempératures¹⁸ très brèves. Enfin, il n'est pas nécessaire de maintenir un palier de température. Par exemple, nous avons réalisé un frittage par une montée en 3 minutes à 900 °C et immédiatement une descente en 4 minutes. Conséquemment, il est possible de contrôler la densité et la tailles des cristallites¹⁹ grâce à ces rapides variations de température [HTYY00] [YHT⁺01] [SLSQ02] [MLA⁺07].

Cependant, on précise ici que malheureusement, il n'est pas possible de faire un frittage sous air ou sous oxygène car le moule et les piston sont en graphite. Les températures atteintes lors du procédé sont suffisamment élevées pour enflammer le carbone en présence d'oxygène. On est donc contraint à fritter sous argon. La conséquence immédiate est la sous-stœchiométrie en oxygène du ferrite fritté. En effet, à haute température, les atomes d'oxygènes volatiles auront tendances à s'échapper de l'échantillon. Afin d'équilibrer les charges dans la maille, les ions Fe^{3+} vont capter un électron pour devenir des ions Fe^{2+} . C'est simplement une réduction des cations ferriques en cations ferreux. Il vient qu'une conduction de type N peut se produire, ce qui diminue la résistivité électrique l'échantillon.



FIGURE 4.17 – Exemple de pastilles de ferrite en sortie de frittage PECS. Diamètre 20 et 8 mm.

4.4.7 La décarburation et la réoxydation

Après frittage par le procédé PECS, il est nécessaire de procéder à un recuit pour deux principales raisons. La première raison concerne le carbone issu du papiex. En effet, durant le frittage, il y a diffusion du carbone dans l'échantillon, et comme le carbone est conducteur, il réduit le résistivité électrique du matériau. Avec un recuit dans un four sous air, il faut monter à une température de 800 °C pour consumer entièrement le carbone avec l'oxygène de l'atmosphère ; on parle donc de décarburation. La seconde raison concerne

18. le terme surtempérature est ici analogue à une surtension en électricité, à savoir un pic sur une durée très courte [STZ⁺13].

19. Un (ou une) cristallite (crystallite en anglais) est un domaine de matière ayant la même structure qu'un monocristal. On parle fréquemment de grain, mais ce terme est ici à éviter afin de ne pas confondre grain (cristallite) et grain de poudre (particule).

la sous sous-stœchiométrie en oxygène précédemment évoquée. Il faut injecter à nouveau de l'oxygène dans le ferrite pour ici aussi augmenter la résistivité électrique. A la même température, 800 °C, le ferrite fritté se réoxyde car il est possible de voir sa couleur se modifier très légèrement. Cependant, il est difficile de s'assurer que l'intérieur du ferrite est bien, lui aussi, réoxydé. En effet, cela dépend de la porosité du matériau fritté : il est plus facile de réoxyder à cœur si la porosité n'est pas complètement fermée.

4.4.8 La vérification

Il est judicieux de se poser la question suivante : mais au fond, quelle différence y a-t-il entre le bon et le mauvais frittage ?²⁰ Pour attester de la qualité d'un frittage, deux outils sont employés. Le premier consiste à la mesure de la densité grâce à une balance hydrostatique utilisant la poussée d'Archimède. Si la densité mesurée est proche de la densité théorique, alors cela signifie que la porosité est faible et que le frittage est bien réalisé. A contrario, si la densité mesurée est trop faible malgré l'aspect solide de l'échantillon, on parle alors de ferrite aggloméré plutôt que de ferrite fritté. Le second outil est la diffraction de rayons X²¹ qui permet de déterminer la structure cristallographique ainsi que le paramètre de maille. Avec ces résultats, il est possible de vérifier que la phase spinelle est correctement formée mais aussi de détecter la présence de phase parasite, comme par exemple la présence d'oxydes simples qui n'auraient pas réagi dans le cas du frittage réactif.

4.4.9 Conclusion du procédé PECS pour le ferrite NiCuZn

Durant sa thèse, Karim Zehani s'est intéressé aux propriétés des ferrites NiCuZn principalement, et qui avaient été frittés selon le procédé PECS. Une batterie de test a été effectuée selon différents paramètres dans le but de savoir si ce matériau avait les qualités requises pour une utilisation ou une application industrielle.

Pour un **frittage simple**, l'auteur conclut : "cette étude a montré que le procédé SPS est très efficace pour la fabrication du ferrite NiCuZn. Ces échantillons denses et bien cristallisés présentent une granulométrie très fine par rapport au frittage classique. Les propriétés diélectriques et magnétiques peuvent être contrôlées par le temps et la température de frittage, avec le maintien d'une forte valeur de facteur de mérite. Les échantillons frittés à 750 °C pendant 5 min et brûlés sous air à 500 °C montrent un bon compromis en terme de perméabilité et de fréquence de relaxation (f_r). Lorsque l'échantillon est soumis à ce traitement de réoxydation, des valeurs supérieures de résistivité électrique et de perméabilité magnétique peuvent être obtenues, mais seulement au prix d'une augmentation de pertes diélectriques. Ainsi, le procédé SPS pourra être utilisé pour la fabrication de composants électromagnétiques monolithiques intégrées combinant du ferrite NiCuZn, des conducteurs et des diélectriques grâce à la température de frittage très faible obtenue par cette technique."

Pour un **frittage réactif**, l'auteur conclut : "le frittage réactif par SPS du ferrite NiCuZn à partir des oxydes de base sous forme de poudre fine permet de réaliser des échantillons avec des grains de taille nanométrique qui présentent de bonnes propriétés à haute fréquence. Par rapport au frittage simple par SPS de ferrite dont la phase spinelle est préalablement formée, le frittage réactif semble être une voie intéressante pour limiter

20. La réponse se niche dans un reportage filmé le 16 septembre à l'aube, dans le pays du Bouchonois.

21. Abrégé en DRX en français, et XRD en anglais pour X-Ray Diffraction.

la réduction du fer ferrique, inévitable en atmosphère neutre et en présence de carbone jusqu'à 800 °C environ. Un brûlage sous air après frittage est néanmoins indispensable pour décarburer la surface et ré-oxyder le Fe^{2+} en Fe^{3+} à la surface. Pour les frittage à 900 °C, la réduction est plus profonde et la ré-oxydation totale n'est pas réalisable puisque la porosité est fermée. Les différentes mesures effectuées montrent que tous les grains seraient monodomains, comme cela est attendu dans cette gamme de granulométrie et pour ce matériau. Ceci pourrait constituer un avantage important pour des applications de puissance à des niveaux d'induction moyens (25-50 mT) et en haute fréquence (> 1 MHz). En effet, la rotation de spin étant moins dissipative que le déplacement de parois, on s'attend à ce que les pertes magnétiques soient moins élevées pour les échantillons frittés par SPS."

Que ce soit le frittage flash simple ou réactif, la réalisation de ferrites NiCuZn semblent à la vue de ces deux conclusions non seulement tout à fait possible mais présente de bonnes caractéristiques. Plus de caractéristiques sont donnés par la suite, comme les valeurs de l'aimantation à saturation, de la résistivité électrique ou encore du paramètre de maille. On peut cependant émettre deux objections concernant le procédé PECS. La première objection concerne l'homogénéité de la température. En effet, la mesure pour le contrôle de la température se fait par une mesure avec un thermocouple dont la jonction se positionne dans un trou dans la paroi du moule. C'est donc une mesure locale. Cependant, le rayonnement des moules durant la phase de chauffe montre que la température n'est pas homogène, comme montré sur la figure 4.18.

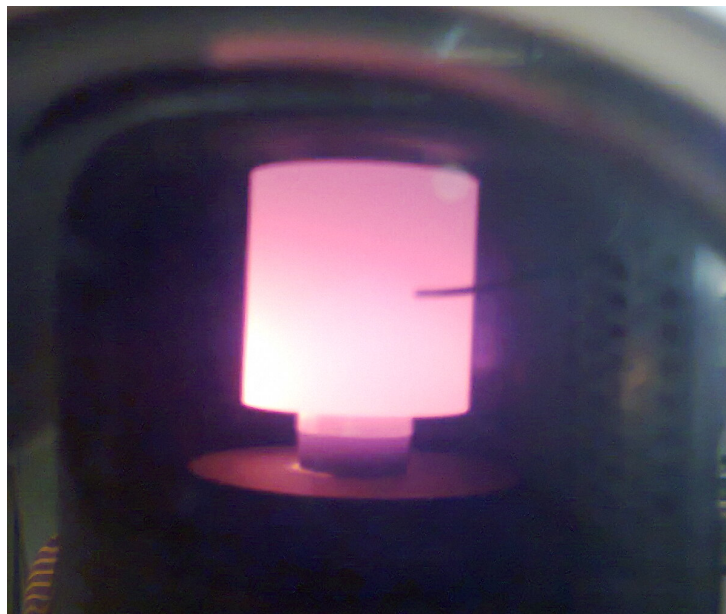


FIGURE 4.18 – Visualisation de l'inhomogénéité de la température du moule.

La seconde objection concerne l'homogénéité de la pression. En effet, la pression est homogène uniquement dans le cas où le matériau est un fluide, ce qui n'est pas le cas ici. Un exemple de calcul de répartition de la pression est donné sur la figure 4.19, où une poudre de ferrite de Ni-Zn ayant une taille de particule d'environ 30 nm est contrainte sous une pression uniaxiale de 8,83 MPa et 200 MPa.

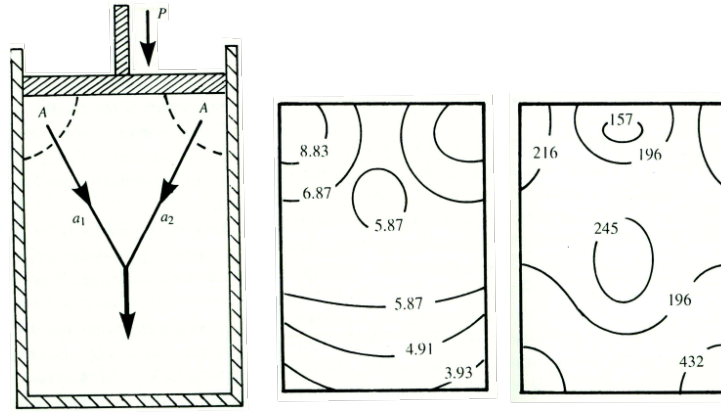


FIGURE 4.19 – Visualisation de l’inhomogénéité de la pression à l’intérieur d’une poudre. La pression appliquée par le piston est de 8,83 MPa dans le premier exemple et 200 MPa dans le second [MC88] [Val94].

On observe non seulement que la pression n’est pas homogène, mais aussi que le comportement est différent selon le niveau de contrainte.

4.5 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté dans un premier temps quelques généralités sur les ferrites en mettant l’accent sur les ferrites de structure spinelle. Les spinelles sont les matériaux magnétiques utilisés dans la gamme des hautes fréquences, grossièrement 1 kHz à 100 MHz. Par la suite, quelques précisions ont été données quant à la synthèse conventionnelle. Enfin, un protocole du frittage par le procédé PECS à partir de poudres commerciales a été détaillé. Ce protocole est issu en grande partie dans le manuscrit de thèse de Karim Zehani [Zeh11], et complété suite aux différents frittages effectués pendant la durée de la thèse.

Deuxième partie

Caractérisation et optimisation du matériau magnétique pour la fabrication de composants monolithiques

Chapitre 5

La compensation de la constante d'anisotropie magnétocristalline

Sommaire

5.1	Introduction	75
5.2	Les constantes d'anisotropie	76
5.2.1	La balance de torsion	76
5.2.2	L'anisotropie dans le cristal	79
5.2.3	Les valeurs remarquables	87
5.2.4	Le champ d'anisotropie	91
5.3	L'idée de la compensation	93
5.4	La mesure de la constante au SATIE	98
5.4.1	La détection de point singulier	98
5.4.2	La mesure du deuxième harmonique	110
5.5	L'incertitude concernant la compensation	114
5.6	Conclusion	116

5.1 Introduction

Dans ce chapitre, une étude sur la constante d'anisotropie magnétocristalline est réalisée dans le but de diminuer les pertes magnétiques dans les ferrites. Dans bon nombre d'ouvrages, l'étude sur l'anisotropie commence par : pour une structure cristallographique cubique, l'énergie d'anisotropie peut s'écrire sous la forme :

$$U_K = K_1 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2) + \dots \quad (5.1)$$

où les termes α_i sont les cosinus directeurs entre l'aimantation et les arêtes du cube, et les termes K_1 et K_2 sont respectivement les première et deuxième constantes d'anisotropie. Dans le cas où $K_1 > 0$ et $K_1 > -\frac{1}{9}K_2$, l'axe [100] est l'axe de facile aimantation, et dans le cas où $K_1 < 0$ et $K_1 < -\frac{4}{9}K_2$ ou $0 < K_1 < -\frac{1}{9}K_2$, l'axe de facile aimantation est l'axe [111].

Généralement, trop peu de détails sont livrés, et pourtant la notion de constante d'anisotropie magnétocristalline est difficile à maîtriser, notamment d'un point de vue mathématique. Il convient donc de revenir sur l'élaboration de ces constantes ainsi que leurs

conséquences sur les propriétés magnétiques des ferrites. Toutefois, deux livres donnent des informations de qualité.

Le premier est le livre de Pierre Brissonneau [Bri97]. L'auteur commence en précisant que l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est avant tout un fait d'expérience : les matériaux magnétiques ne sont pratiquement jamais des matériaux isotropes. Par exemple, il est possible de constater que des matériaux s'aimantent plus facilement selon une direction qu'une autre, ce qui a conduit à la notion d'axe de facile aimantation et d'axe de difficile aimantation. Il relie ensuite ces directions aux directions cristallographiques qui sont les arêtes ou les diagonales de la maille cubique (pour prendre l'exemple du fer). Enfin, il explique l'intérêt de maîtriser cette anisotropie car cela permet de réduire considérablement les pertes dans des tôles de Fe-Si destinées à être utilisées dans les machines ou les transformateurs. Il évoque alors la différence entre tôles à grains orientés et tôles non orientées.

Le second est le livre de Soshin Chikazumi, où l'ouvrage a le mérite de présenter des calculs détaillés qui permettent en partie d'établir l'équation 5.1.

En résumé, un matériau magnétique présente des caractéristiques magnétiques différentes selon la direction de l'excitation magnétique. Pour pouvoir étudier ces caractéristiques, il est nécessaire d'avoir en possession des monocristaux pour pouvoir repérer les directions du cristal. Ce chapitre présente dans un premier temps la mesure des constantes d'anisotropie sur des monocristaux, en prenant des exemples de la littérature. Dans un second temps, l'idée de compenser ces constantes afin de diminuer les pertes magnétiques est introduite. Enfin, la possibilité de mesurer ces constantes sur des polycristaux et une tentative de mesure durant la thèse sont rapportées.

5.2 Les constantes d'anisotropie

5.2.1 La balance de torsion

Quelque soient les références bibliographiques, elles s'accordent toutes sur le fait que pour mesurer les constantes d'anisotropie, la méthode la plus précise s'appuie sur la nécessité d'avoir des monocristaux ainsi qu'une balance de torsion. La méthode consiste à mesurer le couple exercé sur un échantillon de symétrie cylindrique (comme un disque) aimanté à saturation dans un champ extérieur intense.

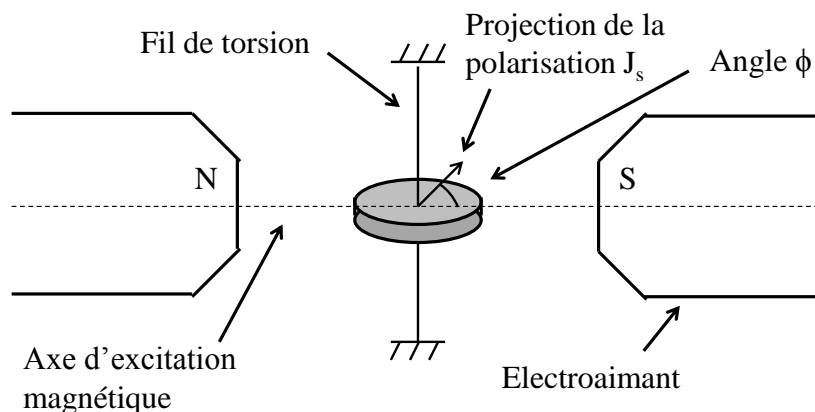


FIGURE 5.1 – Principe de la balance de torsion.

On appelle ϕ l'angle entre la projection de la polarisation à saturation J_s dans le plan du disque, qui est le plan cristallographique (001), et la direction de l'axe de facile aimantation. Pour trouver initialement cet axe, il suffit de tourner l'échantillon sur lui-même jusqu'à mesurer grâce au fil de torsion un couple nul. Il devient donc possible de repérer sur l'échantillon cet axe, et si par ailleurs on a connaissance de l'orientation du réseau cristallin, il devient possible de comparer l'axe de facile aimantation à des directions du réseau, comme par exemple les arêtes des mailles élémentaires.

Il vient donc qu'initialement l'axe de facile aimantation est confondu avec l'axe d'excitation magnétique comme cela est dessiné sur la figure 5.1. Toujours initialement $\phi = 0$. Il est ici possible d'exprimer le couple volumique sous la forme :

$$\Gamma_\phi = -\frac{\partial U_K}{\partial \phi} \quad (5.2)$$

On appelle U_K l'énergie d'anisotropie magnétocristalline¹. Ce couple peut donc être vu comme une force de rappel de la polarisation sur l'axe de facile aimantation.

Par la suite, l'électroaimant tourne autour de l'échantillon en restant dans le plan (001). On note θ l'angle entre la direction de l'excitation magnétique et la direction initiale (qui correspond à la direction de facile aimantation). Sous l'effet du champ, l'échantillon a tendance à tourner sur lui-même. A chaque position, il faut donc relever la valeur du couple nécessaire pour que l'échantillon reste immobile. En d'autres termes, l'échantillon doit rester dans sa position initiale, ce qui est possible en corrigeant la dérive angulaire par la mise en rotation du fil torsion. Une fois cette position atteinte, on peut mesurer le couple grâce au fil de torsion.

A chaque position, il est possible de repérer trois axes et trois angles, comme sur la figure 5.2.

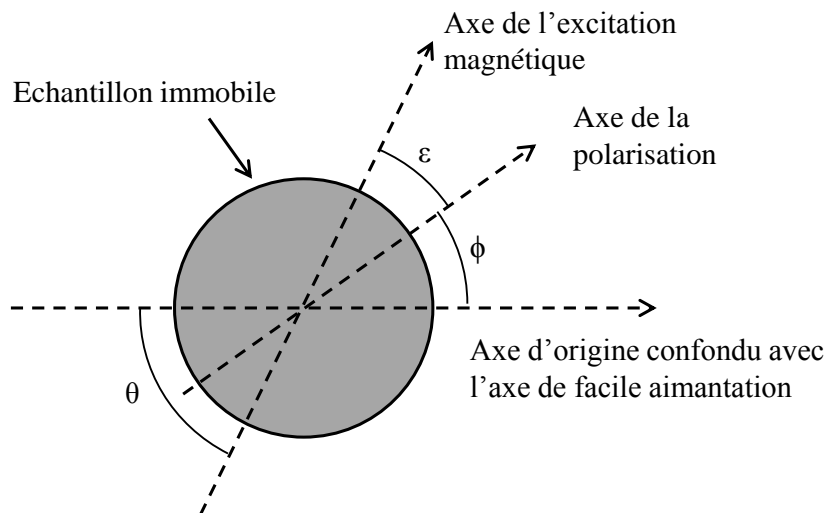


FIGURE 5.2 – Visualisation des angles des équations.

La polarisation magnétique du matériau n'est jamais totalement alignée sur le champ d'excitation magnétique. On appelle ϵ l'angle entre ces deux directions. Cependant, on

1. On suppose que le couple exprimé dans l'équation 5.2 provient d'une force conservative, ce qui permet de l'écrire comme étant la dérivée d'une énergie potentielle par rapport à une grandeur spatiale.

fait l'hypothèse que le champ magnétique est suffisamment intense pour que l'angle ϵ soit négligeable devant l'angle ϕ . Ceci permet de faire l'approximation $\phi \approx \theta$, et donc d'écrire :

$$\Gamma_\phi = -\frac{\partial U_K}{\partial \phi} \approx -\frac{\partial U_K}{\partial \theta} \quad (5.3)$$

Cette approximation est nécessaire car dans la pratique, seul la valeur de θ est repérable, alors que c'est la valeur de ϕ qui permet en théorie de remonter à l'énergie d'anisotropie magnétocristalline. Il est donc possible d'obtenir des graphes du type $\Gamma = f(\theta)$, toujours avec θ l'angle de l'électroaimant par rapport à sa position d'origine. Il est possible de trouver ces courbes dans la littérature, par exemple dans le livre [Chi97] ou bien l'article [BTW55].

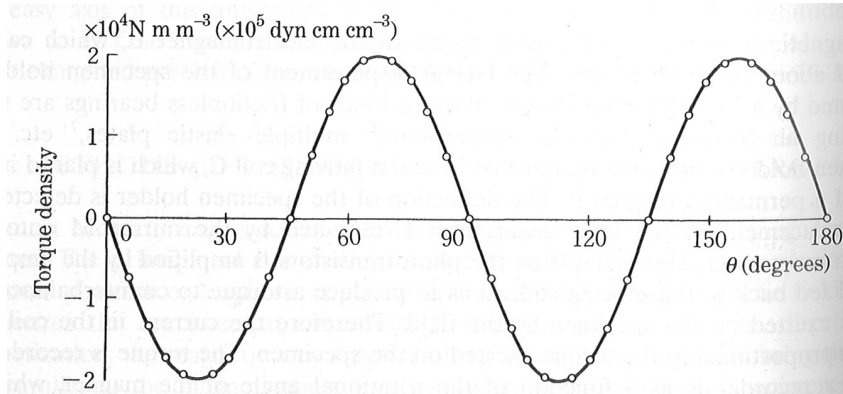


FIGURE 5.3 – Exemple de courbe de couple mesurée dans le plan (001) d'un échantillon monocristallin de 4 % Si-Fe à température ambiante[Chi97].

On note que l'excursion en angle est de seulement un demi-tour et non pas un tour complet car les nombreuses symétries d'un matériau (tel que l'alliage Si-Fe) permettent de faire l'étude de 0 à 180°, la mesure de 180 à 360° étant identique. A la vue de ce graphe, l'ensemble des points d'une même série peuvent être reliés par une courbe de tendance du type :

$$\Gamma(\theta) = -\frac{1}{2}K_1 \sin(4\theta) \quad (5.4)$$

où K_1 est la première constante d'anisotropie (ce qui sous-entend qu'il en existe d'autres). La présence du facteur $-\frac{1}{2}$ sera justifiée par la suite. On peut directement déduire la valeur de K_1 en lisant l'amplitude de la courbe. Pour ce cas, on estime que $K_1 \approx 4 \times 10^4 \text{ N.m.m}^{-3}$. Par ailleurs, comme le couple est équivalent à une énergie², on retrouve bien une énergie volumique : $K_1 \approx 4 \times 10^4 \text{ J.m}^{-3}$.

Il est alors possible de relier les équations 5.2 et 5.4 pour déterminer l'expression de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline :

$$-\frac{\partial U_K}{\partial \theta} = -\frac{1}{2}K_1 \sin(4\theta) \quad (5.5)$$

ce qui implique :

$$U_K = C - \frac{1}{8}K_1 \cos(4\theta) \quad (5.6)$$

2. $1 \text{ N.m} = 1 \text{ kg.m}^2.\text{s}^{-2} = 1 \text{ J}$

où C est une constante d'intégration non mesurable par la méthode du fil de torsion.

Si l'on souhaite maintenant mesurer la deuxième constante d'anisotropie, il est nécessaire de modifier l'échantillon. Les auteurs Sato et Chandrasekhar montre qu'il faut mesurer le couple non plus dans le plan (001), mais dans le plan (111) [SC57]. Sur cette proposition, il est possible de trouver quelques courbes de couple, comme par exemple dans l'article de Tatsumoto, Okamoto et Iwata [TOI65].

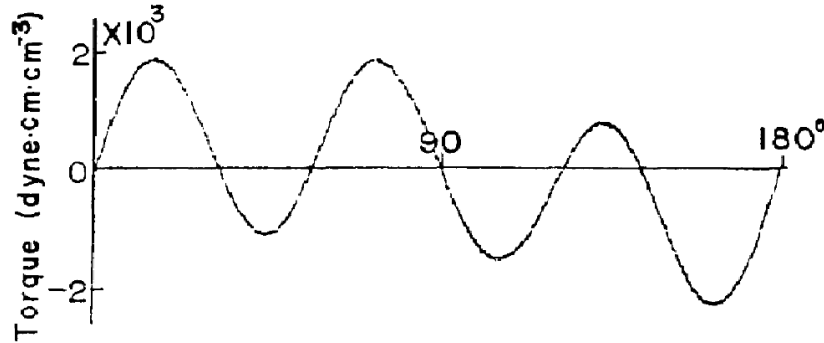


FIGURE 5.4 – Exemple de courbes de couple mesurées dans le plan (111) d'un disque monocristallin de nickel à température ambiante [TOI65].

Sur la courbe de la figure 5.4, on retrouve bien que le couple $\Gamma(\theta)$ possède une composante en $\sin(4\theta)$, mais pas seulement. Il est possible de trouver une courbe de tendance ayant aussi une composante en $\sin(2\theta)$, et peut-être même avec encore d'autres composantes (tout dépend de la corrélation souhaitée entre la courbe de mesure et la courbe de tendance). On peut alors estimer que le couple est de la forme :

$$\Gamma(\theta) = \alpha \sin(4\theta) + \beta \sin(2\theta) + \dots \quad (5.7)$$

ce qui implique que l'énergie d'anisotropie est de la forme :

$$U_K = \alpha' \cos(4\theta) + \beta' \cos(2\theta) + \gamma' + \dots \quad (5.8)$$

Cependant, il n'est pas aussi simple d'exprimer les valeurs de K_1 et K_2 comme fait précédemment avec le premier exemple. Il est nécessaire d'établir quelques éléments théoriques, ce qui est fait dans la sous-section suivante.

Pour finir, on peut noter que parmi toutes les expériences relatées dans la littérature, il est possible de trouver des cas simples comme l'exemple de Chikazumi de l'échantillon Si-Fe, ou bien des cas encore plus compliqués que celui de Matsumoto avec l'échantillon de Nickel. Afin d'harmoniser toutes ces mesures, et de pouvoir comparer les énergies d'anisotropie entre différents échantillons de matière, il faut regarder ce qui se passe à l'échelle de la maille cristalline.

5.2.2 L'anisotropie dans le cristal

Pour les ferrites spinelles, la structure cristallographique est une structure cubique. Expérimentalement, les mesures montrent que les axes de facile aimantation correspondent à des directions particulières du réseau cristallin. Par exemple, il est courant que l'axe facile concorde soit avec la direction des arêtes des cubes soit avec la grande diagonale des cubes des mailles élémentaires d'un monocristal. Pour cette raison, il est commode de traiter le

problème en repérant la polarisation (qui est à saturation dans le cristal) par rapport aux arêtes du cristal. Ces arêtes correspondent d'ailleurs aux axes cristallographiques $[100]$, $[010]$ et $[001]$ (autrement dit à la famille $\langle 100 \rangle$).

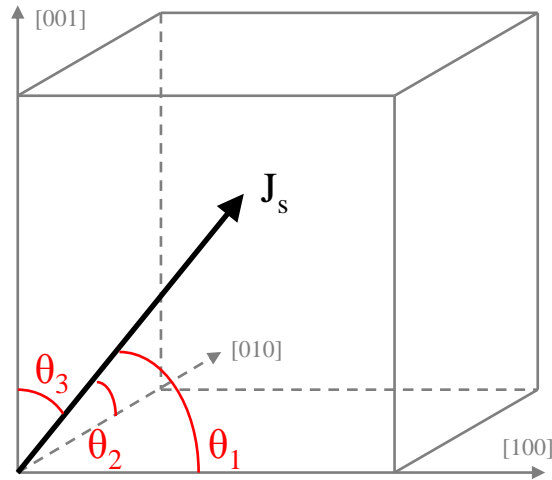


FIGURE 5.5 – Repérage de la polarisation dans une maille élémentaire.

Ce n'est pas tant la valeur de la polarisation qui est intéressante ici (puisqu'elle peut être connue par ailleurs), mais sa direction. On la repère donc sur la figure 5.5 par les angles θ_1 , θ_2 et θ_3 . Il est maintenant souhaitable de relier l'énergie d'anisotropie à ces angles par une fonction à déterminer.

$$U_K = f(\theta_1, \theta_2, \theta_3) \quad (5.9)$$

On se propose donc d'essayer de construire cette fonction. **Pour cela, on se place dans le cas particulier où l'axe de facile aimantation est selon une arête du cube de la maille élémentaire.** On rappelle que compte tenue de la symétrie de la structure cubique, si l'axe $[100]$ est un axe de facile aimantation, alors les axes $[010]$ et $[001]$ le sont aussi. On note par la même occasion qu'il y a des directions équivalentes, représentées sur la figure 5.6 pour un huitième de la sphère unitaire.

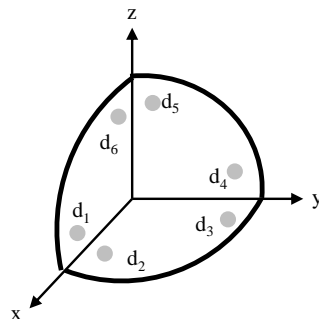


FIGURE 5.6 – Exemple de directions équivalentes dans un cristal cubique.

Comme l'énergie d'anisotropie magnétocristalline peut être assimilée à une force de rappel de la polarisation sur les axes de facile aimantation, il est intéressant d'introduire

les fonctions trigonométriques. Comme l'énergie d'anisotropie doit aussi être minimale lorsque la polarisation est dans la direction d'un axe du cube, et qu'elle doit être paire, la fonction la plus simple est la suivante :

$$U_K = \sin^2(2\theta_1) + \sin^2(2\theta_2) + \sin^2(2\theta_3) \quad (5.10)$$

Pour savoir si cette fonction est suffisante, il faut la modifier pour retrouver l'expression 5.6 déduite des expériences de la balance de torsion. Dans ce cas particulier, les échantillons possèdent bien un axe de facile aimantation selon la famille $\langle 100 \rangle$, et on suppose que la polarisation est dans le plan de l'échantillon (car le champ magnétique d'excitation est dans le plan et est suffisamment intense). Ceci conduit à :

$$\begin{cases} \theta_3 = \frac{\pi}{2} \\ \theta_2 = \frac{\pi}{2} - \theta_1 \end{cases}$$

On peut donc réécrire l'expression de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline :

$$\begin{aligned} U_K &= \sin^2(2\theta_1) + \sin^2(2\theta_2) + \sin^2(2\theta_3) \\ &= \sin^2(2\theta_1) + \sin^2(\pi - 2\theta_1) + \sin^2(\pi) \\ &= 2\sin^2(2\theta_1) \\ &= 2(1 - \cos^2(2\theta_1)) \\ U_K &= 1 - \cos(4\theta_1) \end{aligned} \quad (5.11)$$

En guise de validation, ce résultat est à relier avec l'expression 5.6 déduites des expériences. On compare donc les equations suivantes en rappelant que dans ce cas précis $\theta_1 = \theta$:

$$\begin{cases} U_K = K - \frac{1}{8}K_1 \cos(4\theta) & : \text{expression déduite des mesures} \\ U_K = 1 - \cos(4\theta_1) & : \text{modèle théorique simple} \end{cases}$$

On note qu'il y a une bonne concordance entre les deux expressions, car dans les deux cas on retrouve un terme constant et un terme en $\cos(4\theta)$. On peut tout de même ajuster l'équation 5.10 en faisant apparaître les constantes K et K_1 . On a alors :

$$U_K = K - \frac{1}{8}K_1 + \frac{1}{8}K_1 (\sin^2(2\theta_1) + \sin^2(2\theta_2) + \sin^2(2\theta_3)) \quad (5.12)$$

qui vérifie lorsque $\theta_3 = \frac{\pi}{2}$, $\theta_2 = \frac{\pi}{2} - \theta_1$ et $\theta_1 = \theta$

$$K - \frac{1}{8}K_1 + \frac{1}{8}K_1 (\sin^2(2\theta_1) + \sin^2(2\theta_2) + \sin^2(2\theta_3)) = K + \frac{1}{8}K_1 \cos(4\theta)$$

On vérifie au passage que pour un $K_1 < 0$ comme le cas d'un échantillon de Fe-Si, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est bien minimale lorsque $\theta = 0$, modulo $[\frac{\pi}{2}]$, ce qui confirme bien l'hypothèse selon laquelle les axes de facile aimantation se trouvent le long des arêtes du cube de la maille.

Par ailleurs, ce modèle théorique simple est suffisant pour le cas étudié, à savoir quand le couple est mesuré lorsque la polarisation est dans le plan (001) des échantillons et quand les axes de facile aimantation concordent avec les axes des arêtes du cube de la maille cristalline. Cependant, on se doute que ce modèle est insuffisant dans d'autres cas, notamment quand la polarisation est dans le plan (111) où il est nécessaire d'introduire une composante en $\cos(2\theta)$. Avant d'introduire la fonction générale f telle que $U_K =$

$f(\theta_1, \theta_2, \theta_3)$, on procède à une modification d'écriture de l'équation 5.12, pour exprimer l'énergie d'anisotropie en fonction des angles simples, et non pas en fonction des angles quadruples.

$$\begin{aligned}
U_K &= K - \frac{1}{8}K_1 + \frac{1}{8}K_1 (\sin^2(2\theta_1) + \sin^2(2\theta_2) + \sin^2(2\theta_3)) \\
&= K - \frac{1}{8}K_1 + \frac{1}{8}K_1 (4 \sin^2(\theta_1) \cos^2(\theta_1) + 4 \sin^2(\theta_2) \cos^2(\theta_2) + 4 \sin^2(\theta_3) \cos^2(\theta_3)) \\
U_K &= K - \frac{1}{8}K_1 + \frac{1}{2}K_1 (\cos^2(\theta_1) + \cos^2(\theta_2) + \cos^2(\theta_3) - \cos^4(\theta_1) - \cos^4(\theta_2) - \cos^4(\theta_3))
\end{aligned}$$

C'est sous cet aspect que peut être développée l'énergie d'anisotropie, car il est toujours possible d'exprimer les fonctions trigonométriques $\cos^n(k\theta)$ et $\sin^n(k\theta)$ en fonction des cosinus des angles simples $\cos^n(\theta)$. On se propose donc d'établir à nouveau une fonction la plus générale possible en utilisant cette fois-ci des sommes de composantes en $\cos(\theta)$ élevés à toutes les puissances³, et par soucis de facilité de lecture on pose :

$$\boxed{\alpha_i = \cos(\theta_i)} \quad (5.13)$$

où α_i est appelé le cosinus directeur de l'angle θ_i . On a donc une somme infinie de sommes finies dont on écrit les huit premières :

$$\begin{aligned}
U_K &= \sum_i c_i \alpha_i + \sum_{i,j} c_{ij} \alpha_i \alpha_j + \\
&\quad \sum_{i,j,k} c_{ijk} \alpha_i \alpha_j \alpha_k + \sum_{i,j,k,l} c_{ijkl} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l + \\
&\quad \sum_{i,j,k,l,m} c_{ijklm} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l \alpha_m + \sum_{i,j,k,l,m,n} c_{ijklmn} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l \alpha_m \alpha_n + \\
&\quad \sum_{i,j,k,l,m,n,o} c_{ijklmno} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l \alpha_m \alpha_n \alpha_o + \sum_{i,j,k,l,m,n,o,p} c_{ijklmnop} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l \alpha_m \alpha_n \alpha_o \alpha_p + \dots
\end{aligned} \quad (5.14)$$

Les coefficients c dépendent du matériau, et chaque indice $i, j, k, l, m, n, o, p \in \{1, 2, 3\}$. Cette expression peut néanmoins être simplifiée grâce au haut degré de symétrie de la structure cristallographique cubique. En effet, sur la figure 5.6, nous avons présenté les directions équivalentes, ce qui signifie que l'énergie d'anisotropie doit prendre la même valeur pour chacune de ces directions. Autrement dit, la fonction U_K doit être au moins aussi symétrique que la maille cristalline⁴, donc U_K doit être inchangée par opération de symétrie. Il convient donc de justifier une à une toutes les simplifications nécessaires pour obtenir une forme plus compacte de l'énergie.

Exemples de simplification : Le premier exemple concerne l'opération de symétrie centrale, où un système ayant une polarisation \vec{J}_S doit se trouver dans le même état énergétique qu'un système ayant une polarisation $-\vec{J}_S$. On représente donc sur la figure suivante une illustration de cette opération :

3. Ce qui est aussi appelé un développement en série polynomiale. Chikazumi : "We expand the anisotropy energy in a polynomial series in α_1, α_2 , and α_3 ." [Chi97].

4. On fait référence ici au principe de symétrie de Pierre Curie : "Lorsque certaines causes produisent certains effets, les éléments de symétrie des causes doivent se retrouver dans les effets produits."

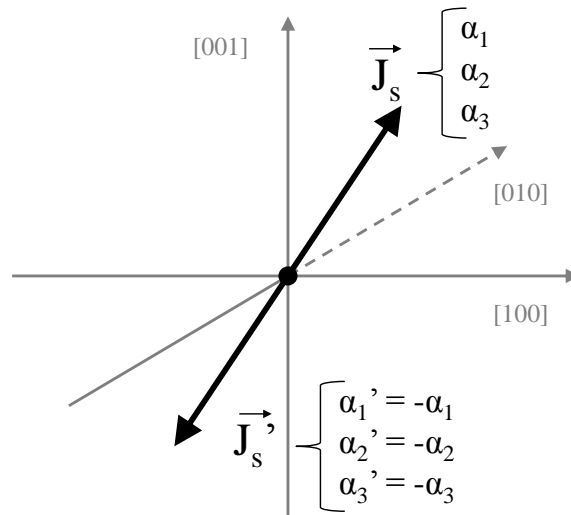


FIGURE 5.7 – Opération de symétrie centrale (rotation de 180 °).

On peut écrire la première somme de l'énergie magnétocristalline, qui doit conserver sa valeur dans les deux directions opposées de la polarisation :

$$\sum_i c_i \alpha_i = c_1 \alpha_1 + c_2 \alpha_2 + c_3 \alpha_3 = c_1 \alpha'_1 + c_2 \alpha'_2 + c_3 \alpha'_3 = -c_1 \alpha_1 - c_2 \alpha_2 - c_3 \alpha_3 \quad (5.15)$$

Cette égalité doit être vraie quelque soit $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$, ce qui implique que :

$$c_1 = c_2 = c_3 = 0 \quad (5.16)$$

Le second exemple concerne l'opération de symétrie miroir, où encore une fois, le système doit se trouver dans le même état énergétique. On représente donc sur la figure suivante une illustration de cette opération :

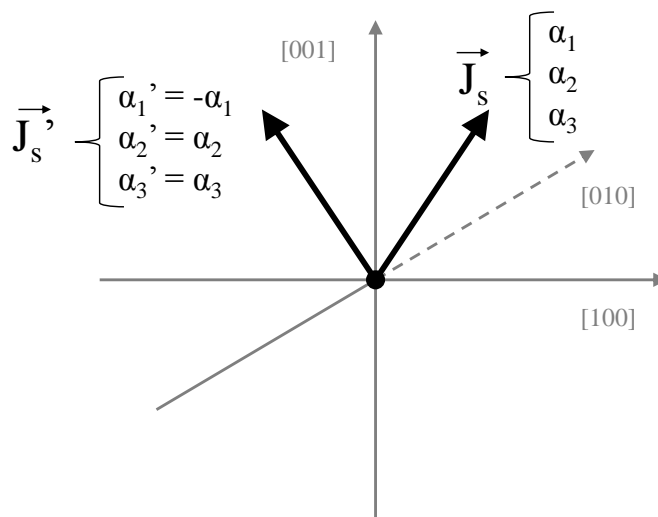


FIGURE 5.8 – Opération de symétrie miroir par rapport au plan (011).

La simplification peut se faire sur les termes de la deuxième somme de l'énergie. Comme la valeur de l'énergie doit être identique dans les deux cas de figure, on peut écrire :

$$\begin{aligned}
\sum_{i,j} c_{ij} \alpha_i \alpha_j &= c_{11} \alpha_1^2 + c_{12} \alpha_1 \alpha_2 + c_{13} \alpha_1 \alpha_3 + \\
&\quad c_{21} \alpha_2 \alpha_1 + c_{22} \alpha_2^2 + c_{23} \alpha_2 \alpha_3 + \\
&\quad c_{31} \alpha_3 \alpha_1 + c_{32} \alpha_2 \alpha_3 + c_{33} \alpha_3^2 \\
&= c_{11} (-\alpha_1)^2 - c_{12} \alpha_1 \alpha_2 - c_{13} \alpha_1 \alpha_3 + \\
&\quad -c_{21} \alpha_2 \alpha_1 + c_{22} \alpha_2^2 + c_{23} \alpha_2 \alpha_3 + \\
&\quad -c_{31} \alpha_3 \alpha_1 + c_{32} \alpha_2 \alpha_3 + c_{33} \alpha_3^2
\end{aligned}$$

Cette égalité doit être vraie quelque soit $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$, ce qui implique que :

$$c_{12} = c_{13} = c_{21} = c_{31} = 0 \quad (5.17)$$

C'est dans cette philosophie que l'on peut simplifier au fur et à mesure certains coefficients c en montrant qu'ils sont nuls. Cependant, les directions équivalentes sont nombreuses pour la maille cubique. La figure 5.6 indique qu'il y a 6 directions équivalentes pour un huitième de l'espace, ce qui signifie qu'il y a au total 48 directions équivalentes. Par ailleurs, l'expression mathématique de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline est complexe. Il devient alors compliqué de montrer chaque simplification à l'aide d'un schéma. Afin d'être concis, on convient donc de les regrouper.

Première simplification : Les termes qui présentent au moins une puissance impaire sur un α doivent être nuls. Ceci se justifie car un changement de signe sur α ne doit pas changer la valeur de la fonction. En effet, comme $\alpha = \cos(\theta)$, on a $-\alpha = -\cos(\theta) = \cos(\pi \pm \theta)$, et cet angle est celui d'une direction équivalente. On en déduit immédiatement que les sommes qui comportent un nombre impaire d'indices sont nulles. Par exemple, la première somme :

$$\sum_i c_i \alpha_i = c_1 \alpha_1 + c_2 \alpha_2 + c_3 \alpha_3 = 0$$

Mais il y a aussi des termes qui se simplifient dans les sommes qui comporte un nombre pair d'indices. On explicite les termes de la deuxième somme :

$$\begin{aligned}
\sum_{i,j} c_{ij} \alpha_i \alpha_j &= c_{11} \alpha_1^2 + c_{12} \alpha_1 \alpha_2 + c_{13} \alpha_1 \alpha_3 + \\
&\quad c_{21} \alpha_2 \alpha_1 + c_{22} \alpha_2^2 + c_{23} \alpha_2 \alpha_3 + \\
&\quad c_{31} \alpha_3 \alpha_1 + c_{32} \alpha_2 \alpha_3 + c_{33} \alpha_3^2 \\
&= c_{11} \alpha_1^2 + c_{22} \alpha_2^2 + c_{33} \alpha_3^2
\end{aligned}$$

On explicite (en partie) aussi les termes de la quatrième somme (qui contient 81 termes mais 60 sont nuls car ils présentent au moins une puissance impaire sur un α , par exemple

$c_{1123}\alpha_1^2\alpha_2\alpha_3$) :

$$\begin{aligned} \sum_{i,j,k,l} c_{ijkl}\alpha_i\alpha_j\alpha_k\alpha_l &= c_{1111}\alpha_1^4 + c_{1122}\alpha_1^2\alpha_2^2 + c_{1133}\alpha_1^2\alpha_3^2 + \\ & c_{1212}\alpha_1^2\alpha_2^2 + c_{1221}\alpha_1^2\alpha_2^2 + c_{1313}\alpha_1^2\alpha_3^2 + \\ & c_{1331}\alpha_1^2\alpha_3^2 + c_{2112}\alpha_1^2\alpha_2^2 + c_{2121}\alpha_1^2\alpha_2^2 + \\ & c_{2211}\alpha_1^2\alpha_2^2 + c_{2222}\alpha_2^4 + c_{2233}\alpha_2^2\alpha_3^2 + \\ & c_{2323}\alpha_2^2\alpha_3^2 + c_{2332}\alpha_2^2\alpha_3^2 + c_{3113}\alpha_1^2\alpha_3^2 + \\ & c_{3131}\alpha_1^2\alpha_3^2 + c_{3223}\alpha_2^2\alpha_3^2 + c_{3232}\alpha_2^2\alpha_3^2 + \\ & c_{3311}\alpha_1^2\alpha_3^2 + c_{3322}\alpha_1^2\alpha_3^2 + c_{3333}\alpha_3^4 \end{aligned}$$

Par soucis d'écriture, on n'explicitera pas les termes de la sixième somme (729 termes) ni de la huitième somme (6561 termes).

Deuxième simplification : Plusieurs coefficients c doivent être identiques, car toutes les permutations des α doivent laisser inchangée la valeur de la fonction d'anisotropie, toujours pour des raisons de symétrie dans le cristal. Par exemple, si on reprend le cas de la deuxième somme et que l'on opère une rotations des indices des α , il est possible d'écrire :

$$c_{11}\alpha_1^2 + c_{22}\alpha_2^2 + c_{33}\alpha_3^2 = c_{11}\alpha_2^2 + c_{22}\alpha_3^2 + c_{33}\alpha_1^2 = c_{11}\alpha_3^2 + c_{22}\alpha_1^2 + c_{33}\alpha_2^2$$

ce qui implique que les coefficients sont égaux et par conséquent :

$$\sum_{i,j} c_{ij}\alpha_i\alpha_j = c_{11}(\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2) = c_{11}$$

car quelque soit l'orientation de la polarisation magnétique dans le cristal, $\cos^2(\theta_1) + \cos^2(\theta_2) + \cos^2(\theta_3) = 1$. Il est possible d'opérer de la même sorte pour la quatrième somme :

$$\sum_{i,j,k,l} c_{ijkl}\alpha_i\alpha_j\alpha_k\alpha_l = c_{1111}(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4) + c_{1122}(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)$$

où il est encore possible de simplifier en utilisant l'identité remarquable suivante :

$$1 = (\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2)^2 = \alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4 + 2(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)$$

ce qui permet d'écrire :

$$\begin{aligned} \sum_{i,j,k,l} c_{ijkl}\alpha_i\alpha_j\alpha_k\alpha_l &= c_{1111} (1 - 2(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)) + c_{1122}(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) \\ &= c_{1111} + (c_{1122} - 2c_{1111})(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) \end{aligned}$$

Avec cette deuxième simplification, il est alors possible de conjecturer sur l'expression de la sixième somme, qui devrait pouvoir s'écrire sous la forme :

$$\begin{aligned} \sum_{i,j,k,l,m,n} c_{ijklmn}\alpha_i\alpha_j\alpha_k\alpha_l\alpha_m\alpha_n &= c_{111111}(\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6) + c_{112233}\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \\ & c_{111122}(\alpha_1^4(\alpha_2^2 + \alpha_3^2) + \alpha_2^4(\alpha_3^2 + \alpha_1^2) + \alpha_3^4(\alpha_1^2 + \alpha_2^2)) \end{aligned}$$

où il est ici aussi possible de simplifier de la sorte :

$$\begin{aligned}
& c_{111122}(\alpha_1^4(\alpha_2^2 + \alpha_3^2) + \alpha_2^4(\alpha_3^2 + \alpha_1^2) + \alpha_3^4(\alpha_1^2 + \alpha_2^2)) \\
&= c_{111122}(\alpha_1^4(1 - \alpha_1^2) + \alpha_2^4(1 - \alpha_2^2) + \alpha_3^4(1 - \alpha_3^2)) \\
&= c_{111122}(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4) - c_{111122}(\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6)
\end{aligned}$$

où il est encore possible de simplifier en utilisant l'identité remarquable suivante :

$$\begin{aligned}
1 = (\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2)^3 &= \alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6 + 6\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \\
& 3(\alpha_1^4(\alpha_2^2 + \alpha_3^2) + \alpha_2^4(\alpha_3^2 + \alpha_1^2) + \alpha_3^4(\alpha_1^2 + \alpha_2^2)) \\
&= 6\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 - 2(\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6) + 3(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4)
\end{aligned}$$

et on en déduit que :

$$\begin{aligned}
\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6 &= -\frac{1}{2} + 3\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \frac{3}{2}(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4) \\
&= -\frac{1}{2} + 3\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \frac{3}{2}(1 - 2(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)) \\
&= 1 + 3\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + 3(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)
\end{aligned}$$

ce qui permet finalement d'écrire la sixième somme :

$$\begin{aligned}
\sum_{i,j,k,l,m,n} c_{ijklmn}\alpha_i\alpha_j\alpha_k\alpha_l\alpha_m\alpha_n &= c_{111111}(\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6) + c_{112233}\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \\
& c_{111122}(\alpha_1^4(\alpha_2^2 + \alpha_3^2) + \alpha_2^4(\alpha_3^2 + \alpha_1^2) + \alpha_3^4(\alpha_1^2 + \alpha_2^2)) \\
&= c_{111111}(\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6) + c_{112233}\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \\
& c_{111122}(\alpha_1^4 + \alpha_2^4 + \alpha_3^4) - c_{111122}(\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6) \\
&= (c_{111111} - c_{111122})(1 + 3\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + 3(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)) + \\
& c_{112233}\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + c_{111122}(1 - 2(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)) \\
&= c_{111111} + (3(c_{111111} - c_{111122}) + c_{112233})\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \\
& (3c_{111111} - 5c_{111122})(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)
\end{aligned}$$

On note que l'expression finale de cette sixième somme s'est grandement allégée. Par soucis d'écriture, nous n'explicitons pas la huitième somme, mais nous pouvons nous avancer sur le nouveau terme qu'elle fait apparaître. En effet, chaque somme explicitement formulée fait intervenir un nouveau terme. La deuxième somme introduit $\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2$. La quatrième somme introduit $\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2$. La sixième somme introduit $\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2$. Avec les mêmes conditions de symétrie, la huitième somme introduira donc un terme en $(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)^2$ ou alors un terme en $\alpha_1^4\alpha_2^4 + \alpha_2^4\alpha_3^4 + \alpha_3^4\alpha_1^4$. C'est la première écriture qui est préférée car elle présente des puissances sur les α qui sont plus faibles. De même, la dixième somme introduira un terme en $(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2\alpha_1^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2\alpha_2^2)^2$, mais comme il est nécessaire d'avoir des puissances paires de α , on le présentera obligatoirement sous la forme $\alpha_1^4\alpha_2^4\alpha_3^4 + \alpha_2^4\alpha_3^4\alpha_1^4 + \alpha_3^4\alpha_1^4\alpha_2^4$. Enfin, la douzième somme présentera un terme en $(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2)^2$.

Troisième simplification et forme finale : Cette troisième et dernière simplification consiste simplement à regrouper les termes communs aux différentes sommes. On remplace toutes les contributions des coefficients c par des nouveaux coefficients K . Ceci permet d'exprimer la forme finale de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline de la sorte :

$$\begin{aligned}
U_K = & K_0 + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) + \\
& K_3(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2)^2 + K_4(\alpha_1^4\alpha_2^4\alpha_3^4 + \alpha_2^4\alpha_3^4\alpha_1^4 + \alpha_3^4\alpha_1^4\alpha_2^4) + \\
& K_5(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2)^2 + \dots
\end{aligned} \tag{5.18}$$

où les termes K_1 , K_2 , K_3 , K_4 et K_5 sont respectivement les première, deuxième, troisième, quatrième et cinquième constantes d'anisotropie. Cependant, expérimentalement seuls K_1 et K_2 ont une importance⁵, et il est courant que tous les K_i avec $i > 2$ soient négligeables devant K_1 et K_2 . Ceci est corroboré par le fait que plus les puissances des α sont grandes, plus les valeurs sont faibles car $-1 \leq \alpha \leq 1$. Par ailleurs, K_0 est une constante qui ne dépend pas des angles θ_1 , θ_2 ou θ_3 , et il n'est pas possible d'accéder à cette valeur par la mesure à la balance de torsion, car seulement la dérivée est mesurable. De plus, seules les variations d'énergie potentielles nous intéressent. On peut donc alléger une dernière fois la fonction de l'énergie d'anisotropie en ne conservant que les grandeurs utiles :

$$U_K = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) \tag{5.19}$$

5.2.3 Les valeurs remarquables

En utilisant cette notation simplifiée, il est possible de faire apparaître quelques valeurs remarquables. Tout d'abord, on peut retrouver l'expression du couple 5.4 issue de la figure 5.3. On rappelle que pour ce cas particulier, le couple est mesuré dans le plan (001) et que l'échantillon possède des axes de facile aimantation selon les arêtes du cube de la maille cristallographique. On a donc $\theta_3 = \frac{\pi}{2} \Rightarrow \alpha_3 = 0$, ainsi que $\theta = \theta_1$ et le couple doit être nul pour $\theta_1 = 0$ ou $\theta_2 = 0 \Rightarrow \alpha_1 = 1$ ou $\alpha_2 = 1$. On a donc :

$$\begin{aligned}
\Gamma(\theta) &= -\frac{\partial U_K}{\partial \theta} \\
&= -\frac{\partial}{\partial \theta} (K_1\alpha_1^2\alpha_2^2) \\
&= -\frac{\partial}{\partial \theta} (K_1 \cos^2(\theta) \cos^2(\frac{\pi}{2} - \theta)) \\
&= -\frac{\partial}{\partial \theta} \left(\frac{K_1}{4} \sin^2(2\theta) \right) \\
&= -K_1 \sin(2\theta) \cos(2\theta) \\
\Gamma(\theta) &= -\frac{1}{2}K_1 \sin(4\theta)
\end{aligned}$$

On retrouver bien l'expression du couple 5.4 énoncé en début de chapitre, et on comprend ici l'origine du facteur $-\frac{1}{2}$ qui n'avait pas été expliquée.

Par la suite, on peut faire apparaître le lien entre les directions de faciles/difficiles aimantation et le signe des constantes K_1 et K_2 . Expérimentalement, il existe trois axes de facile/difficile aimantation selon la nature des matériaux qui correspondent aux trois famille de direction $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$. On se propose donc d'exprimer l'énergie d'anisotropie magnétocristalline dans ces trois directions.

5. A titre personnel, je n'ai jamais pu trouver dans la littérature une valeur de K_3 pour une structure cubique.

Premier cas, la polarisation magnétique est selon l'axe [100]. On a donc $\theta_1 = 0$ et $\theta_2 = \theta_3 = \frac{\pi}{2}$ ce qui est équivalent à $\alpha_1^2 = 1$ et $\alpha_2^2 = \alpha_3^2 = 0$. Dans cette configuration, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline vaut :

$$\boxed{U_{K[100]} = K_0} \quad (5.20)$$

Deuxième cas, la polarisation magnétique est selon l'axe [110]. On a donc $\theta_1 = \theta_2 = \frac{\pi}{4}$ et $\theta_3 = \frac{\pi}{2}$ ce qui est équivalent à $\alpha_1^2 = \alpha_2^2 = \frac{1}{2}$ et $\alpha_3^2 = 0$. Dans cette configuration, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline vaut :

$$\boxed{U_{K[110]} = K_0 + \frac{1}{4}K_1} \quad (5.21)$$

Troisième cas, la polarisation magnétique est selon l'axe [111]. On a donc $\theta_1 = \theta_2 = \theta_3 \approx 54,7^\circ$ ce qui est équivalent à $\alpha_1^2 = \alpha_2^2 = \alpha_3^2 = \frac{1}{3}$. Dans cette configuration, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline vaut :

$$\boxed{U_{K[111]} = K_0 + \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2} \quad (5.22)$$

On justifie au passage la nécessité évoquée précédemment selon laquelle il faut appliquer un champ magnétique excitateur dans le plan (111) pour pouvoir mesurer K_2 avec la balance de torsion.

On cherche donc à trouver des conditions sur le signe de K_1 et K_2 selon un classement de ces trois niveau d'énergie. Il existe 6 configurations possibles.

Première configuration, [100] est l'axe facile, [110] est l'axe moyen, [111] est l'axe difficile :

$$\begin{aligned} & U_{K[100]} < U_{K[110]} < U_{K[111]} \\ \Leftrightarrow & 0 < \frac{1}{4}K_1 < \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 \\ \Leftrightarrow & 0 < \frac{1}{4}K_1 \quad \text{et} \quad \frac{1}{4}K_1 < \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 \\ \Leftrightarrow & K_1 > 0 \quad \text{et} \quad K_1 > -\frac{4}{9}K_2 \end{aligned}$$

Deuxième configuration, [100] est l'axe facile, [111] est l'axe moyen, [110] est l'axe difficile :

$$\begin{aligned} & U_{K[100]} < U_{K[111]} < U_{K[110]} \\ \Leftrightarrow & 0 < \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 < \frac{1}{4}K_1 \\ \Leftrightarrow & 0 < \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 \quad \text{et} \quad \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 < \frac{1}{4}K_1 \\ \Leftrightarrow & K_1 > -\frac{1}{9}K_2 \quad \text{et} \quad K_1 < -\frac{4}{9}K_2 \end{aligned}$$

Troisième configuration, [110] est l'axe facile, [100] est l'axe moyen, [111] est l'axe difficile :

$$\begin{aligned} & U_{K[110]} < U_{K[100]} < U_{K[111]} \\ \Leftrightarrow & \frac{1}{4}K_1 < 0 < \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 \\ \Leftrightarrow & \frac{1}{4}K_1 < 0 \quad \text{et} \quad 0 < \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 \\ \Leftrightarrow & K_1 < 0 \quad \text{et} \quad K_1 > -\frac{4}{9}K_2 \end{aligned}$$

Quatrième configuration, $[110]$ est l'axe facile, $[111]$ est l'axe moyen, $[100]$ est l'axe difficile :

$$\begin{aligned}
 & U_{K[110]} < U_{K[111]} < U_{K[100]} \\
 \Leftrightarrow & \frac{1}{4}K_1 < \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 < 0 \\
 \Leftrightarrow & \frac{1}{4}K_1 < \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 \quad \text{et} \quad \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 < 0 \\
 \Leftrightarrow & K_1 > -\frac{4}{9}K_2 \quad \text{et} \quad K_1 < -\frac{1}{9}K_2
 \end{aligned}$$

Cinquième configuration, $[111]$ est l'axe facile, $[100]$ est l'axe moyen, $[110]$ est l'axe difficile :

$$\begin{aligned}
 & U_{K[111]} < U_{K[100]} < U_{K[110]} \\
 \Leftrightarrow & \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 < 0 < \frac{1}{4}K_1 \\
 \Leftrightarrow & \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 < 0 \quad \text{et} \quad 0 < \frac{1}{4}K_1 \\
 \Leftrightarrow & K_1 < -\frac{1}{9}K_2 \quad \text{et} \quad K_1 > 0
 \end{aligned}$$

Sixième configuration, $[111]$ est l'axe facile, $[110]$ est l'axe moyen, $[100]$ est l'axe difficile :

$$\begin{aligned}
 & U_{K[111]} < U_{K[110]} < U_{K[100]} \\
 \Leftrightarrow & \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 < \frac{1}{4}K_1 < 0 \\
 \Leftrightarrow & \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 < \frac{1}{4}K_1 \quad \text{et} \quad \frac{1}{4}K_1 < 0 \\
 \Leftrightarrow & K_1 < -\frac{1}{9}K_2 \quad \text{et} \quad K_1 < 0
 \end{aligned}$$

Afin d'illustrer ces relations entre les constantes d'anisotropie, on peut représenter ces six différentes configurations (numérotées 1 à 6) dans un repère en fonction de K_1 et K_2 .

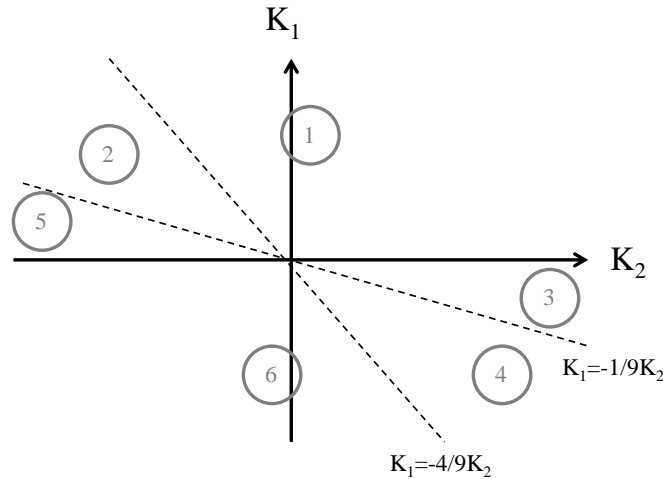


FIGURE 5.9 – Illustration des six configurations reliant K_1 et K_2 .

Enfin, pour la plupart des matériaux magnétiques, il se trouve que $|K_1| \gg |K_2|$ et il est commun de faire la simplification suivante :

$$K_1 > 0 \Leftrightarrow [100] \text{ axe facile}, \quad K_1 < 0 \Leftrightarrow [111] \text{ axe facile}.$$

Pour clore cette section, il est nécessaire d'ajouter un peu de complexité⁶. On terminera donc en précisant que comme beaucoup de grandeurs en physique, les valeurs des constantes d'anisotropie dépendent de la température, et cela de manière furieusement non linéaire. On présente ici l'exemple de valeurs de K_1 et K_2 du nickel issues de l'article [TOI65], le même article dont est issue la courbe de couple 5.4 dans le plan (111) de l'échantillon de nickel.

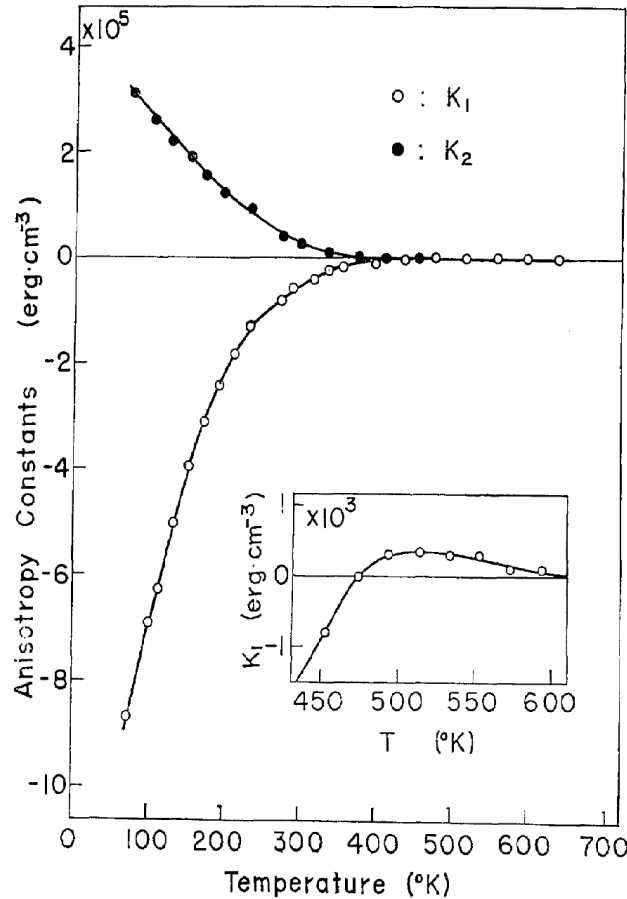


FIGURE 5.10 – Exemple de valeurs des constantes d'anisotropie K_1 et K_2 d'un disque monocristallin de nickel en fonction de la température [TOI65]. $10 \text{ erg}\cdot\text{cm}^3 = 1 \text{ J}\cdot\text{m}^{-3}$.

On relève effectivement la grande non linéarité des courbes, mais on observe notamment que les constantes d'anisotropie peuvent changer de signe, et donc modifier l'axe de facile aimantation. Sur l'exemple des courbes de la figure 5.10, à basse température, par exemple 220 K, on relève $K_1 \approx -2 \times 10^4 \text{ J}\cdot\text{m}^{-3}$ et $K_2 \approx 1 \times 10^4 \text{ J}\cdot\text{m}^{-3}$, ce qui correspond à la sixième configuration car $K_1 < 0$ et $K_1 < -\frac{4}{9}K_2$ où l'axe facile est [111] et l'axe difficile est [100]. A haute température, par exemple 500 K, on relève $K_1 > 0$ et $K_2 > 0$, ce qui correspond à la première configuration car $K_1 > 0$ et $K_1 > -\frac{4}{9}K_2$ où l'axe facile est [100] et l'axe difficile est [111].

6. En effet cette notion d'énergie d'anisotropie magnétocristalline étant tellement simple, on comprend pourquoi elle n'est pas détaillée dans les livres.

5.2.4 Le champ d'anisotropie

Le champ d'anisotropie est une grandeur caractéristique qui est liée aux constantes d'anisotropie, et qu'il est utile d'introduire pour de futures expérimentations. Comme l'énergie d'anisotropie est perçue comme étant une énergie de rappel de la polarisation magnétique sur l'axe de facile aimantation, il peut être intéressant de faire apparaître une constante de raideur. En effet, dans le cas d'un système comprenant un ressort, on établit que la force exercée par le ressort s'écrit (dans le cas linéaire) :

$$F = -k \times (x - x_0) \quad (5.23)$$

avec $\left\{ \begin{array}{l} F \text{ la force,} \\ k \text{ la constante de raideur,} \\ x_0 \text{ la longueur au repos,} \\ x - x_0 \text{ la variation de longueur.} \end{array} \right.$

Ceci amène à définir mathématiquement la constante de raideur :

$$k = - \left. \frac{\partial F}{\partial x} \right|_{x=x_0} \quad (5.24)$$

De manière analogue il est possible d'établir que le couple exercé par un ressort de torsion s'écrit (toujours dans le cas linéaire) :

$$\Gamma = -C \times (\theta - \theta_0) \quad (5.25)$$

ce qui amène à définir mathématiquement la constante de raideur :

$$C = - \left. \frac{\partial \Gamma}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_0} \quad (5.26)$$

Par ailleurs, dans le cas de la balance de torsion, le couple est relié à l'énergie d'anisotropie par la relation $\Gamma = -\frac{\partial U_K}{\partial \theta}$ ce qui permet d'établir l'expression de la constante de raideur :

$$C = \left. \frac{\partial^2 U_K}{\partial \theta^2} \right|_{\theta=\theta_0} \quad (5.27)$$

où θ désigne l'angle de rotation mesuré à partir de la position d'équilibre θ_0 , c'est-à-dire quand la polarisation magnétique est alignée selon un axe de facile aimantation. Cette constante de raideur peut être comparée à celle d'un objet magnétique (tel un domaine de Weiss) polarisé à saturation J_s plongé dans un champ magnétique d'intensité H et dont l'énergie volumique⁷ est donnée par la formule :

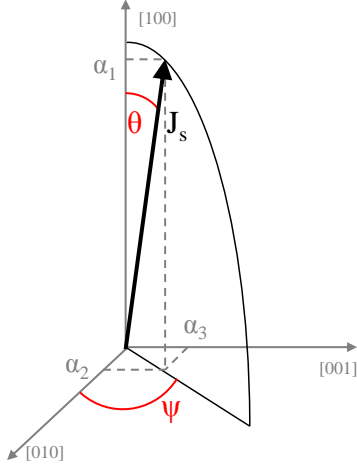
$$E = -H J_s \cos \theta \quad (5.28)$$

dans laquelle θ désigne l'angle entre H et J_s . Dans ce cas, $C = H J_s$. En reliant les deux expressions des constantes de raideur, on définit le champ d'anisotropie noté H^A par :

$$H^A = \left. \frac{1}{J_s} \frac{\partial^2 U_K}{\partial \theta^2} \right|_{\theta=\theta_0} \quad (5.29)$$

Il est possible d'expliciter la valeur du champ d'anisotropie. On se propose de faire le calcul pour les deux cas qui nous intéresseront par la suite, à savoir quand l'axe de facile aimantation est selon l'axe [100] et quand l'axe de facile aimantation est selon l'axe [111].

7. On parle alors d'énergie de Zeeman, en référence à Pieter Zeeman.



Premier cas, l'axe de facile aimantation est selon l'axe [100]. On rappelle que grâce aux symétries du cristal, l'ensemble des axes faciles sont selon la famille $\langle 100 \rangle$. On a toujours θ l'angle entre la polarisation et l'axe facile, ce qui se traduit ici $\theta_1 = \theta$. Pour traiter le problème, il est nécessaire de passer en coordonnées sphériques. De plus, sans excitation, la polarisation magnétique a tendance à s'aligner selon cet axe de facile aimantation. On a donc θ petit, ce qui permet d'écrire :

$$\begin{cases} \alpha_1 = \cos \theta \approx 1 - \frac{1}{2}\theta^2 \\ \alpha_2 = \sin \theta \cos \Psi \approx \theta \cos \Psi \\ \alpha_3 = \sin \theta \sin \Psi \approx \theta \sin \Psi \end{cases} \quad (5.30)$$

et il est possible d'écrire l'énergie d'anisotropie magnétocristalline en utilisant la forme simplifiée, qui est celle de l'équation 5.1 ou 5.19 :

$$\begin{aligned} U_K &= K_1 \left((1 - \frac{1}{2}\theta^2)^2 \theta^2 \cos^2(\Psi) + \theta^2 \cos^2(\Psi) \theta^2 \sin^2(\Psi) + \theta^2 \sin^2(\Psi) (1 - \frac{1}{2}\theta^2)^2 \right) \\ &\quad + K_2 \left((1 - \frac{1}{2}\theta^2)^2 \theta^2 \cos^2(\Psi) \theta^2 \sin^2(\Psi) \right) \\ &= K_1 \left((1 - \frac{1}{2}\theta^2)^2 \theta^2 + \theta^4 \cos^2(\Psi) \sin^2(\Psi) \right) + K_2 \left((1 - \frac{1}{2}\theta^2)^2 \theta^4 \cos^2(\Psi) \sin^2(\Psi) \right) \\ &\approx K_1 \theta^2 + K_2 \theta^4 \cos^2(\Psi) \sin^2(\Psi) \end{aligned} \quad (5.31)$$

On calcule alors la première dérivée par rapport à θ :

$$\frac{\partial U_K}{\partial \theta} = 2K_1 \theta + 4K_2 \theta^3 \cos^2(\Psi) \sin^2(\Psi) \quad (5.32)$$

Et il vient que la dérivée seconde est :

$$\frac{\partial^2 U_K}{\partial \theta^2} = 2K_1 + 12K_2 \theta^2 \cos^2(\Psi) \sin^2(\Psi) \quad (5.33)$$

On peut alors facilement calculer le champ d'anisotropie, noté $H_{[100]}^A$ pour ce cas, et en prenant comme angle de référence $\theta_0 = 0$. En effet, pour cette référence on a $\theta = 0$ et $\Psi = 0$, la polarisation \vec{J}_S est bien selon la direction [100]. On obtient donc :

$$\boxed{H_{[100]}^A = \frac{1}{J_s} \frac{\partial^2 U_K}{\partial \theta^2} \Big|_{\theta=\theta_0} = \frac{2K_1}{J_s}} \quad (5.34)$$

On note que ce champ d'anisotropie est dans ce cas précis indépendant de K_2 , comme peuvent l'être les courbes de couple relevées dans le plan (001).

Second cas, l'axe de facile aimantation est selon l'axe [111]. On rappelle que grâce aux symétries du cristal, l'ensemble des axes faciles sont selon la famille $\langle 111 \rangle$. Le problème est ici bien plus long à traiter notamment à causes des lourdeurs des calculs. En effet, pour mener à bien cette étude, il faut se ramener au cas précédent en effectuant un changement de variable par une rotation dans l'espace du repère, et ce afin de faire correspondre l'axe [100] du cas précédent à l'axe [111] du cas actuel. Il vient que les expressions des cosinus

directeurs ne sont pas triviales, et que l'expression de l'énergie d'anisotropie l'est encore moins. Après une quinzaine de pages de calculs, on arrive au résultat suivant⁸ :

$$H_{[111]}^A = \frac{1}{J_s} \left. \frac{\partial^2 U_K}{\partial \theta^2} \right|_{\theta=\theta_0} = -\frac{\frac{4}{3}K_1 + \frac{4}{9}K_2}{J_s} \quad (5.35)$$

5.3 L'idée de la compensation

L'idée de compenser la constante d'anisotropie est la suivante : si K_1 (et K_2) est vue comme la constante de raideur d'une force de rappel de la polarisation magnétique sur l'axe facile, il serait intéressant de diminuer (voire d'annuler) sa valeur. Ainsi, il n'y aurait plus d'axe facile ou difficile, et la polarisation prendrait aisément la direction de l'excitation magnétique, ce qui se traduirait par une augmentation flagrante de la perméabilité d'un matériau massif. En effet, dans la grande majorité des cas, la matière ne se présente pas sous forme de monocristaux, mais sous forme de polycristaux. Il est donc impossible d'aimanter un matériau magnétique polycristallin selon son axe facile, car les axes faciles de toutes les cristallites sont orientés dans des directions différentes⁹.

Une des plus anciennes publications date de 1937 [McK37], où l'auteur présente les constantes K_1 pour un diagramme ternaire.

8. Il reste des rares exceptions où on peut se permettre d'énoncer un résultat sans en donner la démonstration si celle-ci encombre la lecture. A la manière de Pierre de Fermat, on peut tout de même préciser : "Cujus rei demonstrationem mirabilem sane detexi. Hanc marginis exiguitas non caperet."

9. On peut citer ici l'exception qui est les tôles à grain orientés, où un traitement mécanique par laminage permet d'orienter les cristallites et ainsi de pouvoir exciter le matériau selon les axes faciles.

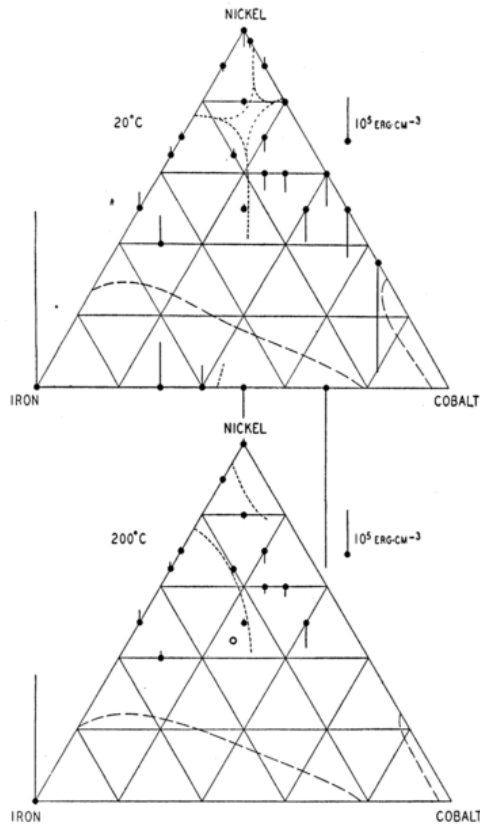


FIGURE 5.11 – Valeur des constantes K_1 pour des alliages métalliques de Fe-Co-Ni obtenus à partir de monocristaux [McK37]. $10^5 \text{ erg.cm}^{-3} = 1 \text{ J.m}^{-3}$.

Sur la figure 5.11, les lignes montantes ou descendantes au niveau des points indiquent une valeur positive ou négative de K_1 , proportionnellement à l'échelle à droite. Les lignes en gros pointillé indiquent un changement de phase cristallographique, et les lignes en petit pointillé montrent la frontière de changement de signe de la constante. On en conclut donc qu'il existe des compositions où K_1 s'annule.

Concernant les ferrites, il est possible de trouver des digrammes similaires. On peut citer ici l'excellent article de Keizo Ohta de 1963 [Oht63]. L'auteur trace des diagrammes ternaires pour des ferrites de Mn-Zn-Fe.

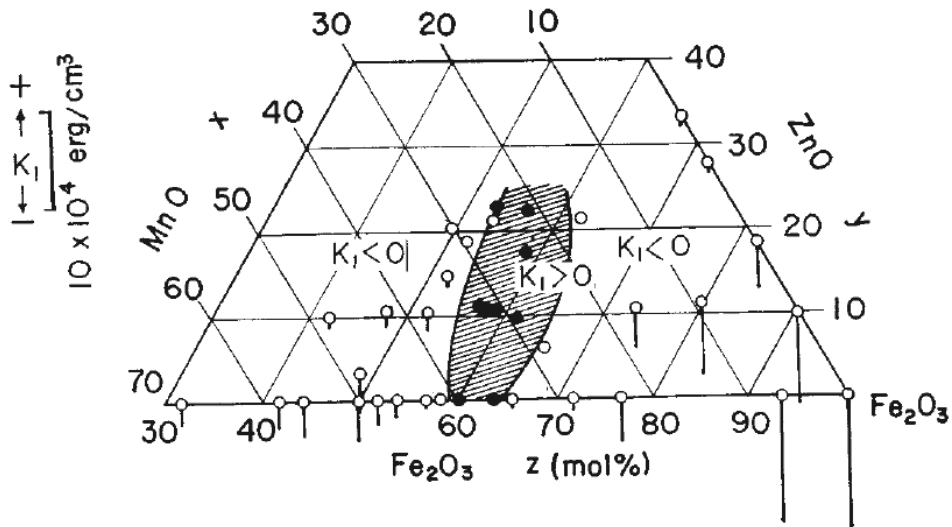


FIGURE 5.12 – Valeur des constantes K_1 pour des ferrites de Mn-Zn-Fe obtenus à partir de monocristaux à température ambiante [Oht63].

Sur la figure 5.12, l'auteur précise que les cercles blancs correspondent à une mesure de constante d'anisotropie positive et les cercles noirs à une mesure de constante négative. Il met ensuite en corrélation un second diagramme ternaire concernant cette fois-ci la perméabilité des ferrite Mn-Zn-Fe, en montrant que c'est bien pour $K_1 \approx 0$ que la perméabilité est la plus importante.

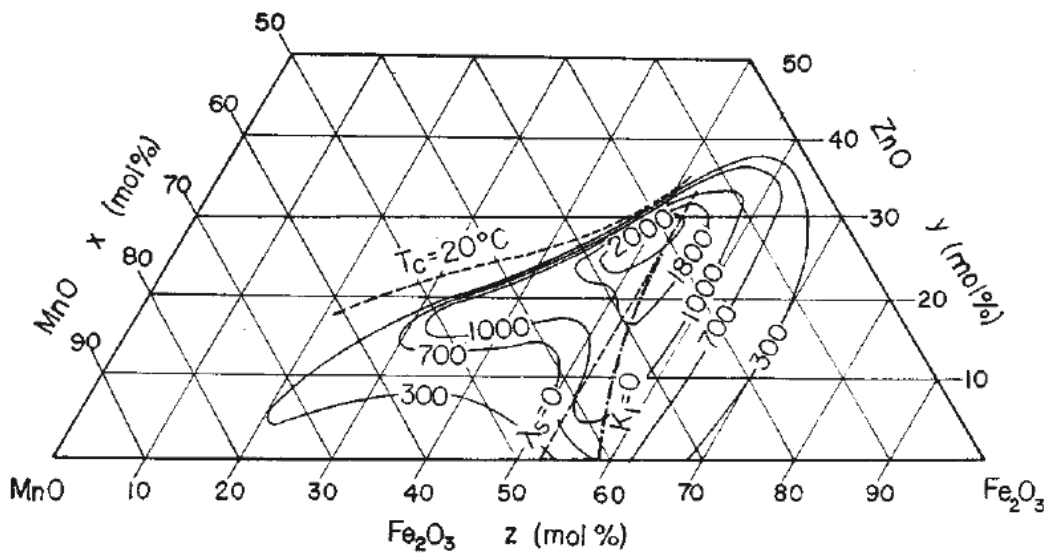


FIGURE 5.13 – Valeur des perméabilités pour des ferrites de Mn-Zn-Fe à température ambiante [Oht63].

Toujours dans cet article remarquable, l'auteur montre clairement qu'il est aussi possible d'annuler la constante d'anisotropie non pas par la composition, mais par la température. Pour la composition $Mn_{0,31}Zn_{0,11}Fe_{0,58}Fe_2O_4$, il trace successivement la valeur de K_1 en fonction de la température, puis la valeur de la perméabilité en fonction de la température.

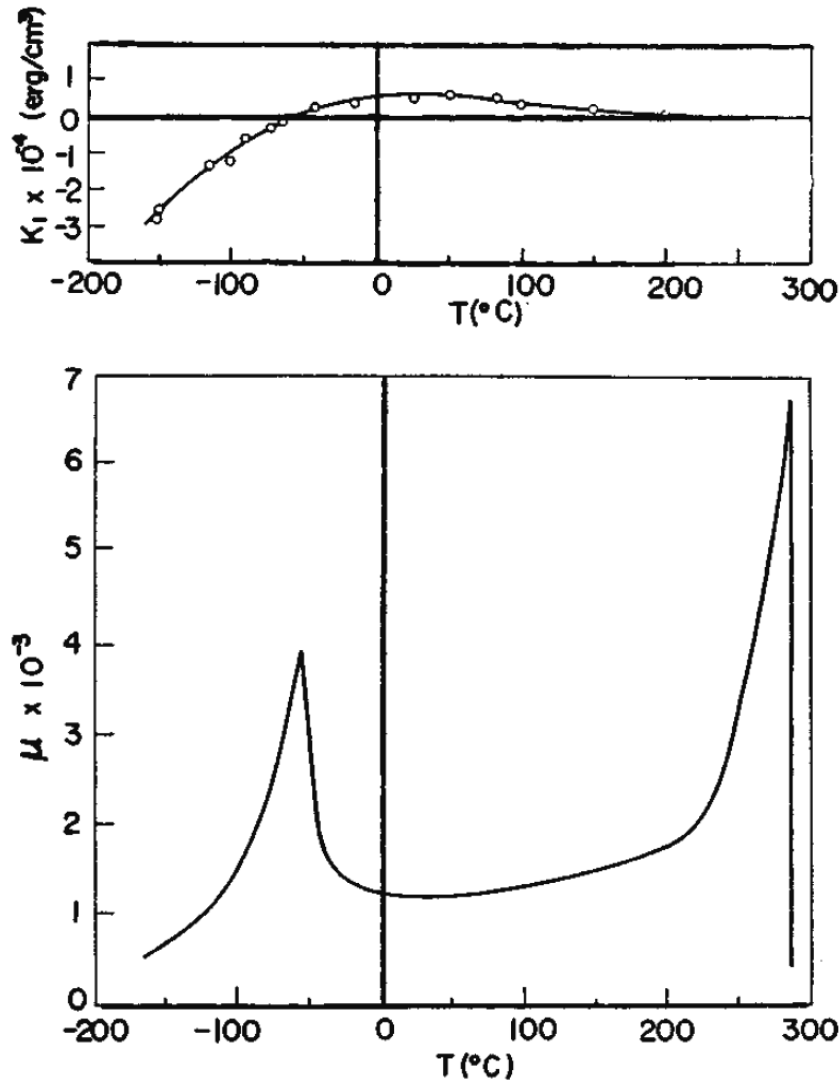


FIGURE 5.14 – Variations de K_1 et de la perméabilité en fonction de la température pour le ferrite $\text{Mn}_{0,31}\text{Zn}_{0,11}\text{Fe}_{0,58}\text{Fe}_2\text{O}_4$ [Oht63].

L'auteur met en évidence le fait qu'il y a un maximum de perméabilité¹⁰ exactement à la température où K_1 s'annule¹¹. Ceci ouvre un champ des possibles gigantesque ! Il est donc possible d'optimiser la composition chimique d'un ferrite afin d'obtenir un maximum de perméabilité pour une température de travail donnée. A l'inverse, il est aussi possible d'optimiser la composition chimique d'un ferrite afin d'obtenir une perméabilité quasi constante si on désire travailler sur une large gamme de température.

Vingt ans plus tard, Keizo Ohta (associé cette fois-ci à d'autres auteurs) poussera alors le vice à mesurer non seulement les constantes K_1 de ferrites Mn-Zn-Fe, mais aussi les constantes K_2 afin de minimiser l'effet d'une constante d'anisotropie magnétocristalline

10. Le maximum de la perméabilité se situe réellement au voisinage de la température de Curie, le pic correspondant à l'effet Hopkinson. Comme $\chi(T) \propto \frac{M_s^2(T)}{K_1(T)}$ et que $K_1(T)$ décroît plus rapidement que $M_s^2(T)$ avec la température, il vient que la perméabilité peut prendre des valeurs importantes. Cependant, cela n'est pas exploitable car l'aimantation à saturation devient très faible à l'approche de la température de Curie, donc même si le matériau est très perméable, il est très rapidement saturable.

11. Dans la littérature, certains auteurs parlent de température de transition de réorientation de spin, et l'expliquent par le fait que le spin passe d'une orientation cristallographique à une autre, ce qui est similaire à la notion d'axe facile et difficile aimantation.

effective [NHSO83]. Ils tracent alors les diagrammes ternaires suivant :

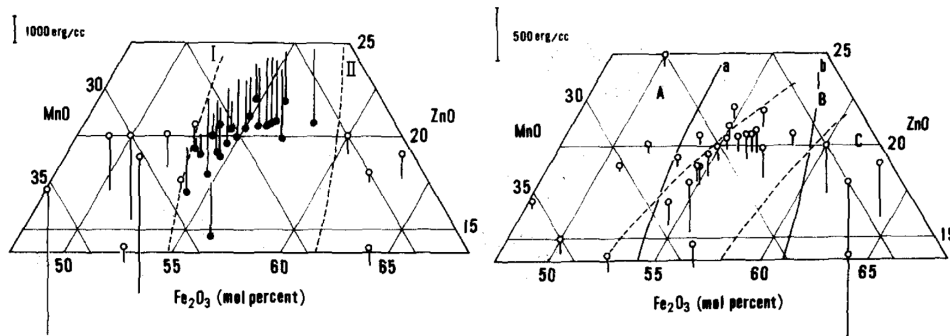


FIGURE 5.15 – Diagrammes ternaires de K_1 et de K_2 de ferrites Mn-Zn-Fe [NHSO83].

Sur le premier diagramme de la figure 5.15, les lignes en pointillé indiquent les compositions qui présente K_1 nul, et sur le deuxième diagramme, les lignes en trait plein indiquent les compositions où $K_1 + \frac{1}{9}K_2 = 0$, en rapport avec l'équation 5.22.

Cependant, les compositions chimiques de ces ferrites ne sont pas intéressantes pour les applications que nous visons, car elles présentent un certain taux de Fe^{2+} , et les ferrites sont conducteurs ce qui pose un problème en haute fréquence à cause des courants induits ($\rho \approx 1\Omega.m$). Par ailleurs, l'objectif est de synthétiser des ferrites par le procédé PECS (Pulsed Electric Current Sintering) en utilisant le protocole réalisé par Karim Zehani durant ses travaux de thèse. Les ferrites étudiés étaient de la famille Ni-Cu-Zn, ce qui est adapté pour des applications haute fréquence.

L'idée principale est donc de trouver une composition chimique de ferrite présentant une compensation de l'anisotropie. Pour cela, une première approche est de regarder les constantes d'anisotropie des ferrites simples et de réaliser un ferrite mixte de telle manière que l'anisotropie totale soit la somme des K_1 .

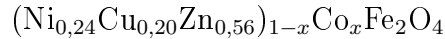
Par ailleurs, durant ses travaux de thèse, Anthony Lucas étudie l'influence du taux de substitution de cobalt dans les ferrites Ni-Cu-Zn.

TABLE 5.1 – Constantes d'anisotropie magnétocristalline K_1 de quelques ferrites simples à température ambiante issues de deux ouvrages.

Ferrite	K_1 ($J.m^{-3}$) [SW59]	K_1 ($J.m^{-3}$) [Cra95]
$MnFe_2O_4$	- 2 800	- 4 000
Fe_3O_4	- 11 000	- 13 000
$CoFe_2O_4$	180 000	200 000
$NiFe_2O_4$	- 6 200	- 6 900
$CuFe_2O_4$	- 6 000	- 6 000
$ZnFe_2O_4$	0	0
$Li_{0,5}Fe_{2,5}O_4$	-	- 8 300

Cette démarche est précisément celle adoptée par Anthony Lucas durant ses travaux de thèse [Luc10]. Afin d'être sûr d'avoir une compensation, il faut utiliser des ferrites simples possédant des constantes de signe différent. Il paraît alors judicieux d'introduire du ferrite de cobalt dans la composition. Anthony Lucas, puis Karim Zehani ont travaillé

sur la composition suivante¹² : $\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56}\text{Fe}_2\text{O}_4$. Afin de conserver le même rapport entre les éléments Ni, Cu, et Zn, Anthony Lucas introduit la composition suivante :



ce qui permet d'estimer¹³ dans un premier temps la constante d'anisotropie totale du ferrite (à température ambiante) :

$$K_1 = (0,24 \times -6200 + 0,20 \times -6000 + 0,56 \times 0) \times (1 - x) + 180000 \times x \quad (5.36)$$

et il vient que pour annuler cette constante, il faut un taux de cobalt $x = 0,0147$. On s'attendrait donc que pour un tel taux de cobalt, la perméabilité devrait être maximale. Cependant, il n'en est rien. Anthony Lucas a mesuré la perméabilité en fonction du taux de cobalt allant de $x = 0$ à $x = 0,049$ par pas de $0,07$, et il a trouvé que la perméabilité diminuait constamment avec l'augmentation du taux de cobalt¹⁴. Il émet alors l'hypothèse que la constante d'anisotropie du deuxième ordre ne doit plus être négligée, mais malheureusement cette hypothèse ne peut pas être validée/invalidée car aucune valeur de K_2 pour ces ferrites n'est trouvable dans la littérature.

Des travaux similaires ont été publiés par Byun en 1999 [BBHK99], où la composition chimique $(\text{Ni}_{0,20}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,60})_{1,02-x}\text{Co}_x\text{Fe}_{1,98}\text{O}_4$ a été étudiée. Les auteurs s'attendaient à observer un maximum de perméabilité pour $0,02 < x < 0,03$, mais ils ont mesuré que la perméabilité ne cessait de diminuer avec l'augmentation du taux de cobalt. Ils concluent en signalant que les variations de la perméabilité en fonction de la composition ne s'expliquent pas complètement par le modèle simple de l'addition des constantes d'anisotropie, et que d'autres facteurs doivent être pris en compte.

5.4 La mesure de la constante au SATIE

Dans le but de mieux comprendre les variations de la perméabilité en fonction du taux de cobalt dans les ferrites $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{1-x}\text{Co}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ fritté par le procédé PECS, nous avons souhaité mesurer les constantes d'anisotropie d'un tel matériau. Malheureusement, nous ne possédons ni balance de torsion, ni monocristaux. Il a fallu trouver une alternative.

5.4.1 La détection de point singulier

Nous nous sommes tournés vers des travaux d'Asti et Rinaldi, basés sur ce qu'ils appellent la Singular Point Detection. Leur première publication sur ce sujet date de 1972 [AR72], où ils mesurent le champ d'anisotropie d'un ferrite de baryum polycristallin, et ils arrivent ainsi à remonter à la valeur de la constante d'anisotropie. Afin d'expliquer cette mesure, il faut d'abord introduire la particule dite de Stoner et Wohlfarth.

12. Ils ont respectivement montré que cette composition présente peu de perte magnétique à haute fréquence et qu'il est possible de la fritter par le procédé PECS.

13. Cette estimation est très simpliste, car on suppose que l'anisotropie totale du ferrite est la somme des anisotropies des ferrites simples. Cette hypothèse est effectivement très forte, et pour s'en convaincre il suffit de s'apercevoir qu'un ferrite de Mn-Zn-Fe peut présenter une constante d'anisotropie positive alors que le ferrite de Mn, le ferrite de Zn, et le ferrite de Fe présentent tous une constante d'anisotropie négative.

14. Il met tout de même en évidence que l'apport de cobalt permet de diminuer considérablement les pertes magnétiques à hautes fréquences.

La particule de Stoner et Wohlfarth est une particule imaginaire qui a la particularité d'avoir une forme d'ellipsoïde de révolution et uniformément polarisée à saturation J_s , comme un domaine magnétique. Elle a été décrite par ces deux auteurs¹⁵ dans un article de 1948 [SW48]. Cette particule présente un cycle $J = f(H)$ différent selon qu'on l'excite et qu'on mesure la polarisation selon l'axe facile ou bien l'axe difficile.

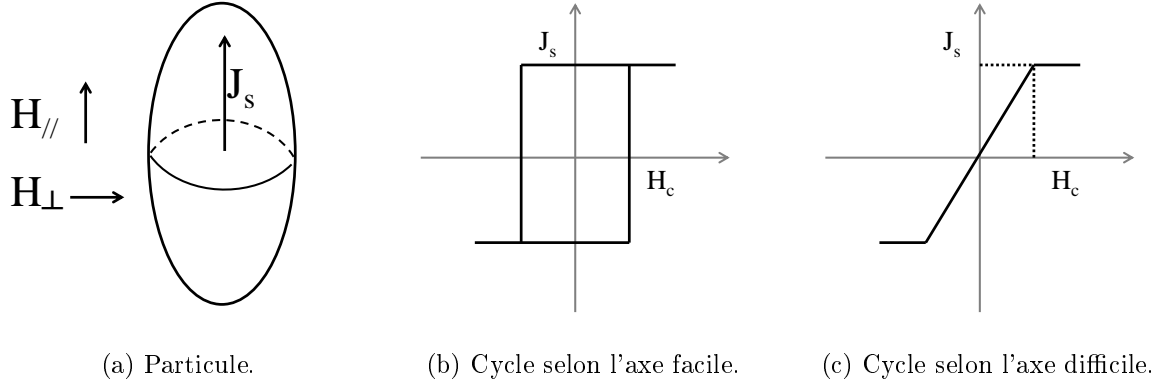


FIGURE 5.16 – Particule du modèle de Stoner et Wohlfarth avec des cycles correspondant aux axes facile et difficile, symbolisé respectivement par $H_{//}$ et H_{\perp} .

Sur la figure 5.16, les valeurs du champ H_c sont identiques sur les deux courbes. Il y a effectivement une concordance entre le champ coercitif qui est mis en évidence lorsque l'excitation et la mesure se font suivant l'axe facile d'une part, et le champ nécessaire pour atteindre la saturation lorsque l'excitation et la mesure se font suivant l'axe difficile d'autre part. Cette valeur de champ correspondant dans les deux cas à une singularité, il sera donc nommé $H_{singularité}$ par la suite. En effet, la notion de coercivité dépend rigoureusement de la direction de la polarisation et de la mesure, alors qu'on verra par la suite que la singularité ne dépend que de la nature du matériaux ; c'est la raison pour laquelle on abandonne le nom de H_c au profit de $H_{singularité}$.

Par ailleurs, cette particule présente une anisotropie uniaxiale, et il est possible d'écrire l'énergie d'anisotropie magnétocristalline de la manière suivante¹⁶ :

$$U_{Ku} = K_{1u} \sin^2(\theta) + K_{2u} \sin^4(\theta) + \dots \quad (5.37)$$

où K_{1u} et K_{2u} sont respectivement les première et deuxième constantes d'anisotropie magnétocristalline uniaxiale, et θ est l'angle entre la polarisation magnétique et l'axe de facile aimantation. Il est aussi possible de calculer le champ d'anisotropie, en posant $\theta_0 = 0$ ce qui revient à dire que l'axe facile est suivant l'axe caractéristique de l'anisotropie, ou encore que la valeur de K_{1u} est positive :

$$H^A = \frac{1}{J_s} \left. \frac{\partial^2 U_{Ku}}{\partial \theta^2} \right|_{\theta=\theta_0} = \frac{2K_{1u}}{J_s} \quad (5.38)$$

15. Un certain directeur de thèse, soucieux de la véricité de l'Histoire des Sciences, soutient le fait que ce modèle aurait été introduit par Louis Néel quelques années auparavant. Ce même directeur de thèse aime raconter que Louis Néel a établi ce modèle en 1942 mais n'a pas publié pour que ces recherches ne soient pas mises au crédit du régime de Vichy. Il publia ce résultat en 1947 dans une courte note, un an avant Stoner et Wohlfarth.

16. Il n'est pas ici question de reconstruire cette fonction comme nous avons pu le faire précédemment avec l'énergie d'anisotropie magnétocristalline dans le cas d'une symétrie cubique.

Il est maintenant intéressant de calculer le champ nécessaire pour faire basculer la polarisation magnétique d'une particule de Stoner et Wohlfarth de l'axe facile à l'axe difficile ; ce champ est noté H_c sur la figure 5.16, et correspond au champ coercitif d'une seule particule. Pour cela, on se propose de calculer l'énergie totale de la particule lorsqu'elle est soumise à une excitation magnétique selon son axe difficile.

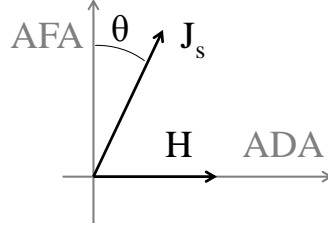


FIGURE 5.17 – Illustration de la polarisation et du champ exciteur pour le modèle d'une particule de Stoner et Wohlfarth.

L'énergie totale est la somme de l'énergie magnétocristalline¹⁷ et de l'énergie Zeeman :

$$U_{TOT} = U_{Ku} + U_Z = K_{1u} \sin^2(\theta) - J_s H \cos(\frac{\pi}{2} - \theta) \quad (5.39)$$

où il est possible de calculer l'angle θ pour lequel le système minimise son énergie en annulant la dérivée première :

$$\frac{\partial U_{TOT}}{\partial \theta} = 2K_{u1} \sin(\theta) \cos(\theta) - J_s H \cos(\theta) = 0 \quad (5.40)$$

Cette équation est vérifiée pour $\cos(\theta) = 0 \Leftrightarrow \theta = \pm \frac{\pi}{2}$, et si $\theta \neq \pm \frac{\pi}{2}$, il est possible de simplifier les cosinus et d'établir la relation :

$$J_s H = 2K_{u1} \sin(\theta) \quad (5.41)$$

On note bien que pour aligner la polarisation sur l'axe difficile, il faut que $\theta \rightarrow \frac{\pi}{2}$, ce qui permet de calculer le champ de singularité H_c d'une particule¹⁸ :

$$\boxed{H_{singularité} = \frac{2K_{u1}}{J_s}} \quad (5.42)$$

Il est intéressant de comparer cette valeur de champ coercitif à celle du champ d'anisotropie, en s'apercevant qu'elles sont égales.

$$\boxed{H_{singularité} = H^A = \frac{2K_{u1}}{J_s}} \quad (5.43)$$

Cela signifie que pour une particule magnétique ayant une symétrie uniaxiale, le champ d'anisotropie est le champ nécessaire pour orienter la polarisation de l'axe facile sur l'axe

17. On se limite ici au premier ordre, car dans la plupart des cas, on a expérimentalement $K_{1u} \sin^2(\theta) \gg +K_{2u} \sin^4(\theta)$

18. Il est aussi possible de vérifier que la susceptibilité est constante en écrivant : $J = \mu_0 \chi H \Leftrightarrow J_s \sin(\theta) = \mu_0 \chi H \Leftrightarrow J_s \frac{J_s H}{2K_{u1}} = \mu_0 \chi H \Leftrightarrow \chi = \frac{J_s^2}{2\mu_0 K_{u1}}$

difficile. Cette propriété est très intéressante car il est possible de mesurer le champ de singularité. Pour le cas d'une seule particule de Stoner et Wohlfarth, il suffit de relever la polarisation dans l'axe difficile, et de la dériver deux fois par rapport au champ. On s'aperçoit alors que cette dérivée deuxième présente une singularité pour un champ égale au champ coercitif.

C'est exactement cette propriété qui est exploité dans les publications d'Asti et Rinaldi [AR72] [AR74]. Ils font l'approximation qu'un échantillon polycristallin de ferrite de baryum est constitué d'un ensemble de particules de Stoner et Wohlfarth. Ils obtiennent le cycle d'hystérésis suivant :

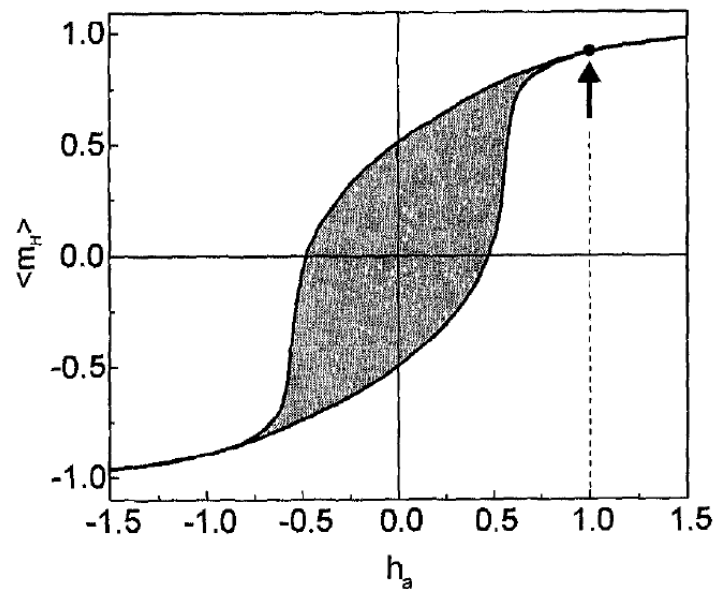


FIGURE 5.18 – Cycle d'hystérésis pour un assemblage isotrope de particules présentant une même anisotropie uniaxiale [Ber98].

Sur la figure 5.18, la flèche indique un point particulier. Bien que l'enveloppe du cycle d'hystérésis présente une courbe douce, il existe une singularité qui apparaît sur la dérivée deuxième. Même si la distribution de l'orientation des particules est isotrope, ce point peut montrer la particularité des particules qui sont orthogonales à l'axe d'excitation. En effet, ce sont ces particules dont on souhaite mesurer l'effet, car elles permettent d'identifier le champ coercitif d'une particule isolée, et donc le champ de singularité. Pour mettre en valeur cet effet, il faut suivre la même procédure que pour le cas d'une seule particule, à savoir dériver deux fois la polarisation par rapport au champ.

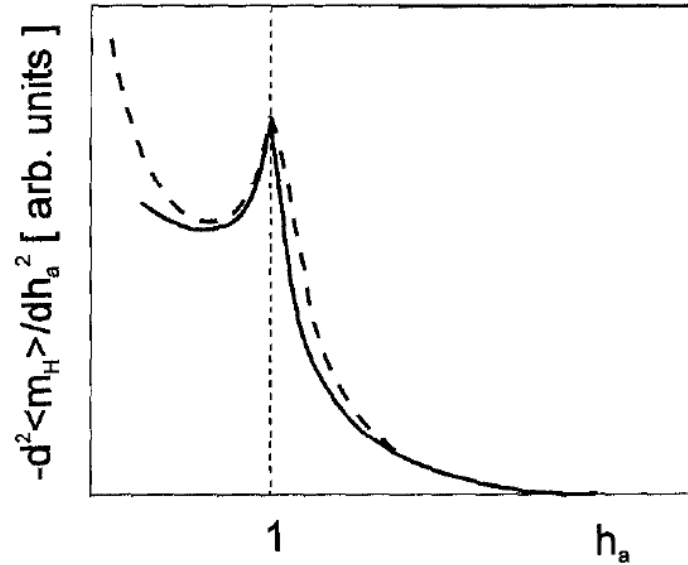


FIGURE 5.19 – Singularité de la dérivée seconde. La courbe en pointillée est la prédiction du modèle théorique, la courbe en trait plein est obtenue à partir de mesures sur un ferrite de baryum [Ber98].

La singularité présente sur la courbe permet donc d’identifier le champ d’anisotropie H^A et donc de remonter à la constante d’anisotropie magnétocristalline K_{1u} . Les auteurs qui ont publié la méthode de la détection de point singulier affirment qu’il est possible d’agir de la sorte pour une symétrie cubique. Asti complètera même cette théorie en écrivant régulièrement des articles avec différents auteurs : en 1985 [AB85], en 1993 [ABC93], en 1994 [Ast94], et en 2005 [ASG05]. Cependant, on peut noter le manque de relevés expérimentaux dans ces publications (du moins pour les polycristaux à structure cubique¹⁹), ce qui laisse un doute sur la pertinence de cette méthode.

On se propose donc de vérifier le bon fonctionnement de cette méthode de détection de point singulier. Deux questions se posent ici :

- Le point singulier est-il détectable ?
- Le champ du point singulier correspond-il au champ d’anisotropie dans le cas cubique ?

Pour cela, nous avons fait l’acquisition de cycle d’hystérésis de plusieurs échantillons à l’aide d’un VSM²⁰ Lakeshore de la série des 7400. Les échantillons polycristallins mesurés sont :

- un ferrite de baryum sous forme de poudre,
- une sphère de nickel,
- une sphère de ferrite de cobalt.

Le ferrite de baryum est utilisé ici pour vérifier la présence du pic à détecter sur la deuxième dérivée. Il se trouve sous forme de poudre, ce qui permet de s’assurer que les particules sont orientées de manière isotrope. En revanche, il est impossible d’appliquer

19. L’article d’Asti et Rinaldi de 1974 est cité environ 250 fois sur le site internet du journal, et le recensement indique que l’article est cité concernant des matériaux durs plutôt que des doux.

20. VSM : Vibrating Sample Magnetometer, traduit en français par Magnétomètre à Échantillon Vibrant.

une correction liée au champ démagnétisant. On trace successivement le cycle d'hystérésis complet, puis la première dérivée, puis la deuxième dérivée.

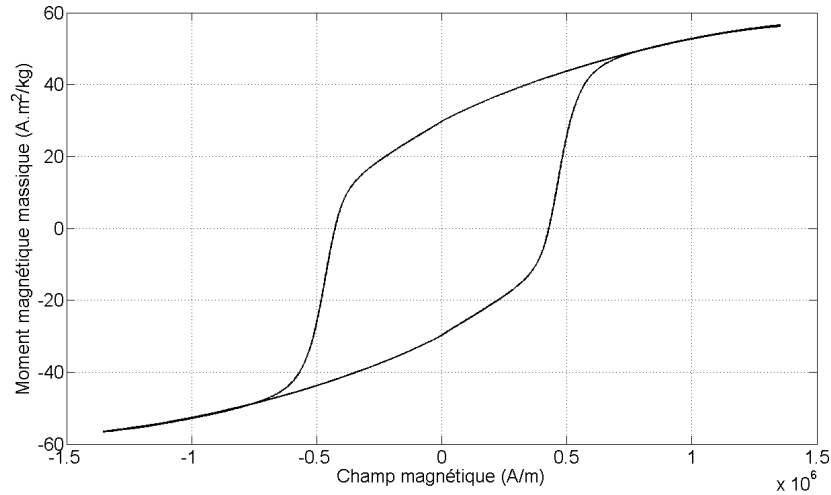


FIGURE 5.20 – Cycle d'hystérésis du moment magnétique massique obtenu sur un échantillon de poudre de ferrite de baryum. Temps d'acquisition : 10 heures. Nombre de points : 3401.

Nous avons volontairement fait une acquisition sur un temps très long car nous avons choisi d'avoir une constante d'intégration pour chaque point de mesure la plus grande possible. Ce choix est justifié dans le but de minimiser le bruit de mesure, afin qu'il ne perturbe pas les dérivées. Au vu de la courbe, et en comparaison avec celle de la figure 5.18, le point singulier devrait se trouver dans la queue du cycle, donc au-delà de $750\,000\text{ A.m}^{-1}$.

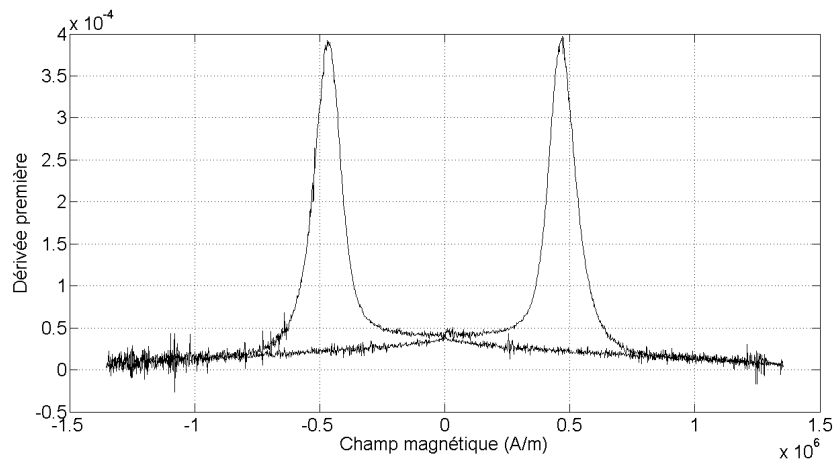


FIGURE 5.21 – Première dérivée du cycle d'un échantillon de poudre de ferrite de baryum.

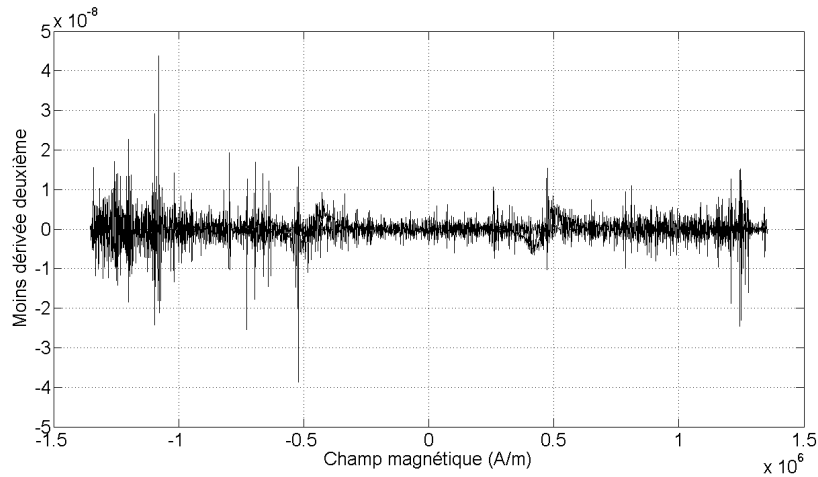


FIGURE 5.22 – Opposé de la deuxième dérivée du cycle d’un échantillon de poudre de ferrite de baryum.

Malgré les précautions prises quant à la mesure, les dérivées numériques amplifient suffisamment le bruit pour masquer le signal. On tente alors d’utiliser un des filtres disponibles dans Matlab pour obtenir le résultat suivant :

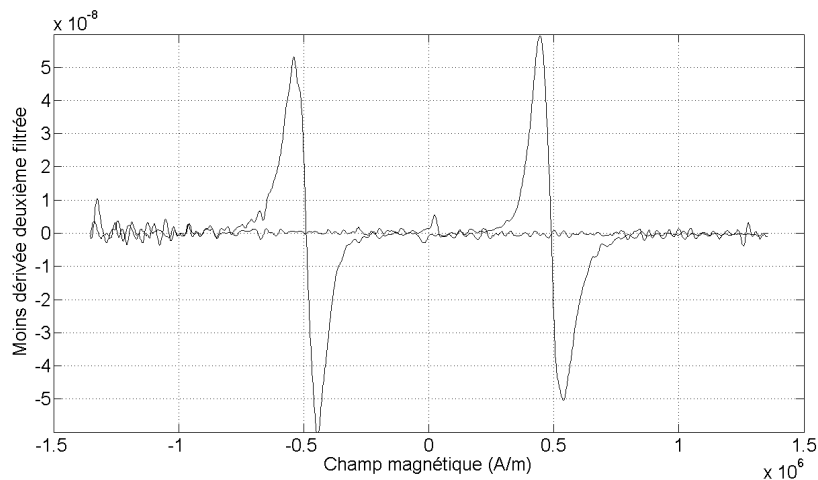


FIGURE 5.23 – Opposé de la deuxième dérivée filtrée du cycle.

Les deux pics présents sur la courbe ne sont en rien les singularités recherchées. Ces deux pics situés autour de $\pm 500\,000\text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$ sont l’image des grandes variations du cycle d’hystérésis. La singularité recherchée se trouve au-delà de $750\,000\text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$, et n’est pas présente sur les courbes des deuxièmes dérivées.

On conclut que soit la singularité n’existe pas, mais cela remet en cause l’ensemble des publications de Asti qui sont suffisamment citées pour estimer qu’elles ne sont pas complètement fausses, ou que soit les dérivées numériques ne sont pas adaptées pour cette mesure et qu’il serait plus judicieux de dériver analogiquement. Malheureusement, il ne nous est pas possible de réaliser facilement cette mesure. Une autre possibilité concernant l’absence de singularité est que le champ appliqué n’est pas suffisamment important pour pouvoir atteindre cette singularité ; il faudrait alors un électroaimant présentant une force magnétomotrice (en ampère-tour) plus grande afin d’obtenir des champs magnétiques plus intenses.

Afin d'avoir des éléments de comparaison, il est nécessaire de réitérer l'expérience avec les autres échantillons.

Le nickel est un matériau magnétique qui a son axe de facile aimantation selon la direction [111]. L'échantillon est polycristallin et sphérique, ce qui présente l'avantage d'avoir un coefficient démagnétisant valant $\frac{1}{3}$. On trace successivement le cycle d'hystérésis complet puis la deuxième dérivée dans le premier quadrant. Volontairement, nous n'appliquons pas la correction due au champ démagnétisant pour éviter d'introduire du bruit numérique dû aux calculs.

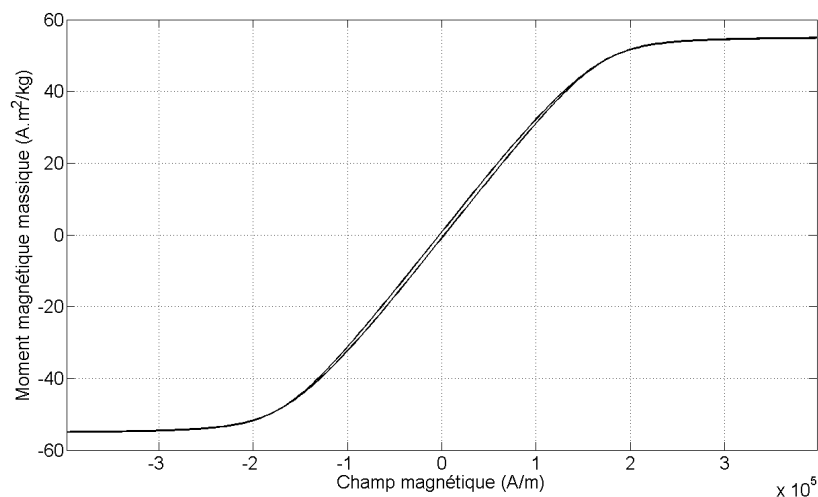


FIGURE 5.24 – Cycle d'hystérésis du moment magnétique massique obtenu sur une sphère de nickel.

D'après le cycle d'hystérésis de la figure 5.24, on s'attend à voir la singularité au-delà de $150\ 000\ \text{A.m}^{-1}$.

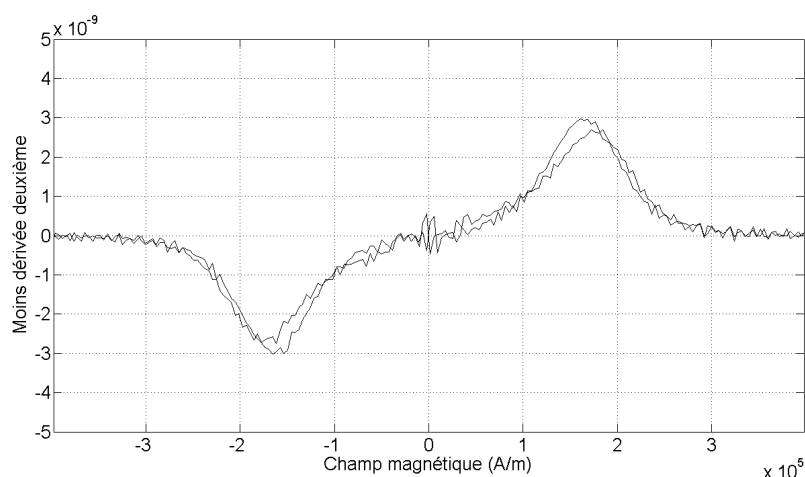


FIGURE 5.25 – Opposé de la deuxième dérivée du cycle d'une sphère de nickel.

Ici aussi, les dérivées successives ont amplifié le bruit de mesure, et il n'est possible d'identifier clairement que quatre pics (qui ont plutôt l'allure de gaussienne que de raie). Mais effectivement, on localise un pic vers $\pm 160\ 000\ \text{A.m}^{-1}$, ce qui laisse penser que c'est

la singularité que l'on recherche. Cependant, l'allure de cette dérivée deuxième n'est pas exactement celle présentée par Asti sur la figure 5.19 : notre mesure possède un pic²¹ et les valeurs de la dérivée deuxième tendent à s'annuler de part et d'autre de ce pic, alors que sur la mesure de Asti, il y a pic qui correspond bien à la singularité, mais les valeurs de la dérivée deuxième ne sont pas nulles pour un champ plus faible que celui de la singularité.

Il persiste donc un doute quant à la pertinence de cette mesure.

La sphère de ferrite de cobalt est intéressante car il ne faut pas perdre de vue que l'objectif est de mesurer les constantes d'anisotropie pour des ferrite. L'axe de facile aimantation est selon la direction [100].

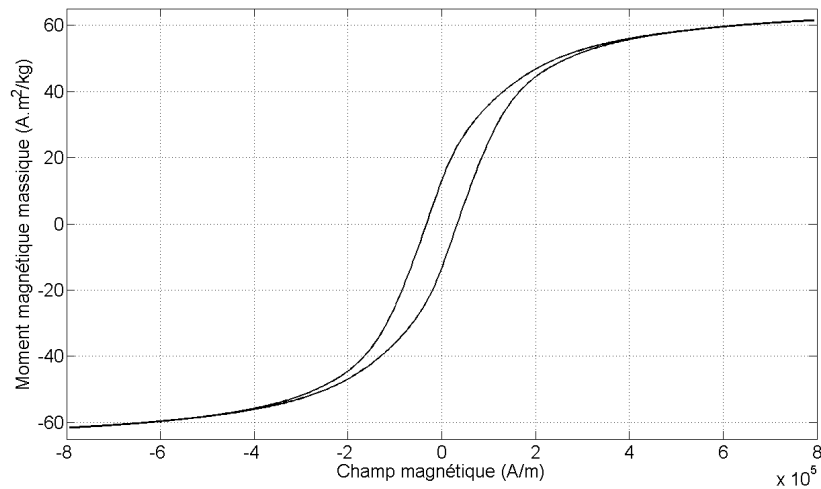


FIGURE 5.26 – Cycle d'hystérésis du moment magnétique massique obtenu sur une sphère de ferrite de cobalt.

Cette mesure est intéressante dans le sens où le cycle d'hystérésis montre que le ferrite de cobalt n'est ni un matériau magnétique dur, ni un matériau magnétique doux, comme pouvaient l'être respectivement le ferrite de baryum et le nickel. Il se pourrait donc que le mesure nous éclaire un peu plus sur la pertinence de la méthode de détection de point singulier. Par ailleurs, on s'attend à ce que la singularité apparaisse au-delà de $300\,000\text{ A.m}^{-1}$.

21. Il y a en réalité quatre pics, mais qui sont dus au parcours du cycle en entier : un premier pour un champ et un moment positifs sur la branche descendante, un deuxième pour un champ et un moment négatifs sur la branche descendante, un troisième pour un champ et un moment négatifs sur la branche montante, et enfin un quatrième pour un champ et un moment positifs sur la branche montante. Quant on affirme qu'il n'y a qu'un seul pic, c'est qu'on évoque par exemple celui qui est présent pour un champ et un moment positifs sur la branche descendante.

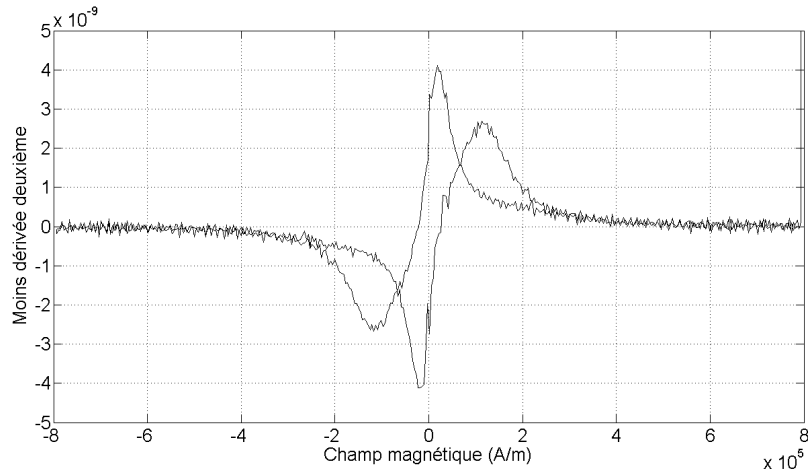


FIGURE 5.27 – Opposé de la deuxième dérivée du cycle d'une sphère de ferrite de cobalt.

Comme il n'est ni dur ni doux, on retrouve dans la dérivée deuxième des éléments des dérivées du ferrite de baryum et du nickel. Malgré le bruit de mesure qui est toujours amplifié, on reconnaît quatre pics. Que l'on soit sur la branche montante ou descendante, les pics ne se localisent pas pour une même valeur de champ magnétique, ce qui est dû à l'hystérésis du matériau. Par ailleurs, les pics se situent pour une valeur de champ magnétique inférieure à $300\,000\text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$, ce qui signifie qu'ils ne représentent pas la singularité attendue.

Pour conclure sur cette méthode, nous pouvons dire que la détection de point singulier ne se prête pas aux mesures réalisées par le magnétomètre à échantillon vibrant, notamment à cause des dérivées numériques qui amplifient le bruit haute fréquence. Des pics sont tout de même visibles sur les trois échantillons, mais ils ne correspondent pas à la singularité recherchée ni pour le matériau dur de ferrite de baryum ni pour le matériau "ni dur ni doux" du ferrite de cobalt. On en déduit que les pics ne correspondent pas non plus à la singularité pour le matériaux doux de nickel.

Cependant, les valeurs de constantes d'anisotropie K_1 et K_2 du nickel sont connues. Afin de persévérer encore un peu, on se propose alors en dernier recours de faire une simulation numérique pour s'affranchir des inconvénients de la mesure. Pour cela, à l'aide de Matlab, on calcule la polarisation d'un échantillon fictif polycristallin qui possède donc plusieurs cristallites qui sont orientées de manière isotrope par rapport à l'axe d'excitation magnétique. Cette polarisation est calculée à partir de la recherche du minimum d'énergie totale de chaque cristallite, qui est la somme de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline et de l'énergie de Zeeman : $U_{TOT} = U_K + U_Z$.

Les valeurs utilisées sont : $J_s = 0,619\text{ T}$, $K_1 = -5700\text{ J}\cdot\text{m}^{-3}$, $K_2 = -2300\text{ J}\cdot\text{m}^{-3}$. L'état initial correspond à un fort champ appliqué afin d'avoir l'état saturé sur l'axe d'excitation, puis à chaque itération, le champ appliqué diminue, ce qui signifie que la polarisation de chaque cristallite se réoriente vers les axes de facile aimantation, et on calcule la projection de la polarisation moyenne sur l'axe. On obtient alors la courbe de simulation suivante :

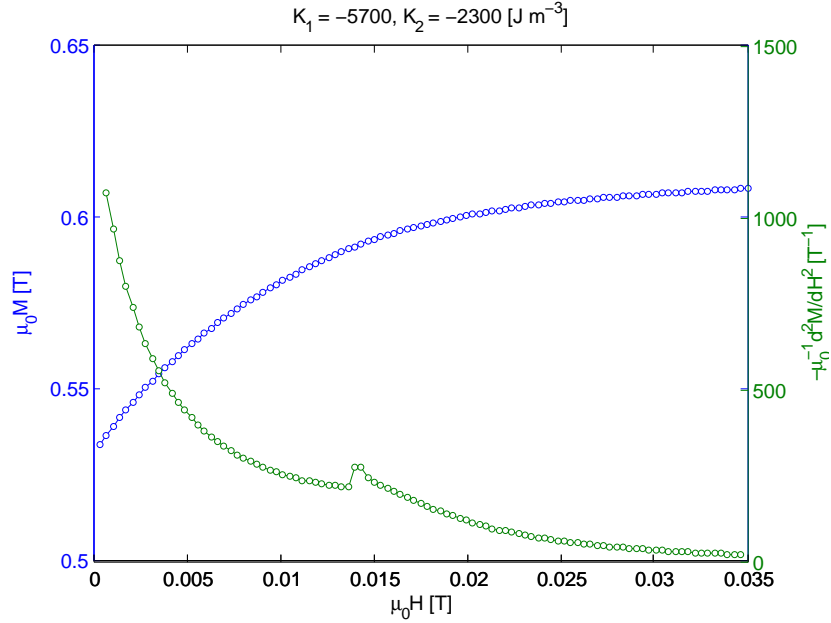


FIGURE 5.28 – Simulation de la polarisation d’un échantillon polycristallin de nickel, et calcul de l’opposée de la dérivée deuxième. La simulation est itérative, et le point de départ est le point correspondant à la saturation. La simulation permet donc de tracer la courbe de désaimantation.

Miraculeusement, on observe un pic sur la dérivée deuxième (40^{ème} point en partant de la gauche), et qui présente une allure similaire à celui qui est présenté sur la figure 5.19 par Asti : cette dérivée a tendance à s’annuler pour des champs plus grand, et les valeurs augmente lorsque le champ est plus faible. On note que la singularité intervient pour un champ $\mu_0 H_{singularité} \approx 14$ mT, équivalant à $H_{singularité} \approx 11\ 000$ A.m⁻¹. Cette valeur est à comparer avec la valeur théorique : $H^A = -\frac{\frac{4}{3}K_1 + \frac{4}{9}K_2}{J_s} \approx 14\ 000$ A.m⁻¹.

La grande question est donc : est-ce que le $H_{singularité}$ correspond au champ d’anisotropie H^A ? La différence entre les valeurs laisse penser qu’il n’y a finalement pas de lien, mais ces deux valeurs sont du même ordre de grandeur, et la simulation comprend des simplifications qui peuvent amener à des approximations trop importantes. Il manque malheureusement trop d’éléments pour pouvoir répondre avec assurance à cette question. Les valeurs numériques obtenues laissent penser que $H_{singularité} \approx -\frac{2K_1 + K_2}{2J_s}$, mais ce n’est qu’une intuition.

Néanmoins, il est possible de comparer cette simulation avec la mesure faite sur l’échantillon de nickel. Il faut cependant prendre en compte le champ démagnétisant. Pour cela, à partir des résultats de simulation, nous avons ajouter un champ démagnétisant, de telle sorte à avoir la courbe de la polarisation non plus en fonction d’un champ magnétique interne au matériau, mais d’un champ magnétique appliqué. On obtient le résultat suivant :

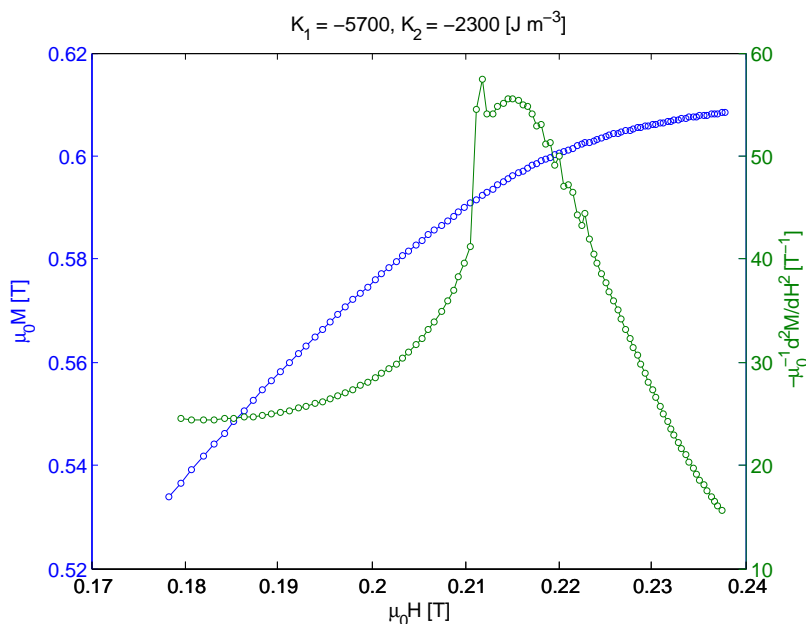


FIGURE 5.29 – Simulation de la polarisation d’un échantillon polycristallin de nickel en ajoutant un champ démagnétisant, et calcul de l’opposée de la dérivée deuxième.

En comparant la polarisation des figures 5.28 et 5.29 on peut voir l’effet de l’ajout de ce champ démagnétisant sur le pas du champ : alors que le pas de champ est régulier sur la figure 5.28, il est dilaté pour les faibles champs et comprimé pour les forts champs sur la figure 5.28. Par la suite, il est nécessaire d’examiner ce que devient la singularité de la dérivée deuxième. En effet, la présence de champ démagnétisant modifie quelque peu l’allure de la dérivée deuxième. On remarque que la singularité est toujours présente (40^{ème} point en partant de la gauche), et qu’il s’est ajouté un second pic plus large centré sur un champ $\mu_0 H \approx 0,215$ mT, équivalent à $H \approx 170\,000$ A.m⁻¹. Ce second pic semble correspondre à celui qui est présent lors du calcul de la deuxième dérivée du moment magnétique du nickel mesuré avec le magnétomètre, voir figure 5.25. Si cette correspondance s’avère exacte, il faudrait chercher le pic de la singularité vers la gauche du large pic ; or, pour une raison qui nous échappe, il n’apparaît pas sur le calcul de la deuxième dérivée de la figure 5.25. On peut juste supposer que le pic dû à la singularité est masqué par le bruit de mesure.

Nous avons aussi essayé d’opérer le processus inverse, c’est-à-dire de calculer la dérivée deuxième sur un cycle d’hystérésis sur lequel une correction de champ démagnétisant est réalisée. Malheureusement, la correction a tendance à comprimer l’axe du champ magnétique, ce qui amplifie d’autant plus le bruit. Les courbes obtenues sont alors peu lisibles.

Par la suite, il serait intéressant de faire cette simulation avec les autres échantillons, mais il n’est pas possible de faire cette comparaison entre la poudre de ferrite de baryum et la simulation car nous ne connaissons pas le coefficient démagnétisant de la poudre. Il ne nous est pas non plus possible de faire cette comparaison avec le ferrite de cobalt car les valeurs des constantes d’anisotropie K_1 et K_2 ne sont pas connus avec précision.

En conclusion de cette méthode de détection de point singulier, nous pouvons affirmer que le bruit de mesure vient considérablement perturber les résultats car il est amplifié par les dérivées numériques, et qu’il serait plus judicieux de réaliser des dérivées analogiques.

De plus seule la simulation fait apparaître clairement une singularité ressemblant à celle qui est présentée théoriquement par Asti et Rinaldi dans leur article [AR74]. Un doute plane toujours sur le fait que la singularité correspond au champ d'anisotropie H^A car les valeurs de $H_{singularité}$ et de H^A diffèrent légèrement. Par ailleurs, la simulation montre que le champ démagnétisant influe sur l'allure de la dérivée deuxième, et que la singularité est accentuée lorsqu'il y a une correction de champ démagnétisant.

Quoi qu'il en soit, ce n'est pas avec des mesures réalisées au magnétomètre, puis de dériver numériquement, qu'il est possible d'identifier correctement le champ d'anisotropie H^A . Si l'on souhaite persévérer dans la quête du champ d'anisotropie, pour ensuite retrouver les constantes d'anisotropie, il est nécessaire de passer par un autre chemin. C'est précisément ce qui est présenté dans la suite, où on s'essaye à mesurer l'amplitude du deuxième harmonique de la tension induite par les échantillons lorsqu'ils sont soumis à des champs magnétiques comprenant une composante statique et une composante alternative.

5.4.2 La mesure du deuxième harmonique

Une autre manière de détecter le point singulier est d'utiliser la mesure du deuxième harmonique. A l'image de la détection de point singulier, cette méthode permet théoriquement de détecter les singularités d'une courbe de polarisation. La différence est la suivante : on ne dérive pas la courbe de polarisation, mais on cherche à détecter la présence des harmoniques dans la polarisation lorsque l'échantillon est soumis à un champ magnétique variable. Un article de Garcia-Arribas et Barandarian de 1992 décrit précisément la mesure [GABH92], mais il convient d'en expliquer le principe.

A titre d'illustration, on suppose un échantillon polycristallin constitué de particules de Stoner et Wohlfarth qui ont leur axe de facile aimantation réparti de manière isotrope. Lorsqu'on applique à ce matériau un champ magnétique constitué d'une composante continue et d'une composante sinusoïdalement alternative, certaines particules voient ce champ appliqué selon leur axe de difficile aimantation. La composante continue du champ sert à polariser le matériau, tandis que la composante alternative sert à exciter le matériau autour du point de polarisation (on se trouve en régime petit signal). Pour les particules qui ont leur axe de facile aimantation perpendiculaire au champ magnétique d'excitation, trois cas se présentent en fonction du point de polarisation.

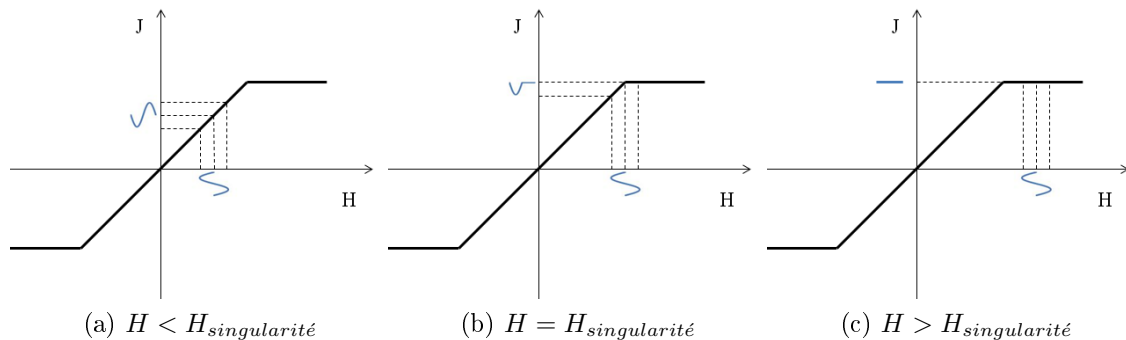


FIGURE 5.30 – Forme de la polarisation en fonction du point de polarisation.

On rappelle que $H_{singularité}$ correspond au champ coercitif H_c d'une particule de Stoner et Wohlfarth, et que cette valeur est différente du champ coercitif du matériau massif.

De la figure 5.30, on en déduit que si on applique un champ alternatif sinusoïdal autour d'un point de polarisation plus faible que $H_{singularité}$, une bobine de mesure placée autour de l'échantillon peut fournir une tension induite de type $e = -\frac{d\Phi}{dt}$ qui est elle aussi sinusoïdale. De même, si le point de polarisation est supérieur à $H_{singularité}$, la tension induite dans la bobine de mesure est nulle. En revanche, si le champ de polarisation est égal au champ coercitif de la particule $H_{singularité}$, alors la tension mesurée par la bobine est dissymétrique. Cette tension est périodique, donc décomposable en série de Fourier, et l'amplitude du deuxième harmonique est maximale lorsque $H_{singularité}$.

Un banc de mesure a donc été mis en place. Pour cela, il a fallu :

- un électroaimant associé à une alimentation 100 A pour créer le champ continu permettant de polariser le matériau ($H_{max} \approx 800000 \text{ A.m}^{-1}$),
- un générateur basse fréquence associé à un amplificateur ainsi que des bobines de Helmholtz pour créer le champ alternatif; les bobines ont été dimensionnées afin d'avoir une amplitude crête à crête du champ de 1 mT à la fréquence de 1 kHz,
- un amplificateur à détection synchrone (lock-in amplifier) relié à la bobine de mesure, et qui permet de mesurer l'amplitude du deuxième harmonique de la tension induite,
- un ordinateur permettant le pilotage de l'acquisition ainsi que l'enregistrement des mesures.

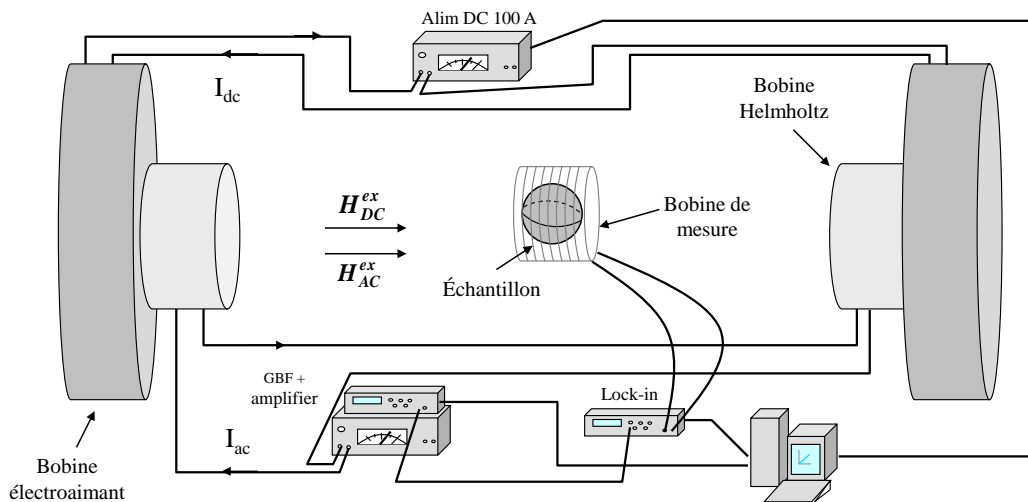


FIGURE 5.31 – Schéma du banc de mesure.

Dans un premier temps, nous avons réalisé une mesure du dispositif sans échantillon afin de visualiser la réponse lié au montage uniquement.

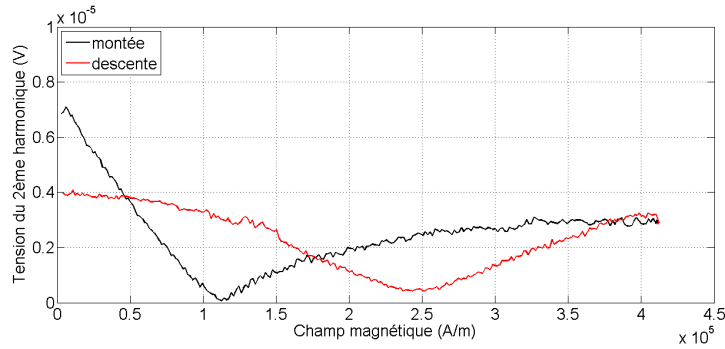


FIGURE 5.32 – Mesure de la tension du deuxième harmonique sans échantillon.

Dans un second temps, nous avons réalisé des mesures pour les échantillons suivants :

- un hexaferrite de type W qui a la particularité d'être monocristallin,
- une sphère de nickel,
- une sphère de ferrite de cobalt.

Le monocristal d'hexaferrite permet de vérifier le bon fonctionnement du banc de mesure. Il présente une anisotropie de symétrie uniaxiale, ce qui correspond exactement au cas théorique. L'échantillon est placé de manière à ce que l'excitation et la mesure soient selon l'axe de difficile aimantation. Cependant, sa forme complexe ne permet pas de connaître le coefficient démagnétisant, et il est difficile d'appliquer une correction précise liée au champ démagnétisant.

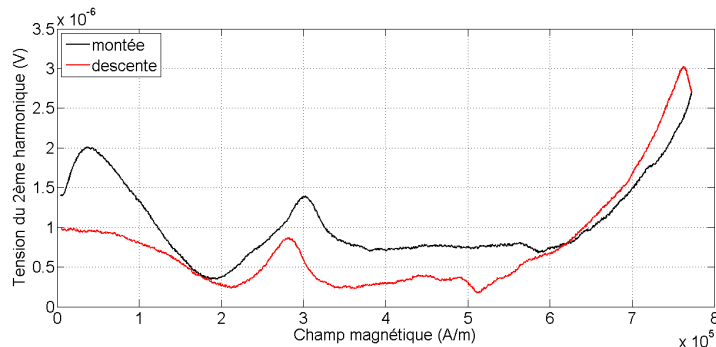


FIGURE 5.33 – Mesure de la tension du deuxième harmonique pour un hexaferrite de type W monocristallin.

Sur la figure 5.33, on observe trois pics. Le premier qui est à faible champ est dû à l'électroaimant car il se retrouve dans la mesure sans échantillon. Le second pic se présente pour un champ d'environ $300\,000\text{ A.m}^{-1}$. On note que la valeur n'est pas strictement identique pour un champ montant ou un champ descendant, ce qui est certainement dû à un hystérésis soit de l'échantillon, soit de l'électroaimant. Le troisième pic, vers $750\,000\text{ A.m}^{-1}$, est lui aussi dû au montage : ce pic ne se retrouve pas sur la mesure sans échantillon car l'excursion en champ était plus faible ; mais cette augmentation de tension se retrouve aussi pour l'échantillon de ferrite de cobalt, et elle est présente pour toutes les mesures où un fort champ magnétique a été utilisé.

On en conclut que s'il y a une singularité, elle est présente pour un champ magnétique appliqué $H \approx 300\,000\text{ A.m}^{-1}$. On verra par la suite s'il est possible de la faire correspondre à une constante d'anisotropie.

La sphère de nickel employée pour cette mesure est celle qui a déjà été utilisée pour les mesures au VSM avec la méthode de la détection de point singulier. Cela permet de comparer justement les méthodes de mesure.

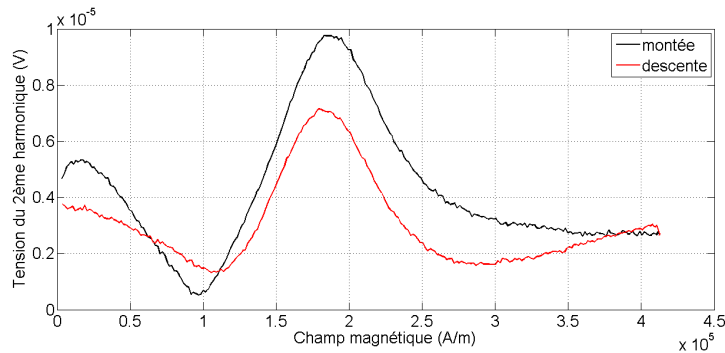


FIGURE 5.34 – Mesure de la tension du deuxième harmonique d’une sphère de nickel.

Sur la figure 5.34, on observe deux pics, dont le premier est lié au circuit magnétique de mesure. Le second se trouve à une valeur de champ qui vaut environ $160\,000\text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$. On pourrait croire que cela soit bien la présence d’une singularité, mais on s’aperçoit que ce pic est similaire à celui présent dans le calcul de la dérivée deuxième du moment mesuré par le magnétomètre, voir figure 5.25. On remplace ici cette figure avec la même échelle de champ afin de faciliter les comparaisons :

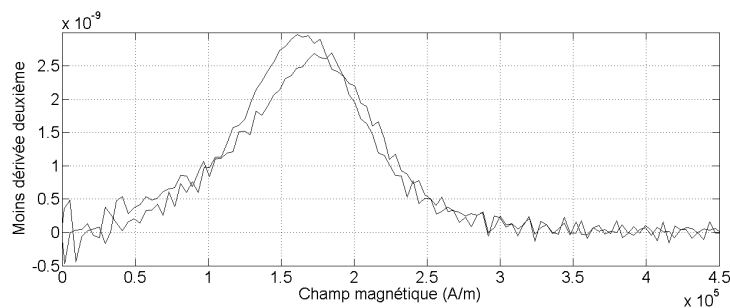


FIGURE 5.35 – Opposé de la dérivée deuxième du moment magnétique d’une sphère de nickel.

On relève la similarité des courbes des deux figures 5.34 et 5.35 : la position et la largeur des pics sont très semblables, et sur chaque mesure on remarque un léger décalage des pics qui est dû à l’hystérésis du matériau. On conclut donc que le pic détecté n’est pas celui recherché, et que donc la méthode de la mesure du deuxième harmonique semble bien compromise elle aussi.

La sphère de ferrite de cobalt est aussi celle qui a été utilisée pour la précédente méthode de mesure au magnétomètre.

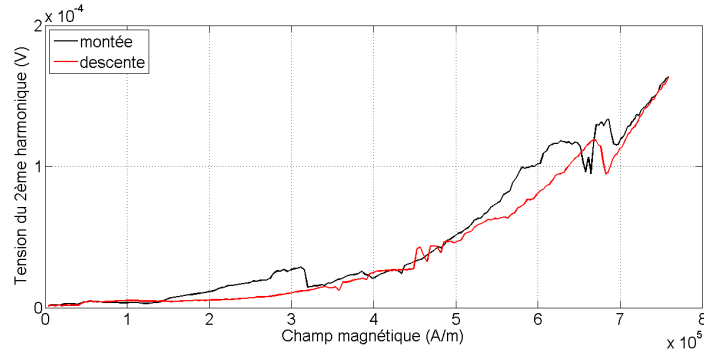


FIGURE 5.36 – Mesure de la tension du deuxième harmonique d’une sphère de ferrite de cobalt.

Aussi surprenant que cela puisse paraître, aucun pic n’est détectable. Après maintes vérifications du câblage, et plusieurs acquisitions, cette mesure est réalisée de la même manière que les précédentes. Un élément intéressant est le niveau de signal. Alors qu’il était compris entre 0 et $3,5 \times 10^{-6}$ V pour l’hexaferrite, et qu’il était compris entre 0 et 1×10^{-5} V pour le nickel, le signal prend ici des valeurs comprises entre 0 et 2×10^{-5} V pour le ferrite de cobalt. Ceci explique que le pic dû au circuit magnétique à faible champ n’apparaisse pas, son amplitude est trop faible pour être visible sur cette mesure.

En conclusion de la méthode de la mesure de l’amplitude du deuxième harmonique de la tension induite, il s’avère que nous n’avons pas non plus réussi à acquérir un signal correspondant à une singularité pour trouver la valeur du champ d’anisotropie. Pour ce qui est de l’échantillon du nickel, les résultats sont très semblables à ceux de la méthode de la deuxième dérivée, et c’est notamment cette ressemblance qui permet d’affirmer que les pic détectés ne sont en aucun cas ceux recherchés. En revanche, cette méthode du deuxième harmonique a été envisagée pour s’affranchir du bruit des dérivées numériques, et on remarque qu’effectivement les signaux sont bien moins bruités.

5.5 L’incertitude concernant la compensation

Il est important maintenant de garder un œil critique sur le contenu de ce chapitre. Nous avons souhaité pouvoir déterminer le champ d’anisotropie H^A par deux différentes mesures. On s’attendait à obtenir des courbes présentant une singularité pour un champ nommé $H_{singularité}$. Par la théorie, il est possible d’affirmer que $H^A = H_{singularité}$ pour le cas d’une structure uniaxiale, mais cela n’induit pas pour autant que cette égalité est aussi vraie pour le cas d’une structure cubique. Admettons que cela soit vrai, il se pose alors deux cas :

- l’axe de facile aimantation est selon l’axe [100], ce qui permet de remonter à la valeur de K_1 par la relation $H_{[100]}^A = \frac{2K_1}{J_s}$, mais K_2 reste inconnu,
- l’axe de facile aimantation est selon l’axe [111], et il n’est pas possible de déterminer séparément K_1 et K_2 avec la seule équation $H_{[111]}^A = -\frac{\frac{4}{3}K_1 + \frac{4}{9}K_2}{J_s}$.

Par ailleurs, nous avons espéré déterminer les constantes d’anisotropie des ferrites simples dans le but de minimiser les constantes d’anisotropie d’un ferrite Co-Ni-Zn-Cu. Cependant, des exemples issus de la littérature montrent que la constante K_1 d’un ferrite mixte n’est pas la somme des constantes K_1 des ferrites simples. On pense alors aux mesures de Keizo Ohta évoquées précédemment [Oht63], où il mesure pour le ferrite

de manganèse, le ferrite de zinc et le ferrite de fer $K_1 \leq 0$, mais que pour certaines compositions de ferrite Mn-Zn-Fe, il existe des cas où $K_1 > 0$.

Enfin, un détail de la littérature semble avoir son importance. Beaucoup d'articles présentent des résultats concernant l'anisotropie magnétocristalline. On se focalise ici sur ceux qui parlent de la compensation de la constante d'anisotropie, et parmi eux, tous ne présentent pas des courbes du type $K_1 = f(T)$ où T est la température ou du type $K_1 = f(x)$ où x représente une concentration d'un élément (comme par exemple le taux de cobalt d'un ferrite Co-Ni-Zn). Les articles qui montrent de telles courbes pour les ferrites sont généralement des ferrites qui possèdent une certaine proportion de Fe^{2+} dans la composition chimique des ferrites. Par exemple, Keizo Ohta dans son article de 1963 [Oht63] trace la courbe $K_1 = f(T)$ pour le ferrite $\text{Mn}_{0,31}\text{Zn}_{0,11}\text{Fe}_{0,58}\text{Fe}_2\text{O}_4$ qui possède des ions Fe^{2+} . Plus récemment, un article de 1980 de Stoppels et Boonen [SB80] présente une courbe $K_1 = f(T)$ pour les ferrites $\text{Mn}_{0,53}\text{Zn}_{0,40}\text{Fe}_{0,07}\text{Fe}_2\text{O}_4$, $\text{Mn}_{0,42}\text{Zn}_{0,44}\text{Fe}_{0,14}\text{Fe}_2\text{O}_4$ et $\text{Mn}_{0,30}\text{Zn}_{0,28}\text{Fe}_{0,42}\text{Fe}_2\text{O}_4$ qui possèdent eux aussi des ions Fe^{2+} . De même en 1956, Bickford, Brownlow et Penoyer tracent des courbes $K_1 = f(T)$ pour différents taux de cobalt du ferrite $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ pour identifier les températures qui correspondent à une compensation de la constante d'anisotropie. A contrario, les études qui évoquent la compensation de la constante d'anisotropie de ferrite dont la composition chimique ne contient pas d'ions Fe^{2+} manquent généralement de données. Par exemple, on peut évoquer des travaux menés par Richard Lebourgeois qui cherche à modifier la température de compensation en jouant sur le taux de cobalt de ferrites Co-Ni-Zn-Cu qui ne contiennent pas d'ions Fe^{2+} , et cela sans jamais mesurer K_1 . On cite ici un récent article de 2014 d'Edouard Brun, de Richard Lebourgeois et d'Eric Labouré [BLL14], où l'introduction contient une courbe illustrative $K_1 = f(T)$, mais les auteurs ne s'aventurent pas à donner une quelconque valeur de K_1 dans la suite de l'article. Un autre exemple concerne une publication de Kambale, Shaikh, Kamble et Kolekar de 2009 [KSKK09], où les auteurs caractérisent l'influence du taux de cobalt des ferrites $\text{Co}_x\text{Ni}_{1-x}\text{Fe}_2\text{O}_4$. Ils donnent des valeurs de constantes d'anisotropie qui ne sont pas mesurées directement, mais qui sont estimées par la formule²² $H_c = \frac{0,96K}{M_s}$, ce qui semble être faux puisque cette formule ne s'applique qu'au cas particulier des uniaxes sans interactions. Enfin, un dernier exemple est un article de Liu, Ding, Yi et Ying de 2008 [LDY⁺08] intitulé : "Magnetic Anisotropies in Cobalt-Nickel Ferrites ($\text{Ni}_x\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_2\text{O}_4$)", donc a priori un ferrite sans ions Fe^{2+} . Les sept valeurs de constantes d'anisotropie qu'ils donnent sont basées sur la loi d'approche à saturation et ne sont pas directement mesurées.

Tous ces points soulevés précédemment peuvent s'expliquer comme suit (autrement que par la mauvaise foi des auteurs). Il se trouve que chronologiquement il y eut d'abord des études sur les ferrites Mn-Zn, puis ensuite des études sur les ferrites Ni-Zn ou Ni-Cu-Zn. Et c'est seulement durant la première moitié du XX^{ème} siècle que les laboratoires avaient en possession des balances de torsion et des monocristaux et donc il était possible de mesurer correctement des constantes d'anisotropie. Par la suite, ces équipements ont peu à peu disparu, et les études actuelles doivent se passer de mesures précises pour déterminer les constantes d'anisotropie. A notre grand regret, fort est de constater que la littérature manque cruellement de valeurs de K_1 et K_2 , et qu'il est nécessaire de remettre en service ces balances si l'on souhaite étudier en détail l'influence de l'anisotropie magnétocristalline sur les propriétés de ferrites.

22. Cette formule a été établie par Louis Néel en 1947 pour un ensemble isotrope de particules uniaxiales et monodomains.

5.6 Conclusion

Dans ce chapitre, une première partie a été consacrée à la notion d'anisotropie magnétocristalline en général. Une attention toute particulière a été portée sur le caractère expérimental de cette anisotropie, qui est liée historiquement à la balance de torsion. Après analyse des courbes de couple, il est possible d'extraire des constantes, qui sont appelées les constantes d'anisotropie magnétocristalline K_1 et K_2 , et qui sont fonction de la nature du matériau et de la température. Nous avons voulu présenter une étude théorique afin de déterminer ces constantes d'une part, et surtout afin de déterminer la formule générale de l'énergie d'anisotropie d'autre part. En effet, cette énergie peut se mettre sous la forme : $U_K = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2)$. Cette équation est présentée dans l'ensemble des ouvrages traitant du magnétisme, mais l'établissement de cette équation est souvent occultée, et c'est pourquoi nous avons voulu la redémontrer. Nous avons enfin défini le champ d'anisotropie H^A à partir de l'énergie d'anisotropie. Ce champ s'écrit différemment selon les directions des axes de facile aimantation.

Par la suite, en utilisant des exemples issus de la littérature, nous avons montré qu'il est possible d'annuler la valeur de K_1 pour certains matériaux et pour une température précise. La conséquence immédiate est l'augmentation de la perméabilité. En conséquence, nous avons souhaité mesurer les constantes d'anisotropie magnétocristalline de plusieurs ferrites simples dans le but d'ajuster au mieux la composition chimique d'un ferrite pour obtenir une valeur de K_1 la plus faible possible. Malheureusement, nous n'avons à disposition ni balance de torsion, ni monocristaux. Une technique alternative a dû être envisagée. Nous avons premièrement opté pour la méthode de détection de point singulier, et deuxièmement pour la mesure de la tension du deuxième harmonique. Dans les deux cas, il s'agit de détecter une singularité qui se situe à un champ $H_{\text{singularité}}$. Nous avons montré que pour le cas d'une anisotropie uniaxiale, comme par exemple pour des hexaferrites, il y a l'égalité suivante : $H^A = H_{\text{singularité}}$. Il est donc possible de trouver la valeur du champ d'anisotropie et de remonter à la valeur de K_1 . Cependant, il reste l'interrogation pour le cas de l'anisotropie cubique qui nous intéresse : l'égalité $H^A = H_{\text{singularité}}$ est-elle toujours valable ? Des premiers éléments nous laissent penser que cette égalité n'est pas vérifiée, mais nous n'avons pas su répondre clairement à cette question, et nous sommes toujours incertains sur la possibilité de détecter ces points singuliers.

Enfin, nous avons émis quelques critiques quant à la compensation de la constante d'anisotropie magnétocristalline. Cette compensation ne se fait pas de manière linéaire, c'est-à-dire que même si nous nous connaissions les valeurs de K_1 de chaque ferrite simple, il n'est pas évident de prédire la constante d'anisotropie d'un ferrite mixte car des exemples nous montrent qu'il n'est pas possible d'additionner proportionnellement les constantes d'anisotropie. Il semble même qu'il n'existe aucun modèle donnant les constantes K à partir des constituants d'un matériau.

Nous terminons par émettre un avis personnel : l'anisotropie magnétocristalline est très souvent évoquée, alors que les constantes sont rarement mesurées. L'ensemble des ouvrages s'accorde à dire que la balance de torsion est la méthode la plus précise pour déterminer K_1 , et bien que cette méthode nécessite un équipement particulier, actuellement elle reste la seule méthode qui donne des valeurs fiables de K_1 . Il serait donc bénéfique pour un laboratoire de se donner les moyens d'avoir une telle balance ainsi que des monocristaux s'il aspire à obtenir de nouvelles mesures. Beaucoup d'articles ont déjà présenté de nouvelles idées pour mesurer des constantes d'anisotropie, même récemment [MLCT15], mais aucune de ces idées ne s'est finalement imposée face à la fameuse balance

de torsion.

Bien qu'il réside encore des mystères à percer, nous arrêtons ici l'étude sur l'anisotropie magnétocristalline, et nous choisirons d'optimiser la composition chimique des ferrites selon d'autres critères dans le chapitre suivant 6.

Chapitre 6

L'optimisation de la composition chimique du ferrite

Sommaire

6.1	Introduction	119
6.2	L'influence du taux de cobalt	119
6.2.1	Les mesures magnétiques	122
6.2.2	Analyses au microscope électronique et au diffractomètre	125
6.3	Étude du défaut de fer	128
6.3.1	Mesures de résistivité	128
6.3.2	La spectrométrie photoélectronique X	131
6.3.3	La spectrométrie Mössbauer	134
6.3.4	Le recuit	135
6.4	Conclusion	136

6.1 Introduction

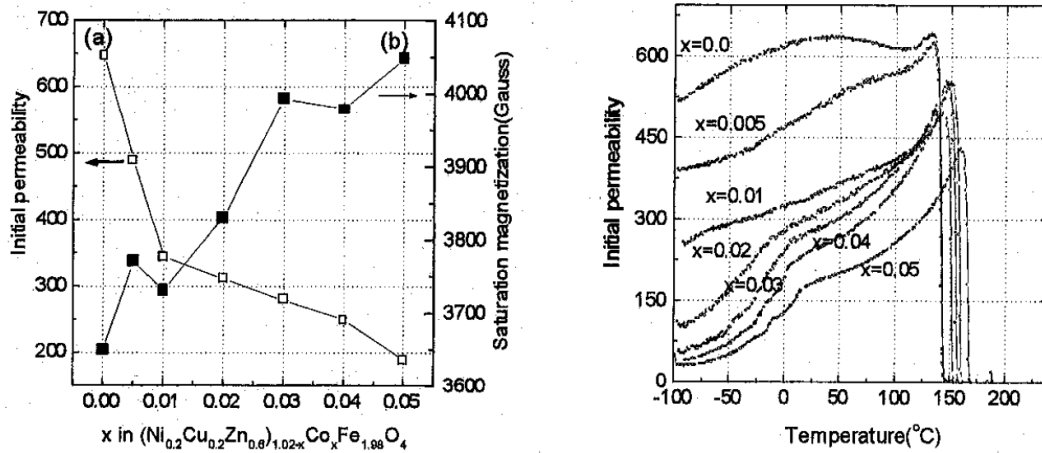
Bien que les tentatives des mesures des constantes d'anisotropies se soient montrées inexploitable, il convient dans ce chapitre d'optimiser la composition chimique des ferrites. Plusieurs critères peuvent être choisis afin de réaliser ces optimisations.

Le premier souhait reflète l'idée du précédent chapitre : maximiser la perméabilité en modifiant le taux de cobalt. Pour cela, nous avons mesuré l'évolution du taux de cobalt dans le ferrite $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{1-x}\text{Co}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$. Cette première étude n'a pas été concluante, mais nous a permis de déceler plusieurs soucis présents dans les matériaux : une légère inhomogénéité et une très faible résistivité.

6.2 L'influence du taux de cobalt

Afin, de modifier la constante d'anisotropie des ferrites Ni-Cu-Zn, l'ajout en petite quantité de cobalt semblait une voie prometteuse. L'objectif était de diminuer cette constante d'anisotropie pour augmenter la perméabilité. Byun en 1999 a mesuré une toute autre tendance sur le ferrite de composition $(\text{Ni}_{0,2}\text{Cu}_{0,2}\text{Zn}_{0,6})_{1,02-x}\text{Co}_x\text{Fe}_{1,98}\text{O}_4$: l'ajout de cobalt fait systématiquement diminuer la perméabilité initiale [BBHK99]. Des mesures

identiques effectuées dans la thèse d'Anthony Lucas sur le ferrite de composition similaire $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{1-x}\text{Co}_x\text{Fe}_{1,96\pm\delta}\text{O}_{4\pm\gamma}$ l'ont amené à la même conclusion [Luc10].



(a) Byun 1999.

Ferrite	Frittage 935°C / 2h			
	μ_s	F_R (MHz)	$\mu_s \times F_R$ (GHz)	σ (A.m ² /kg)
Ni / Zn = 0,43 _ Co = 0	830	5,6	4,65	65,5
Ni / Zn = 0,43 _ Co = 0,007	550	9,5	5,21	65,2
Ni / Zn = 0,43 _ Co = 0,014	420	12,3	5,17	65,5
Ni / Zn = 0,43 _ Co = 0,021	347	16,0	5,55	65,2
Ni / Zn = 0,43 _ Co = 0,028	277	20,1	5,57	64,4
Ni / Zn = 0,43 _ Co = 0,035	233	24,4	5,67	65,2
Ni / Zn = 0,43 _ Co = 0,042	205	27,1	5,55	65,3
Ni / Zn = 0,43 _ Co = 0,049	180	31,7	5,71	66

(b) Anthony Lucas 2010.

FIGURE 6.1 – Évolution de la perméabilité initiale de deux ferrites Co-Ni-Cu-Zn.

Bien qu'une diminution de la perméabilité soit observée, Anthony Lucas met en évidence que l'ajout de cobalt permet une augmentation du facteur de mérite $\mu_s \times F_R$, et il montre dans la suite de ses travaux de thèse que le cobalt diminue significativement les pertes magnétiques dans le matériau. Ces résultats sont particulièrement intéressants pour les applications en génie électrique, où on souhaite justement augmenter les fréquences de travail (pour diminuer la taille des composants passifs) sans pour autant augmenter les pertes.

Comme chaque fabricant a ses propres recettes de cuisine, et que chaque procédé de fabrication influe sur les propriétés de matériaux, nous avons souhaité comparer ces résultats à des ferrites fabriqués par le procédé PECS. Nous avons choisi la même composition chimique qu'Anthony Lucas : $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{1-x}\text{Co}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ en utilisant le protocole de frittage réactif mis en place par Karim Zehani [Zeh11] détaillé dans le chapitre 4. Pour cela, huit échantillons ont été réalisés en faisant varier la quantité de cobalt $0 < x < 0,07$ par pas de 0,01. Pour chaque échantillon, nous avons utilisé des poudres nanométriques

Sigma Aldrich d'oxyde simple dans les proportions stœchiométriques : NiO, ZnO, CuO, Co₃O₄ et Fe₂O₃. Nous les avons mélangé/broyé à l'aide du broyeur planétaire Fritsch Pulverisette 7 pendant 30 minutes à une vitesse de 400 tours par minute. Chaque jarre de broyage contenait 5,5 grammes de mélange d'oxyde simple sous forme de poudre avec 18 billes d'acier chromé de diamètre 7 millimètres et de masse 1,4 gramme ainsi que quelques gouttes d'éthanol pour donner une consistance pâteuse à la poudre.



FIGURE 6.2 – Pulverisette 7.

Par la suite, nous avons fritté par le procédé PECS pour réaliser un frittage réactif. Un premier palier de 10 min à 580 °C permet de synthétiser la phase spinelle, puis un deuxième de 5 min à 800 °C permet de fritter. Cette faible température de frittage est rendue possible non seulement grâce au procédé PECS car une pression uniaxiale est exercée, mais aussi par la présence de l'élément cuivre dans les ferrites Ni-Zn-Cu qui présentent des températures de frittage plus faibles que les ferrites Ni-Zn¹

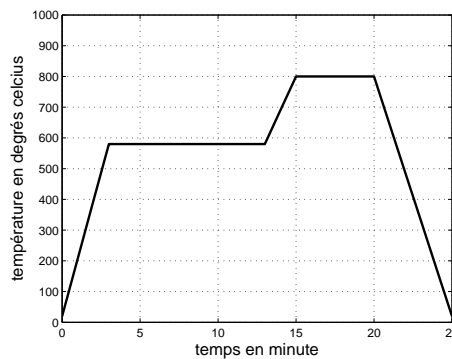


FIGURE 6.3 – Allure temporelle de la température pour un frittage réactif.

Ces paramètres de frittages ont été optimisés durant les travaux de thèse de Karim Zehani [Zeh11] du point de vue des pertes magnétiques [ZMLL11]. En effet, on peut retenir les tendances suivantes : la taille des cristallites dépend de la température, et la densité dépend de la durée de frittage ainsi que de la pression uniaxiale. Pour éviter les pertes par mouvement de paroi, il est nécessaire d'obtenir des cristallites monodomains, ce qui est le cas pour une taille de l'ordre du micromètre ou moins². Chaque échantillon ainsi fritté

1. Des résultats d'expériences sur les températures de frittage sont montrés dans la thèse de Jérôme Ageron [Age99], mais aussi dans la littérature dès 1997 [Nak97].

2. Une étude relativement récente montre l'influence de la taille des grains sur les pertes pour des ferrites Ni-Zn [SZTJ08].

se trouve sous forme de pastille, ensuite percé au centre afin d'obtenir des tores pour en mesurer la perméabilité.



FIGURE 6.4 – Ferrite réalisé par frittage réactif.

6.2.1 Les mesures magnétiques

Pour mesurer la perméabilité, il existe plusieurs méthodes. Nous avons opté pour une mesure fluxmétrique petits signaux qui se réalise facilement avec l'analyseur de spectre HP 4195A muni du kit impedance test adapter 41951-61001. Ce kit se présente sous la forme d'une cellule coaxiale dans laquelle on place l'échantillon sous forme de tore. L'analyseur permet de mesurer l'impédance électrique complexe, et il vient que la partie réelle/résistive permet de remonter à la valeur de μ'' tandis que la partie imaginaire/inductive permet de remonter à la valeur de μ' . En effet, il suffit de poser que l'inductance complexe prend la forme :

$$\underline{L} = \frac{n^2}{\mathcal{R}} = \mu_0(\mu' - j\mu'') \frac{S}{\ell} n^2 \quad (6.1)$$

avec \mathcal{R} la réluctance du circuit magnétique. Ceci permet d'en déduire l'impédance :

$$\underline{Z} = j\underline{L}\omega = j\mu_0(\mu' - j\mu'') \frac{S}{\ell} n^2 \omega = \mu_0\mu'' \frac{S}{\ell} n^2 \omega + j\mu_0\mu' \frac{S}{\ell} n^2 \omega \quad (6.2)$$

Cette impédance est précisément la grandeur que l'on mesure à l'analyseur d'impédance, et cette appareil nous délivre une valeur sous la forme :

$$\underline{Z} = R + jX \quad (6.3)$$

Ce qui permet d'en déduire les perméabilités :

$$\mu' = \frac{X \cdot \ell}{\mu_0 \cdot 2\pi f \cdot S \cdot n^2} \quad (6.4)$$

$$\mu'' = \frac{R \cdot \ell}{\mu_0 \cdot 2\pi f \cdot S \cdot n^2} \quad (6.5)$$

avec $\left\{ \begin{array}{l} \ell \text{ la longueur moyenne du tore} \\ S \text{ la section du tore} \\ n \text{ le nombre de spire, qui est ici de 1} \\ f \text{ la fréquence} \end{array} \right.$

On peut apporter une précision quant au calcul de la longueur moyenne du tore. Il est possible de déterminer la longueur moyenne géométrique en posant : $\ell = \frac{\pi}{2}(d_{int} + d_{ext})$. Cependant, le champ magnétique est plus concentré vers l'intérieur du tore que vers l'extérieur. En effet, avec le théorème d'Ampère on écrit que $\oint_{\Gamma} \vec{H} d\vec{\ell} = ni$, ce qui se simplifie pour le problème du tore à $H = \frac{ni}{2\pi r}$ avec r le rayon, c'est-à-dire la distance entre l'axe du tore et la ligne de champ considérée. Il est alors possible d'exprimer le flux magnétique traversant la section du tore par :

$$\Phi = \iint_{\Gamma} \vec{B} d\vec{S} = \int_{r_{int}}^{r_{ext}} \int_0^e \mu \frac{ni}{2\pi r} dy dr = \mu e \frac{ni}{2\pi} \ln \left(\frac{r_{ext}}{r_{int}} \right) \quad (6.6)$$

avec e l'épaisseur du tore. Ce résultat est à comparer au suivant, lorsque l'on suppose que le flux est réparti uniformément sur la section du tore :

$$\Phi = \mu HS = \mu \frac{ni}{\ell} e (r_{ext} - r_{int}) \quad (6.7)$$

ce qui permet d'écrire que la longueur moyenne (qui est différente de la longueur moyenne géométrique) des lignes de champ au sein du tore est :

$$\ell = 2\pi \frac{r_{ext} - r_{int}}{\ln \left(\frac{r_{ext}}{r_{int}} \right)} = \pi \frac{d_{ext} - d_{int}}{\ln \left(\frac{d_{ext}}{d_{int}} \right)} \leq \frac{\pi}{2} (d_{int} + d_{ext}) \quad (6.8)$$

Après ces quelques manipulations de grandeurs, on obtient les relevés de perméabilité suivants pour les ferrites de compositions $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{1-x}\text{Co}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$, toujours pour $0 \leq x \leq 0,07$ par pas de 0,01.

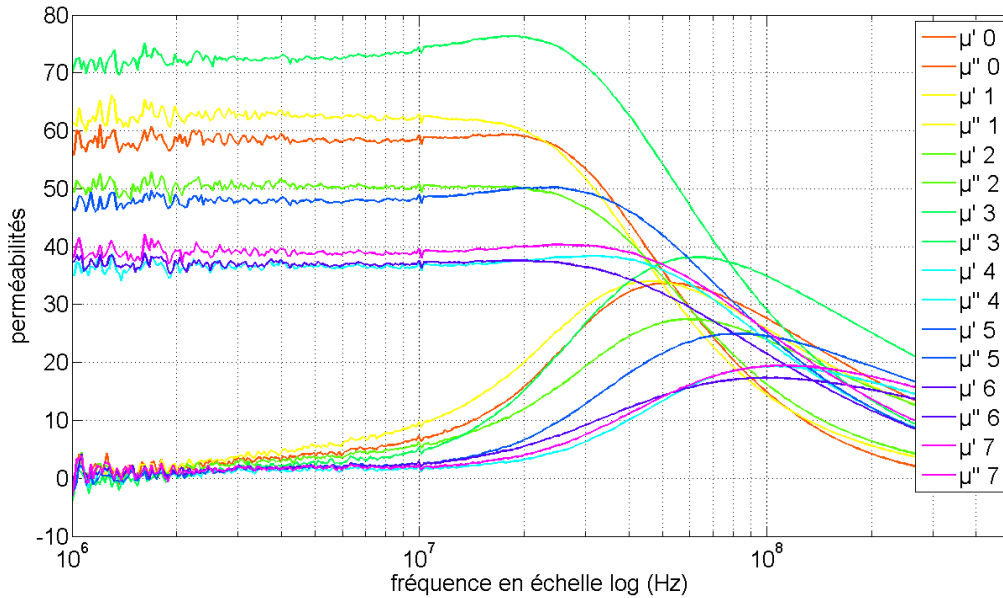


FIGURE 6.5 – Parties réelles et imaginaires des perméabilités. Exemple : la courbe $\mu'4$ correspond à la partie réelle de la perméabilité de l'échantillon $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{0,96}\text{Co}_{0,04}\text{Fe}_2\text{O}_4$

Sur la figure 6.5, il est surprenant de ne pas observer de tendance. En effet, on pouvait s'attendre à une diminution de la perméabilité avec l'augmentation du taux de cobalt,

mais il n'en est rien³. On note tout de même que la fréquence de relaxation de l'ensemble des échantillons reste autour de 20 MHz, ce qui justifie une application en électronique de puissance en haute fréquence.

Pour compléter, on trace la valeur de la partie réelle de la perméabilité en fonction du taux de cobalt pour une fréquence de 2 MHz (ce qui peut être considérée comme statique).

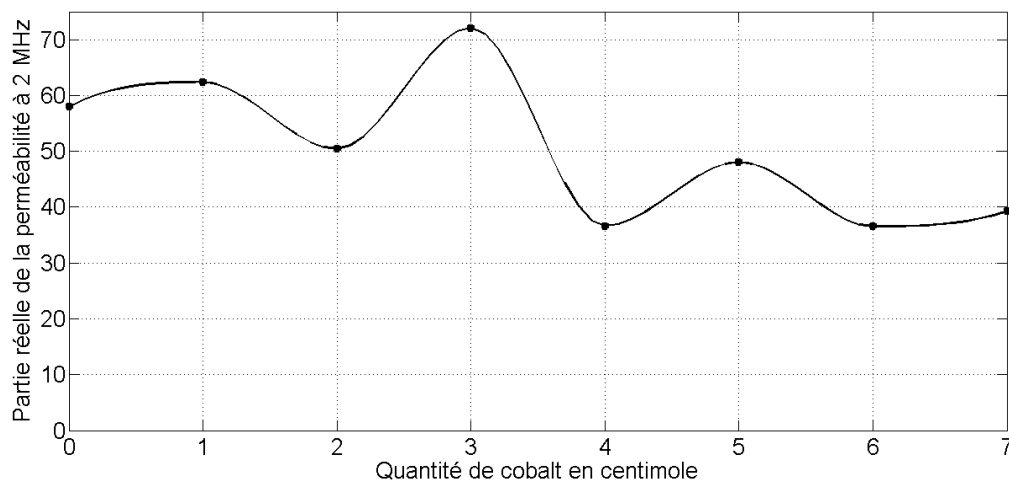


FIGURE 6.6 – Évolution de la perméabilité initiale statique pour les ferrites $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{1-x}\text{Co}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ à une fréquence de 2 MHz.

On retrouve sur la figure 6.6 ce qui a été pressenti sur la figure 6.5, à savoir que l'ajout de cobalt ne permet pas de montrer clairement une tendance sur la perméabilité. Les différentes variations ne permettent pas de conclure sur l'influence du cobalt, et il devient nécessaire d'effectuer d'autres mesures pour comprendre cet aspect quelque peu chaotique.

Une autre mesure complémentaire est celle de la polarisation à saturation pour savoir s'il est possible de dégager une tendance en fonction du taux de cobalt. La polarisation de chaque échantillon est mesurée avec un VSM à 77 K (température de l'ébullition de l'azote) ainsi qu'à température ambiante.

3. Au vu de ces résultats, les mesures ont été réalisées plusieurs fois, et à plusieurs jours d'intervalle afin de s'affranchir de l'influence de la pleine lune et des grandes marées.

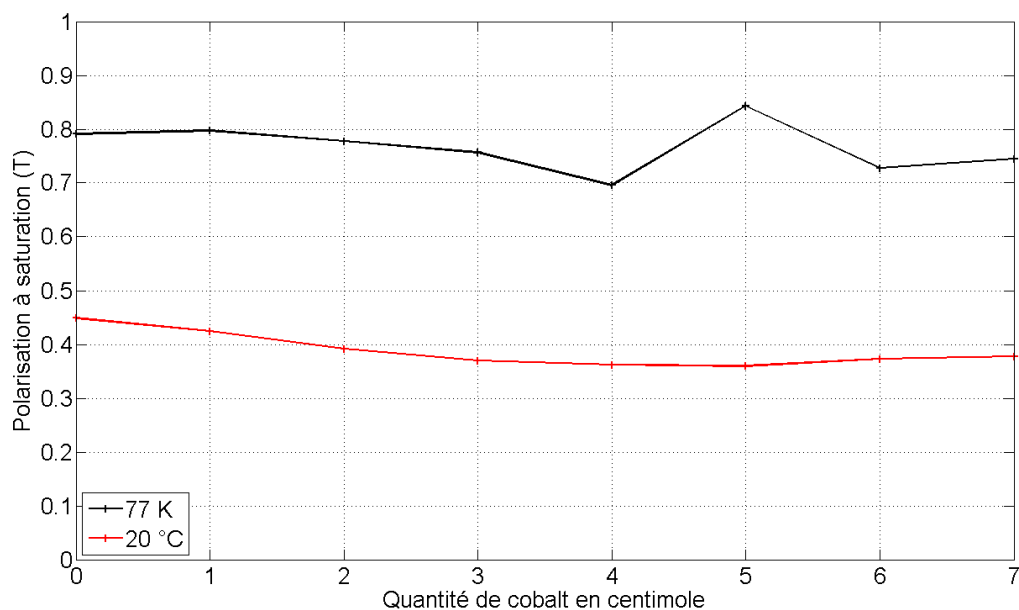


FIGURE 6.7 – Évolution de la polarisation à saturation à deux températures différentes pour les ferrites $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{1-x}\text{Co}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$.

Pour essayer de comprendre ces absences de tendance, il est nécessaire de procéder à quelques vérifications quant aux matériaux frittés par le procédé PECS.

6.2.2 Analyses au microscope électronique et au diffractomètre

Les analyses les plus communes sont celles issues de microscope électronique et de diffractomètre basé sur la diffraction de rayons X. Avec le premier appareil, il est possible de visualiser la taille des particules du ferrite fritté.

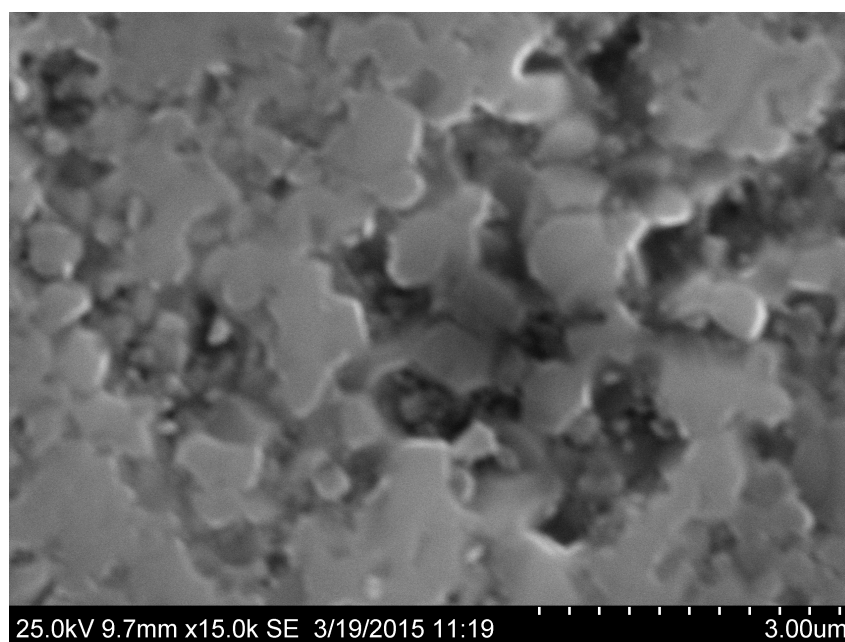


FIGURE 6.8 – Microscopie de l'échantillon $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{0,94}\text{Co}_{0,06}\text{Fe}_2\text{O}_4$. Les autres échantillons de la série montrent des caractéristiques identiques.

Sur la figure 6.8, la microscopie confirme la microstructure désirée, à savoir obtenir des particules de l'ordre du micromètre. Toujours dans le but de vérifier les caractéristiques des matériaux frittés, nous avons fait l'acquisition de spectre de diffraction de rayons X en utilisant un diffractomètre PANalytical X'Pert Pro avec une cathode de cobalt. Comme attendu pour de faibles substitutions, les diffractogrammes sont très similaires pour l'ensemble des échantillons.

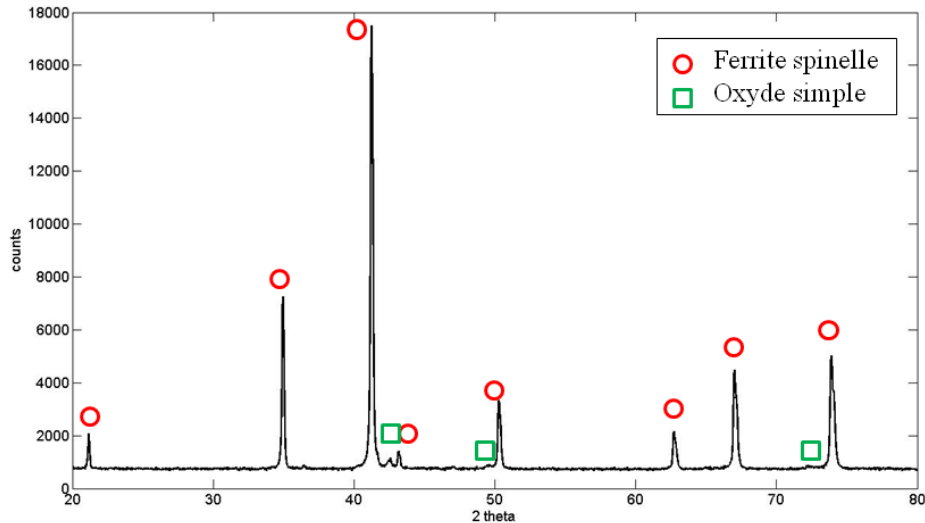


FIGURE 6.9 – Diffractogramme de l'échantillon $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{0,94}\text{Co}_{0,06}\text{Fe}_2\text{O}_4$. Les diffractogrammes des autres échantillons sont similaires.

Le diffractogramme de la figure 6.9 permet de vérifier que la phase spinelle est bien présente. On relève au passage que tous les oxydes simples n'ont pas réagi car on détecte leur présence par des pics secondaires. Le logiciel de traitement des données permet d'estimer qu'environ 96 % de l'échantillon est constitué de phase spinelle, et que les 4 % restant correspondent aux oxydes qui n'ont pas réagi. On précise que le pourcentage n'est ni atomique, ni massique, ni volumique ; c'est un pourcentage de phase.

TABLE 6.1 – Caractérisation du frittage réactif par le pourcentage de phase spinelle.

Taux de cobalt	pourcentage de phase spinelle
0	95
0,01	94
0,02	93
0,03	98
0,04	93
0,05	99
0,06	96
0,07	100

D'autres informations peuvent être extraites de l'analyse des spectres, comme le paramètre de maille. Pour l'ensemble des échantillons, il est proche de 840 pm.

Pour vérifier la présence de la phase secondaire, une analyse EDS⁴ a été utilisée. Cette analyse permet de réaliser une cartographie chimique des éléments à la surface des échantillons.

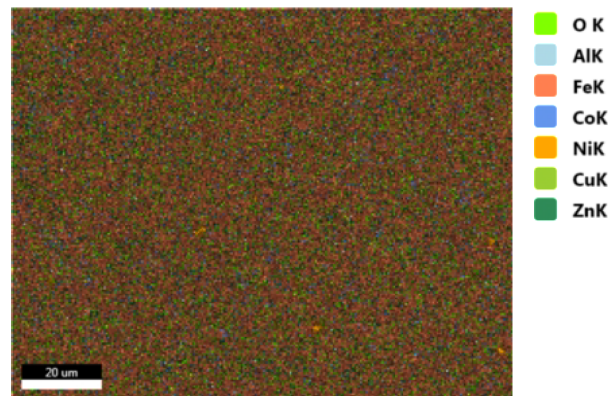


FIGURE 6.10 – Cartographie élémentaire obtenue par EDS de l'échantillon $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{0,94}\text{Co}_{0,06}\text{Fe}_2\text{O}_4$.

Cette cartographie élémentaire permet tout d'abord de retrouver les espèces chimiques qui composent le matériau. On note la présence (non souhaitée) d'aluminium, ce qui s'explique par le fait que la poudre d'oxyde de zinc ZnO provenant de Sigma Aldrich contient des traces d'aluminium. Il est aussi possible de ne faire apparaître qu'un seul type d'élément sur la cartographie, et nous constatons une anomalie concernant le nickel.

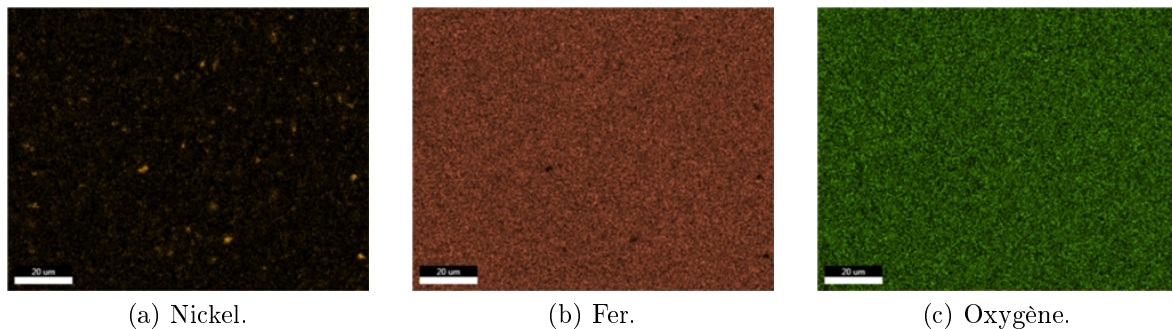


FIGURE 6.11 – Cartographies élémentaires du nickel, du fer et de l'oxygène de l'échantillon $(\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56})_{0,94}\text{Co}_{0,06}\text{Fe}_2\text{O}_4$.

Sur la figure 6.11, les cartographies du nickel, du fer de l'oxygène sont montrées sur la même région de l'échantillon. On observe que le nickel peut se retrouver sous forme d'agglomérat car il existe des zones où il est concentré. Ces mêmes zones de concentration sont des zones de désertion pour le fer, et l'absence de fer indique clairement l'absence de ferrite donc de la phase spinelle. Par ailleurs, comme l'oxygène est réparti plutôt uniformément, on peut en déduire qu'une partie du nickel est restée sous forme d'oxyde et n'a pas réagi lors de la synthèse de la phase spinelle.

Au vu de ces résultats, on peut penser que le frittage réactif n'est peut-être pas le meilleur procédé de fabrication de ferrites (il a tout de même le mérite d'exister!). Cependant, une meilleure connaissance de la physique du broyage pourrait amener à une

4. EDS est l'acronyme de Energy Dispersive X-ray Spectrometry, ce qui se traduit en français par Analyse Dispersive en Energie.

amélioration de la poudre à fritter : en effet, bien qu'en moyenne la taille des particules des oxydes de base soit inférieure à 100 nm, elle est différente pour chaque oxyde. Lors du broyage, nous ne savons pas comment les espèces réagissent entre elles, et il est possible que les agglomérats d'oxyde de nickel soient présents dès cette étape de broyage. Par ailleurs, il est difficile de prévoir les caractéristiques des matériaux issus d'un broyage car cette étape est quelque peu chaotique et pas toujours très reproductible. Les résultats connus concernant le broyage sont très souvent expérimentaux, et il reste difficile d'en dégager des lois physiques.

6.3 Étude du défaut de fer

Durant les différentes mesures sur les échantillons de ferrites avec un taux de cobalt variable, nous nous sommes aperçus que les matériaux frittés ne possédaient pas les résistivités attendues. De plus, les valeurs de résistivité diffèrent de plusieurs ordres de grandeur d'un échantillon à l'autre. Pour comprendre ces importantes variations, des recherches bibliographiques nous ont montré qu'il faut s'intéresser de plus près au défaut de fer présent dans les ferrites, autrement dit la non-stœchiométrie du fer dans la formule chimique des matériaux fabriqués.

6.3.1 Mesures de résistivité

Pour la famille des ferrites Ni-Zn, deux articles de Van Uitert parus en 1955 et 1956 permette d'appréhender correctement la conduction électrique dans ces matériaux [Van55] [Van56]. L'auteur arrive à la conclusion que la résistivité dépend grandement de la stœchiométrie des matériaux, à savoir la formule exacte des ferrites. Il montre qu'un défaut ou un excès de fer dans un ferrite $Ni_{0,3}Zn_{0,7}Fe_{2+\delta}O_4$ peut amener à une différence de neuf ordres de grandeur sur la résistivité.

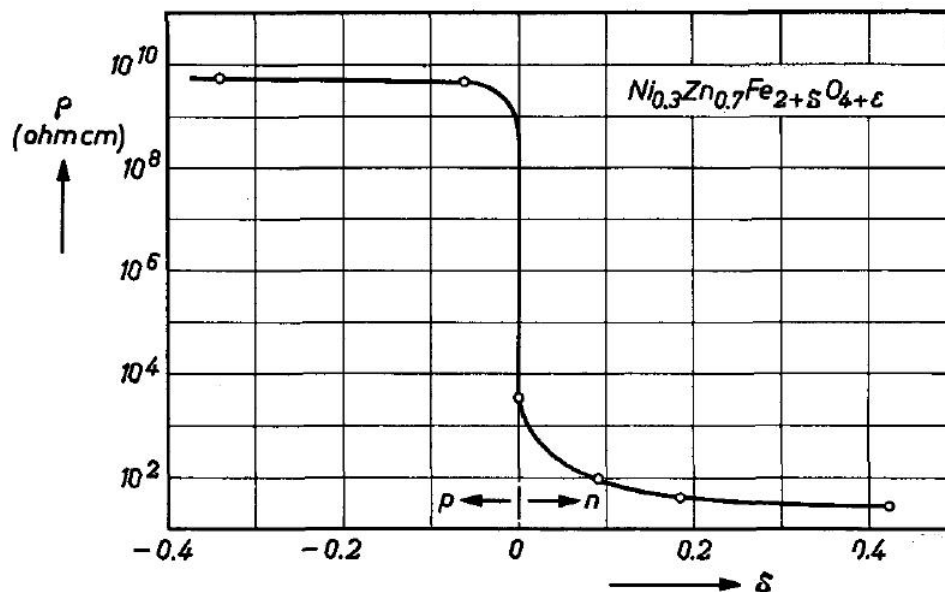


FIGURE 6.12 – Variation de la résistivité ρ en fonction de la teneur en fer pour un ferrite fritté à 1250 °C dans une atmosphère d'oxygène [SW59], d'après [Van55].

Bien qu'il y ait des atomes "en plus" ou "en moins" dans la maille, le matériau conserve

la structure spinelle. En effet, cette structure est assez souple et permet de s'éloigner de la stœchiométrie exacte.

Concernant la résistivité, s'il y a un excès de fer, alors il est possible de trouver les deux formes ioniques afin d'équilibrer les charges : Fe^{2+} et Fe^{3+} . Il peut donc s'opérer une conduction par hopping⁵, ce qui est similaire à une conduction électronique pour les semi-conducteurs de type N. En revanche, si le fer est en défaut, il n'est que dans son état ferrique Fe^{3+} , et cet ion n'est pas donneur d'électron. Ceci explique la plus grande résistivité dès qu'un défaut de fer est réalisé.

On pourrait s'attendre à ce que la résistivité augmente continument avec le défaut de fer, mais les mesures montrent que ce n'est pas le cas, et on observe sur la figure 6.12 que la résistivité stagne vers 10^{10} ohm.cm, soit 10^8 ohm.m. La faible conduction résiduelle provient alors du couple rédox Ni^{2+} et Ni^{3+} qui permet lui aussi une conduction par hopping (mais bien moins prononcée). Toujours dans ses articles, Van Uiterter identifie une dernière cause de conductivité : l'évaporation de zinc. Pour des températures de frittage supérieures à 1200 °C, le zinc présent en surface a tendance à se volatiliser. La conséquence observée est une conduction de surface, et l'auteur montre qu'en ponçant les surfaces extérieurs, la résistivité passe bien de 10^3 ohm.m à la résistivité escomptée 10^8 ohm.m.

Pour notre étude, le frittage par procédé PECS se fait à une température de 800 °C pendant quelques minutes. Nous estimons que la conduction des échantillons n'est pas due à l'évaporation du zinc, mais principalement à l'absence de défaut de fer. Nous avons donc fabriqué des ferrites de formule $\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56}\text{Fe}_{2+\delta}\text{O}_4$, avec un défaut de fer $-0,10 < \delta < 0,00$ par pas de $0,10$. Pour mesurer la résistivité, nous avons utilisé deux électrodes en plaque de cuivre montées sur ressort. Les échantillons de ferrites sont placés entre ces plaques de cuivre. Entre le ferrite et le cuivre, nous avons pris soin de placer un caoutchouc conducteur afin d'améliorer le contact entre la cuivre et le ferrite.



FIGURE 6.13 – Mesure de la résistivité des ferrites.

Un ohmmètre permet d'accéder à la valeur de la résistance des échantillons puis de

5. Le terme anglophone hopping est à prendre au sens d'une onomatopée : un électron issu de l'ion Fe^{2+} saute vers un ion Fe^{3+} en faisant "et hop, et hop, et hop".

remonter à la valeur de la résistivité en utilisant les dimensions des échantillons.

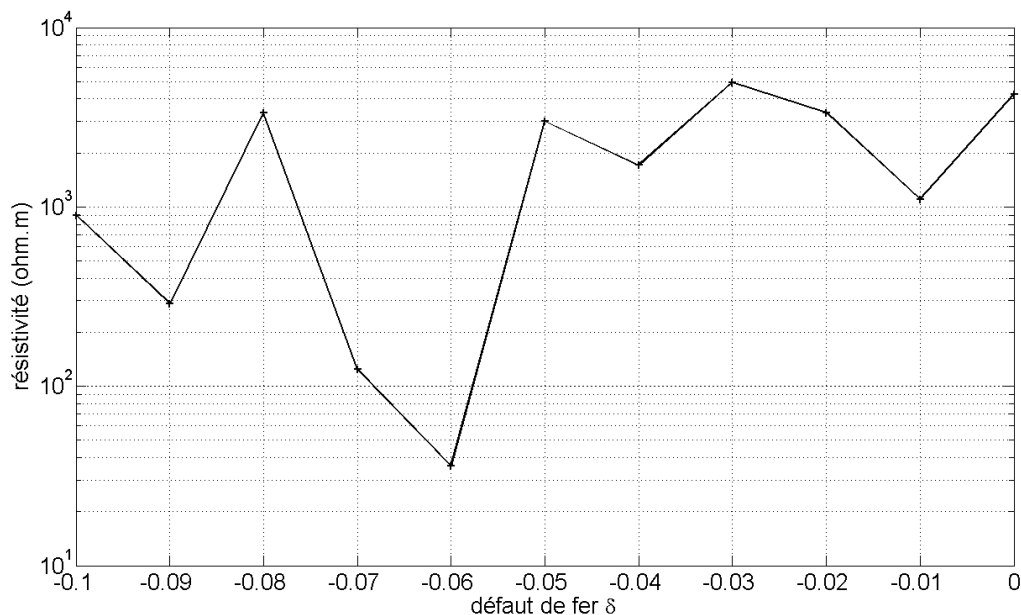


FIGURE 6.14 – Résistivité des ferrites $\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56}\text{Fe}_{2+\delta}\text{O}_4$ frittés par le procédé PECS à 800 °C en fonction du défaut de fer.

Contrairement aux attentes, la courbe de résistivité de la figure 6.14 n'est point semblable à celle de la figure 6.12. Bien que les compositions chimiques ne soient pas identiques, il aurait été logique d'obtenir une courbe ayant la même allure. Par ailleurs, les valeurs de résistivité sont plus faibles que celles des ferrites classiques. Les valeurs mesurées sur les échantillons fabriqués par le procédé PECS sont au maximum de 5×10^3 ohm.m contre 5×10^7 ohm.m dans la littérature. Il reste donc une différence de quatre ordres de grandeurs, ce qui laisse présager qu'un facteur est plus influençant que le défaut de fer sur la résistivité.

Pour expliquer les faibles résistivités des ferrites fabriqués par le procédé PECS, nous nous appuyons sur deux hypothèses :

1. la diffusion du carbone,
2. la volatilisation de l'oxygène.

La diffusion du carbone. Le moule servant au frittage est en carbone. De même, le papiex n'est autre qu'une feuille souple en carbone, et on doit le placer entre les parois internes du moule et l'échantillon poudreux à fritter. En conséquence, lors de la montée en température, il est possible que du carbone diffuse dans l'échantillon et qu'il permette à un courant électrique de s'établir dans l'échantillon.

La volatilisation de l'oxygène. Le frittage par le procédé PECS doit se faire sous atmosphère neutre ou sous vide. En effet, s'il s'opère sous air ou sous oxygène, le graphite du moule s'enflamme et détruit la machine. Il est impératif de chauffer sous argon. Il est alors probable que quelques atomes d'oxygène issus des oxydes simples se volatilisent, ou bien se combinent avec le graphite du moule pour former du dioxyde de carbone.

La conséquence immédiate est que les ferrites frittés sont sous-stœchiométriques en oxygène. Afin d'équilibrer les charges dans le matériau, les ions ferriques deviennent ferreux. Par exemple, on imagine que sur un huitième de maille, la matière perd un ion oxyde : $\text{MeFe}_2\text{O}_4 \rightarrow \text{MeFe}_2\text{O}_3$. Afin d'assurer l'électronéutralité, les ions passent de la configuration $\text{Me}^{2+}\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{3+}$ à la configuration $\text{Me}^{2+}\text{Fe}^{2+}\text{Fe}^{2+}$. Il peut alors s'établir un courant électrique par hopping avec les ions ferriques Fe^{3+} voisins dans le cristal.

Cette deuxième hypothèse s'appuie sur un fait remarqué par l'ensemble des utilisateurs de la plate-forme de Thiais qui utilisent le frittage par le procédé PECS : tous s'accordent à dire que ce procédé peut-être réducteur. Un des utilisateurs a même publié un article dans lequel il a observé une réduction du nickel dans un ferrite Ni-Zn. Cette réduction étant sévère, il a détecté que le nickel se trouve non plus sous forme d'oxyde, mais sous forme métallique [VGA16].

Pour valider ces deux hypothèses, il est nécessaire de pouvoir doser le carbone et l'oxygène dans les échantillons. Cependant, il nous a pas été possible de trouver l'appareil magique adéquat. La première intuition a été d'utiliser l'analyse EDS qui avait déjà servi à réaliser les cartographies des éléments, mais le détecteur n'est pas dimensionné pour relever la présence des éléments légers comme le carbone ou l'oxygène. Les résultats obtenus par EDS ne sont donc pas exploitables.

6.3.2 La spectrométrie photoélectronique X

Nous avons eu la chance d'avoir accès à un appareil sur le site CNRS de Thiais basée sur la spectrométrie photoélectronique X, abrégée en XPS⁶. L'échantillon est irradié par des rayons X monochromatiques qui provoquent l'ionisation de ses atomes par effet photoélectrique. L'énergie cinétique de ces photoélectrons est mesurée, ce qui donne le spectre de l'intensité des électrons en fonction de l'énergie mesurée. Chaque photon X incident a la même énergie, puisque le faisceau est monochromatique. Lors de l'interaction avec l'atome, une partie de cette énergie sert à rompre la liaison, c'est l'énergie de liaison ; le reste est transféré à l'électron sous la forme d'énergie cinétique. Le spectre en énergie cinétique présente donc des pics, et l'on peut déterminer l'énergie de liaison correspondant à chaque pic par la relation d'Einstein :

$$\boxed{E_L = h\nu - E_c} \quad (6.9)$$

$$\text{avec } \begin{cases} E_L & \text{l'énergie de liaison en } J \\ h & \text{la constante de Planck } \approx 6,626 \times 10^{-34} \text{ } J.s \\ \nu & \text{la fréquence du rayon X en } s^{-1} \\ E_c & \text{l'énergie cinétique des électrons éjectés en } J \end{cases}$$

On obtient donc un spectre constitué de pics. Chaque pic correspond à une énergie qui est la signature d'un élément, et de petits déplacements de pics permettent de caractériser le degré d'oxydation des éléments⁷. Nous avons donc fait des mesures sur les échantillons de onze compositions avec différents défauts de fer : $\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56}\text{Fe}_{2+\delta}\text{O}_4$ avec un

6. En anglais : X-Ray photoelectron spectrometry, d'où l'acronyme XPS.

7. Ces quelques lignes précédentes sont extraites de l'article du même nom de l'encyclopédie libre Wikipédia.

défaut $-1,0 < \delta < 0,0$ par pas de 0,1. Un exemple typique de spectre est montré en figure 6.15.

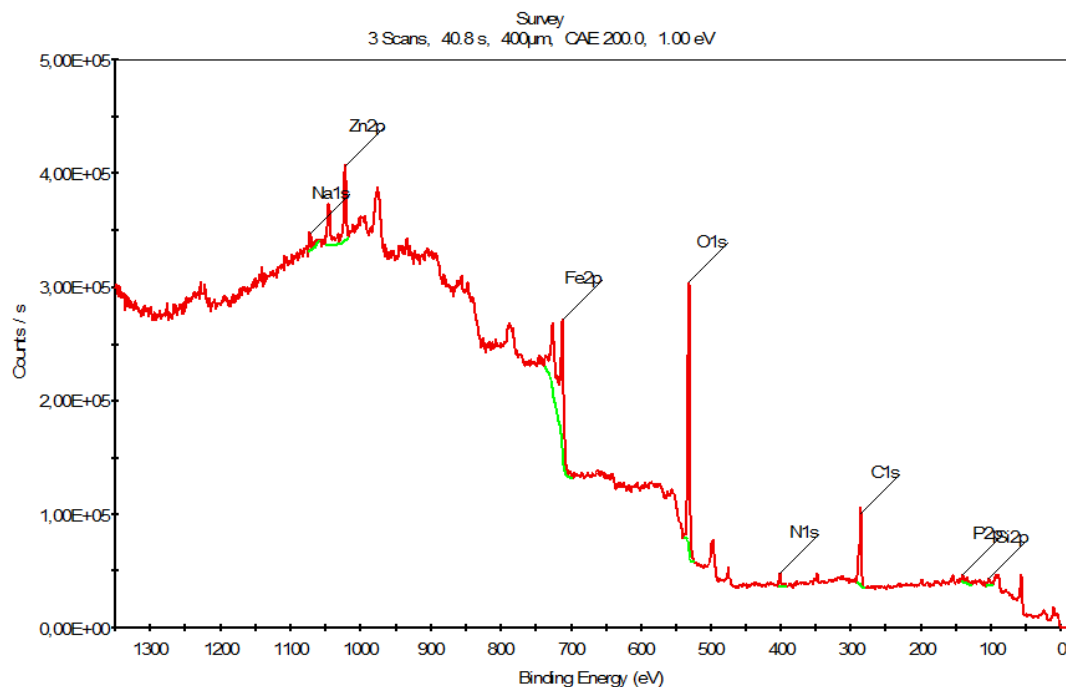


FIGURE 6.15 – Spectre XPS représentatif des ferrites $\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56}\text{Fe}_{2+\delta}\text{O}_4$ frittés par le procédé PECS à 800 °C avant nettoyage par bombardement d’argon.

Sur la figure 6.15, plusieurs éléments sont à observer. Premièrement, la ligne de base est colorée en vert, et elle n’est pas aussi horizontale que celle d’un spectre de DRX. Certains pics semblent même confondus avec la ligne de base.

Deuxièmement, on observe un pic de carbone. Cependant, Pierre Dubot, le chercheur CNRS qui nous a accueillis sur la plate-forme XPS, nous a indiqué que ce carbone était dû à la pollution environnante. Par exemple, il suffit que des hydrocarbures de l’atmosphère viennent se déposer sur l’échantillon pour observer un pic lié au carbone. Cette hypothèse nous semble plausible car les échantillons n’étaient pas très propres, en témoigne le pic de sodium qui est caractéristique des contacts avec la peau, où des sels viennent se déposer. Cette même personne responsable a nettoyé les échantillons par bombardement d’atomes d’argon grâce à un dispositif intégré au spectromètre. Après nettoyage, les pics du carbone et du sodium disparaissent.

Troisièmement, on observe un pic dû à la présence de fer. Il est possible de connaître le degré d’oxydation en déterminant précisément l’énergie correspondant au pic. Les ions Fe^{2+} font apparaître un pic à 711 eV, tandis que les ions Fe^{3+} font apparaître un pic à 709 eV. Il est donc nécessaire de faire une acquisition précise autour des ces énergies. Pour la plupart des échantillons, les spectres sont semblables à celui de la figure 6.16 :

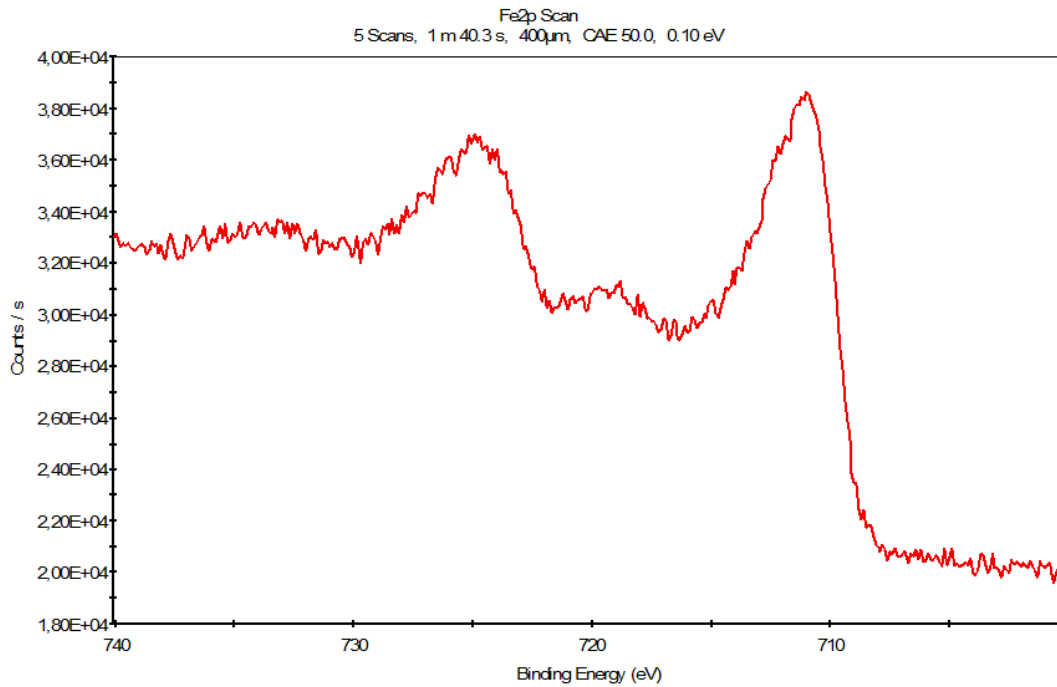


FIGURE 6.16 – Spectre XPS. Le pic à 709 eV est signé Fe^{3+} .

Il est difficile de trancher quant à la présence de Fe^{2+} . En effet, à 711 eV précisément, le signal est non nul, mais il est difficile de savoir si le signal est dû à la largeur du pic centré à 709 eV, ou s'il est effectivement dû à la présence de Fe^{2+} .

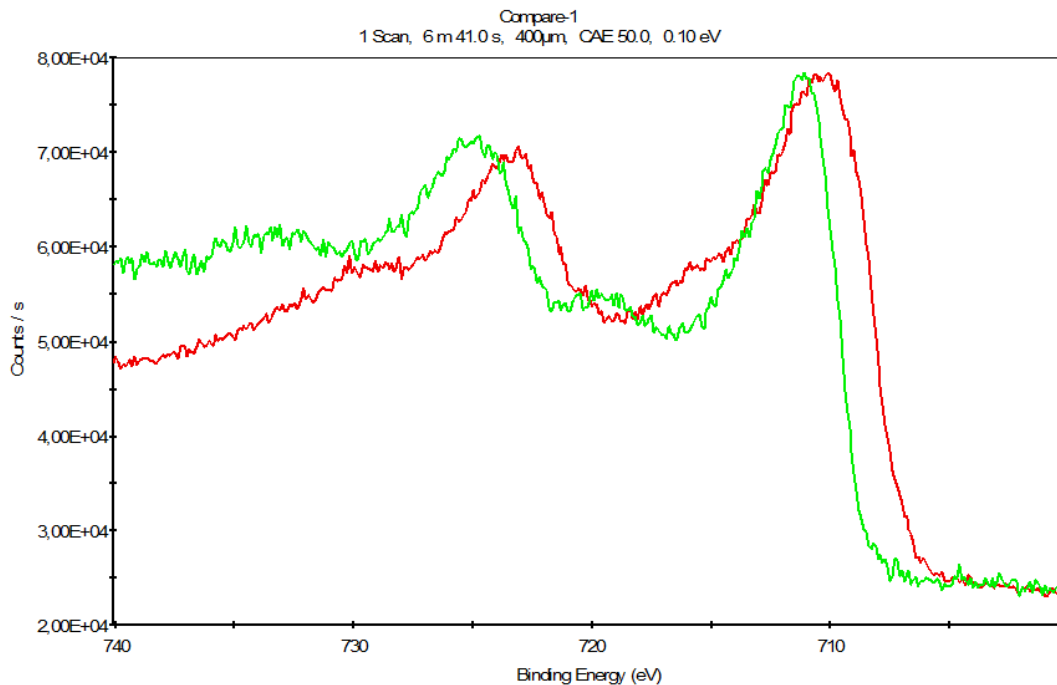


FIGURE 6.17 – Spectre XPS. Avant nettoyage par bombardement d'argon (en rouge), et après (en vert). Fe^{2+} : 709 eV, Fe^{3+} : 711 eV.

Par ailleurs, pour quelques échantillons, la présence de Fe^{2+} est indéniable, comme montré sur la figure 6.17. Cependant, un bombardement à l'argon permet de retirer les

premières couches atomiques, et une nouvelle mesure semble indiquer une diminution des ions Fe^{2+} . Pareillement, le signal à 709 eV n'est pas tout à fait nul, et il est difficile de savoir s'il doit être compté comme étant dans la largeur du pic à 711 eV. Ceci est embêtant, car même une petite quantité d'ions ferreux diminue drastiquement la résistivité.

En conclusion sur la mesure de spectroscopie photoélectronique X, on peut affirmer que les ferrites frittés par le procédé PECS contiennent du carbone ainsi que des ions Fe^{2+} . Ces espèces sont susceptibles de participer à la conductivité des ferrites. Cependant cette mesure indique aussi que ces espèces sont principalement en surface du matériau. Or, chaque échantillon avait été au préalable poli à l'aide d'une polisseuse afin de retirer le papiex, et la mesure XPS servait à vérifier la potentielle diffusion au cœur des matériaux. Il paraît peu probable que nous ayons arrêté le polissage exactement à l'endroit où il n'y a plus d'ion Fe^{2+} . En d'autres termes, tous les échantillons ont été polis, et l'abrasion de matière se fait sur plusieurs dizaines de microns ; une première mesure indique la présence de Fe^{2+} (courbe rouge de la figure 6.17) ; puis un nettoyage à l'argon enlève quelques couches atomiques et il relève l'absence de Fe^{2+} (courbe verte de la figure 6.17). Il paraît alors difficile de conclure avec certitude sur la faible résistivité des ferrites : carbone et ions ferreux sont bien présents, mais en quelle quantité ?

6.3.3 La spectrométrie Mössbauer

Une dernière expérience a été possible. Toujours sur le site CNRS de Thiais, nous avons pu utiliser un spectromètre Mössbauer. Cet appareil est très bien adapté pour détecter la présence d'ions Fe^{2+} car il est conçu pour déterminer l'environnement du fer ; mais aucune information supplémentaire sur le carbone ne peut être extraite. Nous avons réalisé une mesure sur l'échantillon présentant le plus fort défaut de fer $\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56}\text{Fe}_{1,90}\text{O}_4$. Nous avons pris soin de casser l'échantillon pour prendre une partie qui se trouve au cœur et nous avons obtenu le spectre suivant :

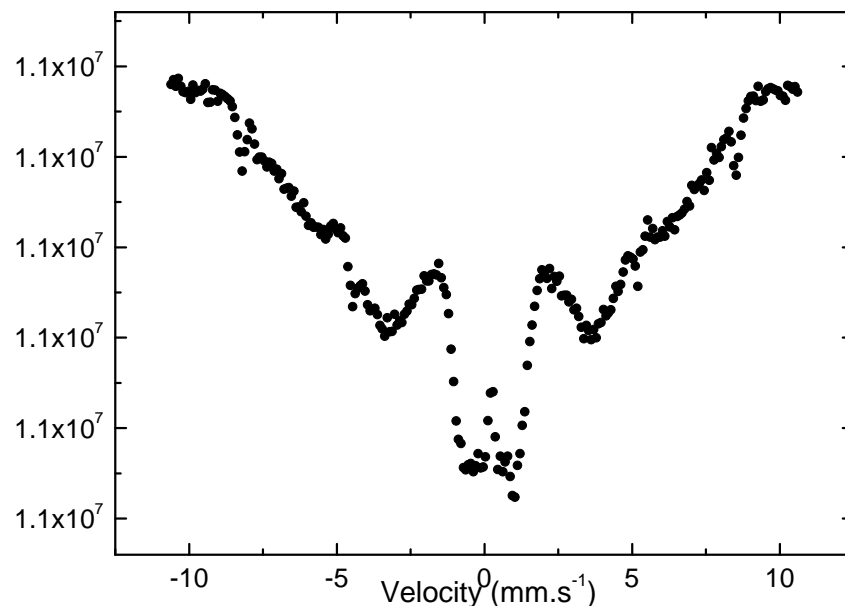


FIGURE 6.18 – Spectre Mössbauer de l'échantillon $\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56}\text{Fe}_{1,90}\text{O}_4$.

Le spectre Mössbauer obtenu est très bruité. Un œil aiguisé et habitué de cette technologie reconnaîtra tout de même un sextet parfaitement résolu. Ce sextet est ici synonyme

de la présence de Fe^{3+} dans un environnement de Fe^{3+} . Les atomes de fer présents dans l'échantillon sont donc des Fe^{3+} , ce qui est à mettre en corrélation avec le fait que la phase majoritaire est spinelle, qui contient les ions Fe^{3+} . A ce sextet, il vient s'ajouter une large distribution de champs hyperfins, qui se traduit par de larges raies internes sur le spectre. Cette large distribution signifie que l'environnement du Fe^{3+} est aussi très varié : outre les autres Fe^{3+} , les voisins d'un Fe^{3+} peuvent être très divers. Ceci se justifie par la formule chimique du ferrite qui fait intervenir plusieurs espèces : Ni, Cu, Zn, O. De plus, l'analyse obtenue par EDS montre que les échantillons possèdent une phase d'oxyde de nickel qui n'a pas réagi, ce qui diversifie une fois de plus l'environnement du fer. Enfin, on observe un déplacement isomérique, qui se traduit par l'excentricité sur le spectre. En effet, le spectre n'est pas centré sur 0, mais sur une valeur d'environ 1 mm.s^{-1} . Ce déplacement isomérique est exactement ce que l'on recherchait, car il traduit la présence de Fe^{2+} .

Malheureusement, le spectre étant trop bruité, il est difficile d'utiliser les outils classiques d'analyse. En effet, il aurait été bénéfique d'ajouter une courbe de tendance afin de pouvoir quantifier au mieux les détails énoncés précédemment.

6.3.4 Le recuit

Il existe néanmoins une méthode simple pour augmenter la résistivité. Il s'agit de procéder à un recuit sous air, ou mieux sous oxygène. Ce recuit a deux fonctions. La première fonction est de brûler le carbone résiduel. Nous avons utilisé un four pour faire des recuits sous air. Un morceau de papiex a été placé dans ce four, et il s'est volatilisé à une température comprise entre 700 et 800 °C. La seconde fonction est de réoxyder le matériau. Si on suppose que l'oxygène des oxydes se volatilise en partie durant le frittage en provoquant l'apparition des ions ferreux Fe^{2+} , réoxyder le matériau remodelera l'équilibre des charges, et les ions ferreux redeviendront des ions ferriques Fe^{3+} .

Cependant, il n'est pas souhaitable de recuire à trop haute température ni trop longtemps, car cela entraînerait une modification de la tailles des cristallites et donc des propriétés magnétiques. La question qui subsiste est : le recuit agit-il seulement en surface ou bien aussi au cœur du matériau ? Le procédé PECS permet d'atteindre des densités proches de la densité théorique (supérieure à 98 %), ce qui permet d'affirmer que la porosité est relativement fermée et que la diffusion des atomes d'oxygènes semble bien compromise. Mais si la volatilisation de l'oxygène durant le frittage ne se fait que sur l'extérieur des matériaux, alors le recuit est bien adapté. Tant de réflexions auxquelles il est difficile de répondre...

Dans son dernier article sur ses travaux de thèses, Karim Zehani mesure les résistivités de ferrite $\text{Ni}_{0,24}\text{Cu}_{0,20}\text{Zn}_{0,56}\text{Fe}_2\text{O}_4$. Sans que cela soit explicitement écrit dans l'article, il a procédé à un recuit, qu'il nomme décarburation dans son manuscrit de thèse. Typiquement il décarbure ses échantillons à 500 °C durant 1 heure sous air. Dans cet article, il donne les valeurs de résistivité suivantes pour huit échantillons :

TABLE 6.2 – Résistivité de ferrites décarburés à 500 °C pendant 1 heure [ZAL⁺14].

Échantillon	ρ ($\Omega.m$)
A	$5,15 \times 10^3$
B	$1,47 \times 10^3$
C	$0,58 \times 10^3$
D	$4,56 \times 10^3$
E	$5,22 \times 10^3$
F	$1,39 \times 10^3$
G	$0,34 \times 10^3$
H	$1,17 \times 10^3$

Ces valeurs de résistivités sont finalement du même ordre de grandeur que celles mesurées précédemment sans décarburation, dont les valeurs se lisent sur la figure 6.14. De plus, ces valeurs restent faibles par rapport à celles de la littérature, où des résistivité peuvent atteindre $10^8 \Omega.m$. Il semblerait qu'il faille augmenter la température de recuit. Nous avons procédé à un recuit de 800 °C pendant 1 heure sur quelques échantillons et la résistivité des échantillons a augmenté, mais de manière différente pour chacun des échantillons et sans non plus atteindre des valeurs très élevées.

Malheureusement, même si le recuit à 800 °C paraît un bon moyen palliatif pour diminuer la conductivité des ferrites fabriqués par le procédé PECS, il nous n'est pas possible d'y avoir recours. En effet, il ne faut pas perdre de vue que l'objectif majeur des travaux de thèses est de fabriquer un composant monolithique, dont la mise au point est détaillée dans le chapitre suivant, chapitre 7. Recuire un échantillon de ferrite est possible, mais cela n'est pas le cas pour un transformateur. Comme les différents matériaux présentent des coefficients de dilatation thermique hétérogènes, le ferrite des transformateurs craquèle sous l'effet des contraintes à partir d'une température avoisinant 500 °C.



FIGURE 6.19 – Après recuit à 500 °C, les transformateurs s'effritent facilement.

En conclusion, le recuit est recommandé pour les ferrites afin d'augmenter leur résistivité, mais il est destructeur pour les transformateurs.

6.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons essayé d'optimiser la composition chimique des ferrites fabriqués par frittage réactif.

Nous avons tout d'abord fritté des ferrites $(Ni_{0,24}Cu_{0,20}Zn_{0,56})_{1-x}Co_xFe_2O_4$ en jouant sur le taux de cobalt. Cette composition a déjà été fabriquée par frittage classique lors des travaux de thèse d'Anthony Lucas. Nous avons alors comparé les perméabilités initiales

des ferrites fabriqués par ces deux méthodes distinctes, et nous nous sommes rapidement aperçus que les résultats n'étaient pas concordants, et que contrairement au frittage classique, le taux de cobalt ne semblait pas avoir d'influence sur la perméabilité des ferrites frittés par le procédé PECS.

En utilisant un microscope électronique à balayage, puis une analyse EDS, il a été possible de constater que les matériaux n'étaient pas toujours très homogènes et qu'il pouvait se produire des agglomérats d'oxyde de nickel. Cette présence de phase parasite a aussi été détectée par des mesures DRX.

Par ailleurs, la résistivité des ferrites produits par le procédé PECS semble bien en deçà des valeurs usuelles issues de la littérature. Il est fort probable que la résistivité soit dégradée par deux facteurs : la diffusion du carbone du moule/papier dans l'échantillon d'une part, et la volatilisation de l'oxygène d'autre part. Après plusieurs investigations, ces hypothèses n'ont pu être clairement validées ou invalidées. Les différents tests laissent penser que ces deux mécanismes entrent en jeu, mais il n'a pas été possible de savoir dans quelles proportions. Un moyen relativement efficace pour diminuer la conduction est de recuire les matériaux ; malheureusement cette action est à proscrire pour les transformateurs à cause notamment des contraintes de dilatations thermiques.

Enfin, une comparaison avec un ferrite commercial vient nuancer le manque de résistivité des ferrites produits par le procédé PECS. L'entreprise Ferroxcube⁸ commercialise le ferrite nommé 4F1, qui est un ferrite Ni-Zn optimisé pour les fréquences de l'ordre du mégahertz. Ce matériau est donc comparable aux ferrites fabriqués durant ces travaux de thèse. La documentation technique indique que la résistivité DC est de $10^5 \Omega.m$, ce qui se rapproche des ferrites produits par le procédé PECS. Cette valeur permet de statuer sur le fait qu'il n'est pas toujours nécessaire d'obtenir les plus hautes résistivités possibles pour avoir des matériaux performants.

Nous avons donc fait le choix d'abandonner la piste du frittage réactif, car la priorité dans les travaux de thèses est de mettre au point un composant monolithiques plutôt que de continuer à améliorer les matériaux.

8. Ferroxcube Taiwan Headquarters, 3F, 233-1, Baoqiao Rd. Xindian Dist., New Taipei City 23145, Taiwan

Chapitre 7

La fabrication des transformateurs monolithiques

Sommaire

7.1	Introduction	139
7.2	Le cofrittage	140
7.3	Les matériaux	142
7.3.1	Les spirales de cuivre	143
7.3.2	Le diélectrique	149
7.3.3	Le matériau magnétique	151
7.4	L'assemblage et le cofrittage - version initiale	157
7.5	La validation du protocole par tomodensitométrie	159
7.5.1	1 ^{ers} essais : structure à contacts enfouis	160
7.5.2	2 ^{èmes} essais : structure à contacts sortis sur une face	161
7.5.3	3 ^{èmes} essais : structure à isolation renforcée	163
7.5.4	4 ^{èmes} essais : ajout de CaO dans le ferrite	165
7.5.5	5 ^{èmes} essais : ajout de peinture céramique sur le cuivre	167
7.5.6	6 ^{èmes} essais : ajout d'une protection céramique en alumine	170
7.5.7	7 ^{èmes} essais : ajout de deux protections céramiques	173
7.6	L'assemblage et le cofrittage - version finale	175
7.7	Conclusion	177

7.1 Introduction

Afin de réduire le volume des inductances dans les dispositifs électroniques ou d'électronique de puissance, il est intéressant de placer le conducteur à l'intérieur du matériau magnétique. Cette topologie a permis l'apparition d'inductance et transformateur dits planaires dont la conception est encore une voie de recherche [Orl07] [Tan12] [Dag13] [Ngu14]. Cependant, cette technologie n'est pas optimale du point de vue de l'espace occupé, notamment à cause de la couche en époxy sur laquelle sont gravées les pistes en cuivre.

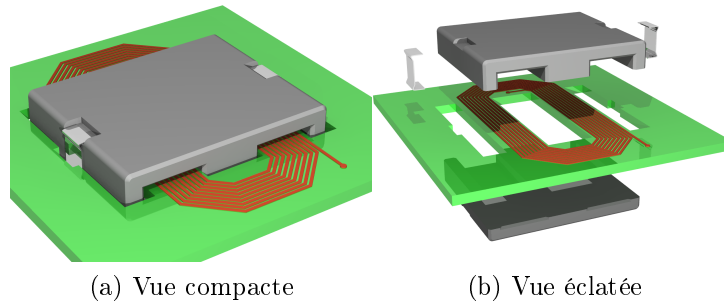


FIGURE 7.1 – Inductance planaire.

Pour s'affranchir de la couche en époxy, il suffit de ne pas l'utiliser ! On peut aussi imaginer réduire l'espace entre le cuivre et le matériau magnétique. Dans le meilleur des cas, il faudrait que le matériau magnétique épouse la forme du cuivre. Ceci est possible si le matériau magnétique est fritté tout autour du cuivre, on parle alors de cofrittage. Le problème immédiat qui se pose est le suivant : la température de frittage d'un ferrite spinelle est d'environ 1300 °C tandis que la température de fusion du cuivre est de 1080 °C. Pour pallier ce problème, deux options sont envisageables. La première est de trouver un conducteur ayant une température de fusion plus élevée (bon marché de préférence) ; et la seconde est de trouver un matériau ou une technologie permettant une plus faible température de frittage (place au PECS¹!).

Les premiers articles relatant de la fabrication de composants magnétiques monolithiques appliqués au génie électrique ont été publiés à l'ICF 6² en 1992. Des chercheurs de TDK ont présenté la fabrication de micro-inductances cofrittées. Les composants ont été fabriqués à partir de ferrite Ni-Cu-Zn et d'électrodes d'argent frittés ensemble à 870 °C [Nom92] [NN92] [MNSN92] [OMK92] [NMN92], et les résultats avaient déjà mis en évidence les problèmes de diffusion du métal.

De nombreuses études ont depuis été menées pour améliorer les cofrittages. En France, on peut citer ici des thèses qui ont permis des avancées notables : celles de Jérôme Ageron en 1999 [Age99], de Sonia Duguey en 2007 [Dug07], de Mehdi Ammar en 2007 [Amm07], d'Anthony Lucas en 2010 [Luc10], de Karim Zehani en 2011 [Zeh11], de YaYa Dagal Dari en 2013 [Dag13] d'Edouard Brun en 2014 [Bru14], de Thi Yen Mai Nguyen en 2014 [Ngu14].

La fabrication des transformateurs monolithiques est au cœur des travaux de cette thèse. Encore une fois, nous nous sommes basés sur les prémices qui se trouvent dans la thèse de Karim Zehani [Zeh11] où on peut y trouver des premières tentatives de réalisation de transformateurs monolithiques par le procédé PECS. On propose ici de détailler les différentes étapes du protocole de fabrication, en prenant soin de justifier au mieux les choix technologiques qui y sont faits.

7.2 Le cofrittage

La faible température (< 900 °C) et la faible durée (< 10 min) de frittage des ferrites Ni-Cu-Zn par le procédé PECS permet de cofritter le matériau magnétique avec du cuivre massif. En effet, il est possible d'insérer du cuivre dans de la poudre prête à être frittée.

1. PECS est l'acronyme de Pulsed Electric Current Sintering.
2. International Conference on Ferrite

Le cuivre reste inerte durant toute l'opération du frittage. Notamment, on peut montrer que le cuivre ne diffuse pas au sein du ferrite. Pour cela, une imagerie par MEB³ est effectuée, ainsi qu'une cartographie des éléments chimiques grâce à une analyse EDS⁴

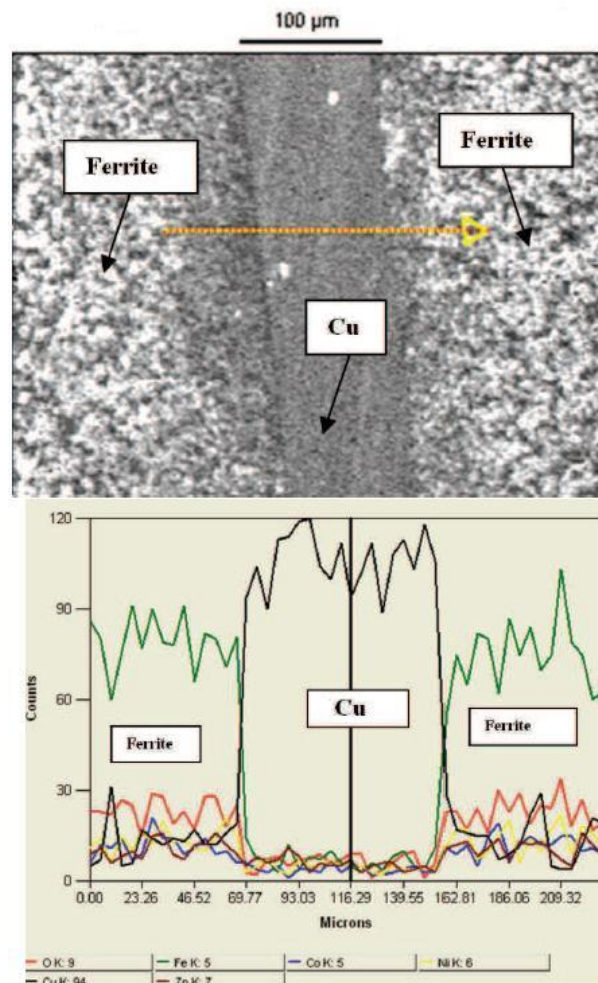


FIGURE 7.2 – Coupe d'un morceau de cuivre cofritté avec un ferrite de Ni-Cu-Zn. Sur un segment, représenté par la flèche orange, une analyse EDS donne la nature des éléments chimiques [Zeh11].

Sur la figure 7.2, l'analyse montre les différents éléments chimiques. En vert, le fer est bien présent de part et d'autre du cuivre, ce qui montre qu'il n'y a pas de diffusion du fer dans le cuivre. On précise que le fer est bien celui de l'oxyde de fer, car l'analyse EDS ne permet pas de mesurer le degré d'oxydation de l'élément. En noir, le cuivre est présent au centre de la zone analysée, mais aussi dans le ferrite. Comme il n'y a pas de diffusion du ferrite dans le cuivre massif, on suppose ici que le cuivre détecté dans le ferrite est sous forme d'oxyde, car il s'agit d'un ferrite Ni-Cu-Zn. Enfin, on relève aussi la présence de cobalt, en bleu, car sur cet échantillon une substitution avait été faite.

Par ailleurs, on insiste sur le terme cofrittage. Durant la phase de chauffe à 800 °C, les particules de ferrites viennent se lier au cuivre. L'interface cuivre-ferrite n'est pas juste

3. Microscopie Électronique à Balayage. SEM en anglais pour Scanning Electron Microscopy.

4. analyse dispersive en énergie, l'acronyme correspond au nom en anglais : Energy-Dispersive X-ray Spectroscopy. Il est possible de trouver plusieurs noms correspondant à cette spectroscopie : EDS, EDX, or XEDS.

une apposition des deux matériaux, car une fois le frittage terminé, il n'est pas possible de désassembler le composant (du moins manuellement), autrement dit, le ferrite vient se fritter sur le cuivre.

Une première inductance a été réalisée par cofrittage PECS, et est décrite dans le rapport de stage de Quentin Beaudouin [Bea11] ainsi que dans la thèse de Karim Zehani [Zeh11]. Une spirale de cuivre à quatre spires a servi pour le conducteur électrique, et une poudre de ferrite Ni-Cu-Zn a servi de matériau magnétique. La géométrie est la suivante :

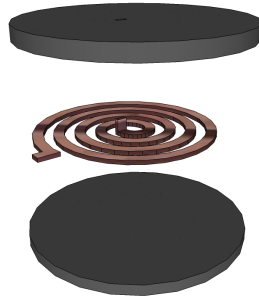


FIGURE 7.3 – Vue éclatée d'une inductance monolithique cofrittée par le procédé PECS de diamètre 20 mm et d'épaisseur 3 mm[Bea11].

Pour ce composant, l'inductance mesurée est d'environ 2 nH pour une fréquence allant jusqu'à 12 MHz.

7.3 Les matériaux

Pour fabriquer des transformateurs, différents matériaux sont nécessaires, à savoir un matériau magnétique, un matériau conducteur, et un matériau isolant. L'objectif est d'obtenir un composant sur le modèle de la figure 7.4.

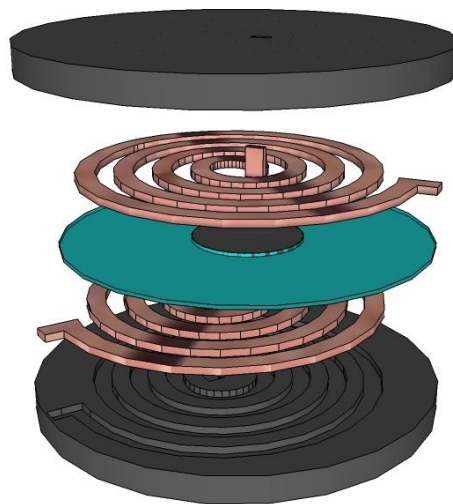


FIGURE 7.4 – Vue éclatée d'un transformateur.

7.3.1 Les spirales de cuivre

Compte tenu de la géométrie du moule en carbone pour fritter, les topologies possibles pour le conducteur sont restreintes. De manière analogue aux inductances planaires, le choix se porte vers une géométrie spiralée. Afin de maximiser les valeurs des inductances du transformateur, il est souhaitable d'avoir le plus de spires possible. Cependant, trois facteurs vont limiter le nombre de spires. Premièrement, le diamètre du moule en carbone qui n'est que de 20 mm. Deuxièmement, la technologie de fabrication des spirales, où il est difficile d'usiner des objets de l'ordre du millimètre. Troisièmement, il est nécessaire d'avoir des objets suffisamment volumineux pour garder une tenue mécanique lors du frittage⁵. En conséquence, nous avons opté pour des spirales ayant quatre spires, une largeur de cuivre de 0,5 mm, une épaisseur de 0,5 mm, ainsi qu'une distance inter-spire de 0,5 mm également.

En premier lieu, nous avons utilisé des spirales usinées chimiquement par la société Chimicmetal⁶. De manière analogue à la technologie de fabrication des circuits imprimés, leur procédé consiste à attaquer avec de l'acide une plaque de cuivre. On montre sur la figure 7.5 une photographie de ces spirales.

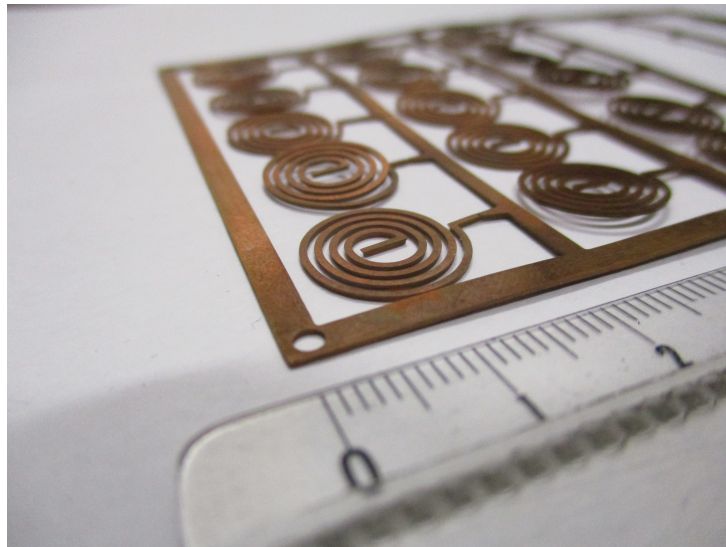


FIGURE 7.5 – Spirales Chimicmetal gravées chimiquement.

Ces spirales sont extrêmement bien usinées dans le sens où la surface est bien lisse, et elles respectent correctement les dimensions souhaitées. L'épaisseur est de 0,5 mm. Elles ont en revanche l'inconvénient d'être relativement onéreuses : le lot de 25 spirales coûtent environ 500 euros.

Afin de pouvoir changer à souhait la géométrie, nous avons décidé de les réaliser par nous-mêmes. Pour cela, nous avons décidé d'utiliser le même principe technologique qui est l'attaque chimique. Cependant, nous n'avons pas trouvé dans le commerce des plaques de cuivre présensibilisées, c'est-à-dire ayant un film photosensible servant de protection contre l'acide sur les surface du cuivre ne devant pas être usinées. Qu'à cela ne tienne, nous allons le réaliser par nos propres moyens. Nous nous sommes procurés des feuilles de

5. On rappelle que durant le frittage, une pression uniaxiale de 50 MPa est appliquée, et il est préférable que les spirales supportent ces forces pour ne pas se retrouver déformées.

6. Chimicmetal, 41 rue des Coteaux, 94100 Saint-Maur-des-Fossés.

cuivre chez Radiospare⁷. Ces feuilles carrées ont une largeur de 300 mm et une épaisseur de 0,45 mm. A cela, nous avons ajouté une résine photosensible en spray, achetée chez Farnell⁸.

Afin de déposer une épaisseur de résine uniforme sur le cuivre, nous avons eu recours à la technique de l'enduction centrifuge⁹. Par la suite, nous avons classiquement utilisé une insoleuse, puis un révélateur et enfin une gravure à l'aide de perchloreure de fer. Cependant, l'attaque chimique n'a pas été concluante, car la dissolution du cuivre ne s'est pas faite de manière homogène. Certaines parties se sont gravées rapidement, tandis que d'autres pas assez. Après analyse visuelle par un microscope optique, nous avons conclu que malgré le spinner, l'épaisseur de résine photosensible n'est pas uniforme sur l'ensemble du cuivre. Ceci peut s'expliquer par le fait que nous avons mal utilisé ce procédé de dépôt : nous nous sommes servis d'une résine en spray alors qu'il aurait été plus judicieux d'utiliser une résine liquide adaptée à cette technologie. Cependant, même parmi les peu de zones où le dépôt semblait homogène, l'attaque chimique quant à elle ne l'était pas.

Afin de palier la difficulté d'obtenir une épaisseur de résine constante, nous nous sommes tournés vers les films photosensibles. Comme ils sont fabriqués en rouleau, leur épaisseur est très bien contrôlée. Néanmoins, il est difficile de les appliquer à la main sur le cuivre, car des défauts peuvent se former facilement, principalement des bulles et des plis. Nous avons eu recours à une plastifieuse^{10 11}.



FIGURE 7.6 – Plastifieuse Profilum 325R6.

L'utilisation est simple : il suffit d'insérer la plaque de cuivre entre deux feuilles de film photosensible dans la plastifieuse. Deux rouleaux vont ensuite entraîner l'ensemble

7. Entreprise rebaptisée RS Components en 1971, mais dont le nom Radiospares subsiste largement dans le langage courant. RS Components, Weldon Industrial Estate, Lammas Rd, Corby NN17 5JF, Royaume-Uni.

8. Farnell element14, Canal Road, Leeds LS12 2TU, Royaume-Uni.

9. L'enduction centrifuge ou enduction par centrifugation (plus connue sous son nom anglais de spin coating) est une technique de déposition de couche mince et uniforme sur la surface plane d'un substrat. Les principales applications de l'enduction centrifuge sont en microélectronique. La machine utilisée pour cette opération est appelée spin coater ou spinner en anglais.

10. Une plastifieuse est prévue pour plastifier, c'est-à-dire recouvrir un objet par une couche en matière plastique, comme par exemple une carte d'identité. Il est possible de trouver ce type de produit sur plastifieuses.com

11. On remercie au passage Claude Raffo, du centre d'impression numérique de l'ENS Cachan, pour nous avoir permis de réaliser un premier test sur une des plastifieuses de l'atelier de reprographie.

et exercer une pression qui va permettre au film d'adhérer au cuivre. Pour faciliter ce procédé, la plastifieuse permet de chauffer l'ensemble cuivre-film.

Par la suite, nous avons à nouveau utilisé une insoleuse, puis un révélateur et enfin une gravure à l'aide de perchlore de fer. Les résultats obtenus sont de meilleure qualité, mais ce n'est pas suffisant¹². Par exemple, la gravure n'est toujours pas homogène, et quelques parties des spires se trouvent attaquées chimiquement.

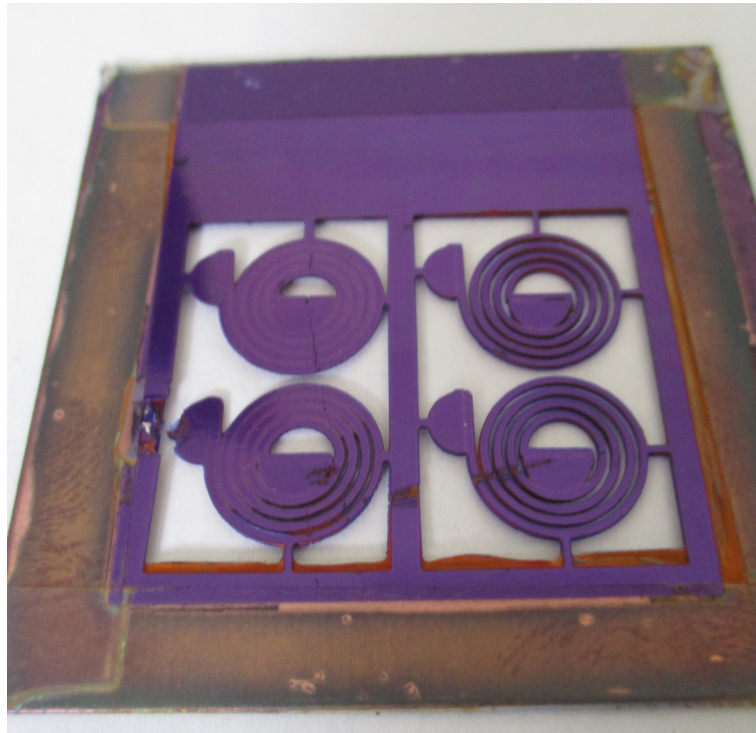


FIGURE 7.7 – Spirales usinées chimiquement avec un film appliqué par la plastifieuse.

Sur la figure 7.7, on relève bien l'inhomogénéité de la gravure. La spirale en haut à droite est presque parfaitement usinée, tandis que celle qui est en haut à gauche ne l'est pas du tout. Les deux spirales du bas sont quant à elles, à moitié usinées. Une solution est de recouvrir par du scotch les spirales en bon état, et de passer une nouvelle fois la plaque de cuivre dans le bain de perchlore de fer. Cependant, il reste difficile d'obtenir des résultats identiques.

12. Cette technique de gravure, utilisée avec du matériel adéquat (et très onéreux, permet d'atteindre des résolutions de l'ordre du micromètre. Des exemples de réalisation pour la microfluidique sont visibles dans une publication de 2007 [SPR⁺07].

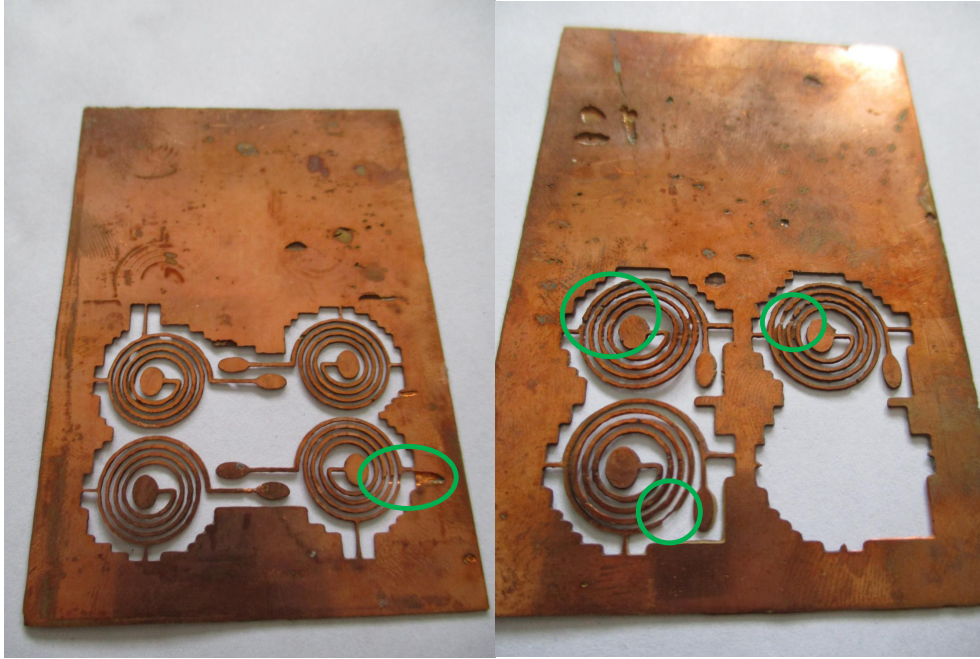


FIGURE 7.8 – Exemples de surgravure.

Sur la figure 7.8, on observe clairement des zones où les spires de spirales ont été attaquées chimiquement. On l'explique par le fait que malgré la protection du film, la réaction chimique a pu se faire car l'épaisseur de la plaque de cuivre est trop importante et le perchlorure de fer agit aussi latéralement. Cette dégradation entraîne une fragilisation des spirales, ce qui détériore grandement la tenue mécanique et donc ne permet pas d'envisager un cofrittage. A l'inverse, certaines spires ne sont pas assez usinées, et il réside quelques dendrites en cuivre. Ces excédents ne sont pas souhaitables, car ils peuvent facilement engendrer des court-circuits entre spires.

Tout de même, parmi tous les essais que nous avons menés, quelques spirales semblaient fonctionnelles, mais elles représentent un taux trop faible par rapport au nombre de tentative. Pour cette raison, nous avons souhaité une technologie plus adaptée pour la production de spirales.

Premièrement, nous avons envisagé un usinage mécanique, à l'aide d'une fraiseuse à commande numérique. Sachant que le cuivre est un matériau qui s'usine très mal à cause de sa faible dureté, nous avons utilisé une fraiseuse adaptée pour usiner du cuivre sur un support en époxy¹³. Cependant, cet outil est conçu pour usiner une épaisseur de cuivre de $35\ \mu\text{m}$, et non pas une épaisseur de $450\ \mu\text{m}$ comme c'est le cas des plaques de cuivre. Le principal résultat de cette expérience est que nous avons cassé plusieurs fraises.

Deuxièmement, nous avons envisagé une découpe laser. La personne en charge de cet équipement nous a déconseillé cette technologie car la géométrie souhaitée n'est pas adaptée. En effet, le laser est très utile pour découper des larges tôles de métal, mais dans notre cas, on souhaite obtenir des objets millimétriques. De plus, la géométrie n'est pas favorable, car le faisceau laser reste concentré relativement longtemps sur une zone (au centre de la spirale) et cela risque d'échauffer suffisamment le cuivre pour le faire fondre (ou du moins le déformer sous l'action de son propre poids).

13. Cette technologie s'appelle aussi la gravure à l'anglaise. Elle permet de réaliser des circuits imprimés non plus à l'aide d'une attaque chimique, mais simplement en retirant le cuivre à l'aide d'une fraise.

Troisièmement, nous avons envisagé une découpe par jet d'eau. Ici aussi, la personne en charge de cet équipement nous a déconseillé cette technologie car ici aussi la géométrie souhaitée n'est pas adaptée. Les petites dimensions des spires impliquent que le cuivre ne supporterait pas les fortes pressions issues du jet d'eau. Même si le cuivre est fixé sur un support pour la découpe, on peut facilement imaginer qu'au moment où le jet se focalisera sur le centre de la spirale, celle-ci se déformera dans le sens de la profondeur.

Finalement, la solution miracle s'est trouvée être l'électro-érosion par fil¹⁴. Le principe est simple et bigrement efficace. Un fil est porté à une haute tension, tandis que la pièce à usiner est mise à la masse. En approchant le fil près de la pièce, il se crée une étincelle lorsqu'il y a claquage électrique de l'air. Cette étincelle vient vaporiser de la matière issue de la pièce (et du fil), puis un jet d'eau vient expédier les parties volatilisées. Le fil est quant à lui monté sur un rouleau pour qu'il soit continuellement renouvelé. Nous avons utilisé le modèle Robofil 300 de Charmilles Technologies¹⁵.



FIGURE 7.9 – Robofil 300 Charmilles Technologies.

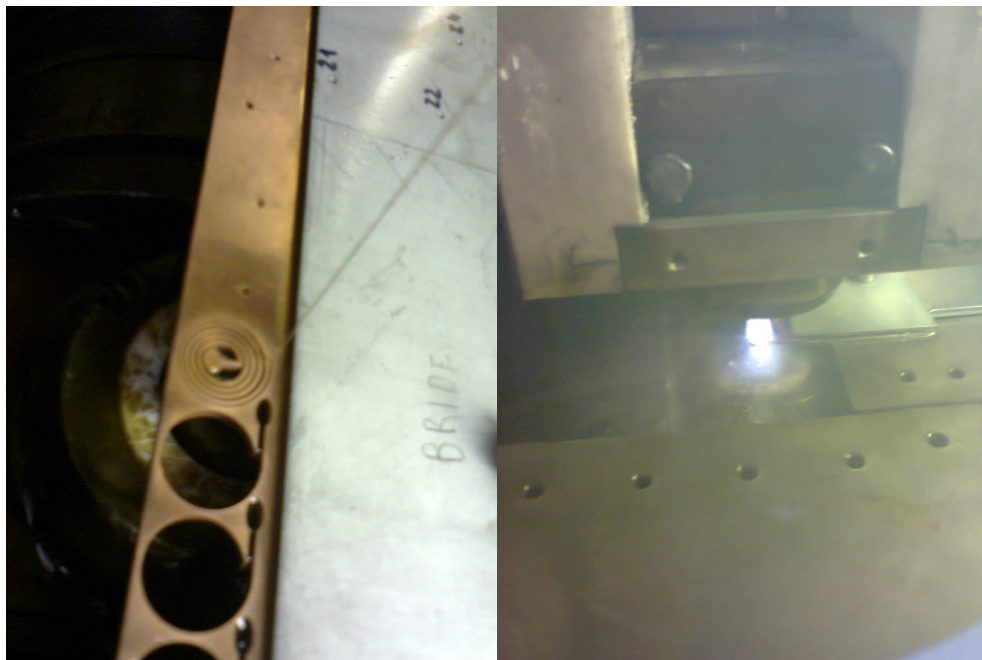
Cette technologie présente de nombreux avantages. Elle se caractérise par son aptitude à usiner tous les matériaux conducteurs de l'électricité (métaux, alliages, carbures, graphites, etc.) quelle que soit leur dureté. De plus, elle présente une très bonne précision, car elle dépend de la précision de déplacement du fil et qui est en général bien maîtrisée. Enfin, ce qui est primordial pour la réalisation des spirales, c'est qu'il n'y a pas d'actions mécaniques entre la pièce et l'outil, donc pas de déformations sur la matière à usiner. De plus, il nous a été possible d'empiler les plaques de cuivre afin d'usiner plusieurs spirales simultanément.

En revanche, cette technique possède ses propres inconvénients. Une condition sine qua non est d'usiner un matériau conducteur. On peut citer ici la lenteur de l'usinage

14. EDM en anglais pour Electrical Discharge Machining.

15. 8-10, rue du Pré-de-la-Fontaine 1217 Meyrin Suisse

en comparaison à un usinage par fraisage. Enfin, même si le renouvellement du fil se fait de manière continue, il n'a pas été rare dans notre cas de le voir se casser, sans doute à cause du passage d'un trop grand courant (autrement dit une grosse étincelle).



(a) à l'arrêt

(b) en fonctionnement

FIGURE 7.10 – Electro-érosion.

Sur la figure 7.10, on remarque le fil permettant la découpe lorsque la machine est à l'arrêt, et lorsqu'elle est en fonctionnement, on remarque les arcs électriques se former entre le fil et la pièce à usiner.

Enfin on présente sur la figure 7.11 une photographie des spirales qui seront par la suite utilisées dans les transformateurs.



FIGURE 7.11 – Spirales usinées par électro-érosion.

7.3.2 Le diélectrique

Le diélectrique est un élément sensible pour les transformateurs. Même si sa seule fonction est d'isoler électriquement les spirales de cuivre, il est nécessaire qu'il supporte l'opération de frittage, c'est-à-dire qu'il faut qu'il résiste à une haute température de 800 °C et une pression de 50 MPa. De plus, afin d'éviter toute contrainte résiduelle dans le transformateur fritté, il est souhaitable que le diélectrique ait des coefficients de dilatation thermique du même ordre de grandeur que le ferrite et que le cuivre. Avec seulement ces trois contraintes, peu de matériaux peuvent prétendre jouer correctement ce rôle.

Dans la littérature, il est possible de trouver plusieurs exemples d'essais où les auteurs ont testé des diélectriques pour le cofrittage. En l'an 2000, Yamaguchi a utilisé un diélectrique à base de TiO_2 avec des bandes de ferrite Ni-Cu-Zn. A cause d'une trop grande différence des coefficients de dilatation thermique, l'auteur relève l'apparition de nombreuses fissures. De manière similaire, Hagymasi en 2005 [HRK⁺05] cofritte un diélectrique commercial DuPont 951 avec un ferrite Ni-Cu-Zn à une température de 900 °C, et il a lui aussi observé des fissures dans le ferrite. Anthony Lucas en 2010 et Karim Zehani en 2011 utilisent à nouveau le Dupont 951, et ils observent que la phase vitreuse est trop importante qui non seulement vient polluer le ferrite, mais qui permet au diélectrique de se déformer. Enfin, Édouard Brun en 2014 change de voie : plutôt que d'utiliser un diélectrique classique, il utilise astucieusement un ferrite Ni-Cu-Zn ayant un fort taux de zinc, et qui se trouve être paramagnétique à température ambiante. L'utilisation d'un ferrite paramagnétique comme diélectrique réduit grandement les problèmes de dilatation thermique, mais les prototypes fabriqués doivent néanmoins passer par une étape de barbotine.

Dans cette thèse, nous sommes partis dans l'objectif d'utiliser un matériau réfractaire. Comme les ferrites sont des céramiques, nous avons instinctivement eu l'idée d'utiliser une céramique, mais frittant à une température supérieure à la température de frittage des ferrites Ni-Cu-Zn. Nous avons simplement opté pour l'alumine Al_2O_3 . Nous nous sommes

procurés des rondelles d'alumine, correspondant au dessin de la figure 7.4, chez Sceram Ceramics¹⁶. Les dimensions des rondelles sont de 16 mm pour le diamètre extérieur, 5 mm pour le diamètre intérieur, et 0,2 mm pour l'épaisseur.

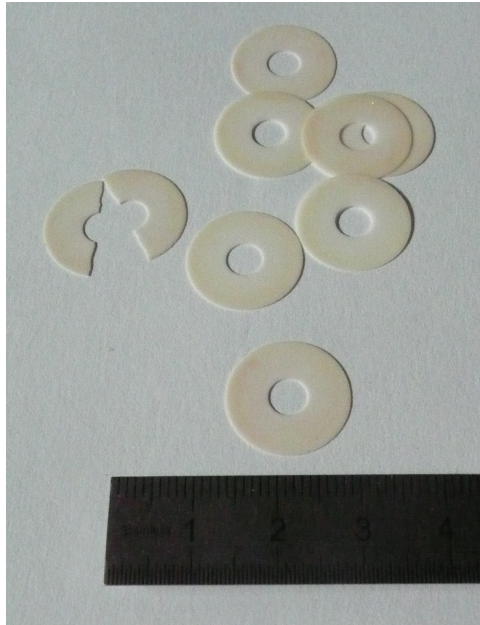


FIGURE 7.12 – Rondelles en alumine.

La première vérification effectuée est la tenue en température. Quelques rondelles ont été placées dans un four classique pendant une heure à 1000 °C. Une fois redescendues à température ambiante, les rondelles n'avaient aucunement changé d'apparence, à tel point qu'il n'est pas possible de distinguer une rondelle qui a été chauffée d'une autre qui ne l'a pas été. Néanmoins, on relève sur la figure 7.12 que ces rondelles sont très fragiles, et qu'une simple pression exercée par les doigts suffit à les briser, ce qui n'est pas encourageant pour un cofrittage PECS où une forte pression est appliquée.

Un autre matériau a été sélectionné. Il s'agit du mica sous forme de feuilles, ou encore appelé papier mica. Ce matériau est utilisé pour ses propriétés d'isolant électrique et de résistance à la chaleur dans plusieurs domaines d'application. Dans le domaine du génie électrique, le mica peut être trouvé comme diélectrique dans certains condensateurs moyenne et haute tension en haute fréquence. Il peut aussi se trouver sous forme de feuille isolante électriquement (souvent enduite de pâte thermique) entre un composant électronique (comme un transistor de puissance) et un dissipateur. C'est précisément ce produit qu'on cherche à se procurer. Il est possible d'en acheter sur tme.eu.

16. 10 rue des Rosiéristes - Bâtiment C, ZAC des Carrés du Parc, 69410 Champagne au Mont d'Or

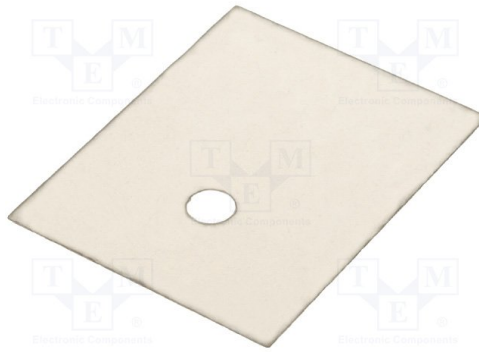


FIGURE 7.13 – Plaque en mica. Isolant électrique et conducteur thermique pour composant de puissance.

Par chance, il a été possible de le trouver directement sous forme de rondelle, et aux bonnes dimensions, ce qui a évité toute forme de redécoupe. Les rondelles peuvent être achetées chez le distributeur Farnell (sous le nom de kit d'isolation, référence 520-070), avec comme dimensions 16 mm de diamètre extérieur, 5 mm de diamètre intérieur, avec une épaisseur variant de 0,05 mm à 0,10 mm selon les échantillons.

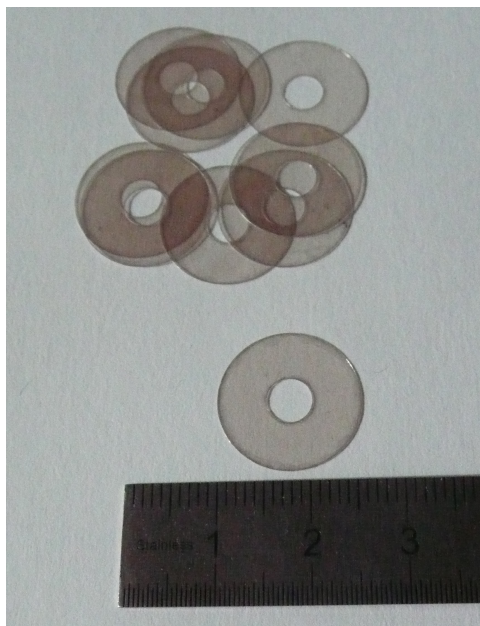


FIGURE 7.14 – Rondelles en mica.

Ici aussi, une première vérification de tenue en température a été réalisée dans un four 1000 °C pendant une heure. Aucun changement d'apparence n'a été à signaler. Comparées aux rondelles d'alumine, les rondelles de mica sont bien plus souples, ce qui est cette fois encourageant pour un cofrittage sous pression.

7.3.3 Le matériau magnétique

Compte tenu des différentes expériences précédentes des chapitres 5 et 6 qui n'ont pas été concluantes, nous avons choisi d'abandonner le frittage réactif car il est plus difficile de connaître la formule chimique brute des ferrites produits. Nous nous sommes

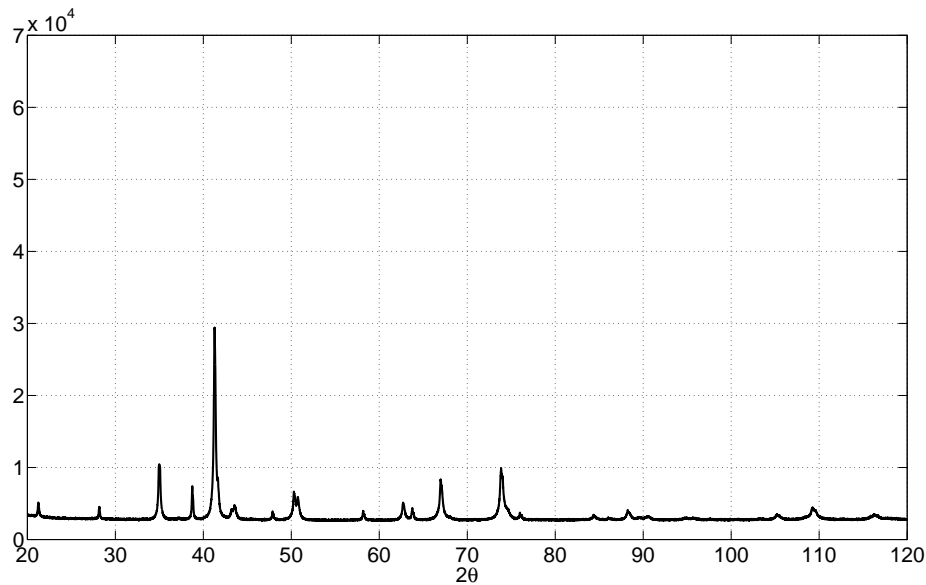
alors penchés sur un ferrite pouvant être fritté par un frittage simple, à une température proche de 800 °C. Le choix s'est donc porté sur de la poudre de ferrite spinelle fabriquée par Marion Technologies évoquée précédemment, dans la sous-section 4.4.2. La formule brute du ferrite est $\text{Ni}_{0,27}\text{Cu}_{0,16}\text{Zn}_{0,57}\text{Fe}_2\text{O}_4$. Cette composition a été optimisée par Anthony Lucas, non pas durant ses travaux de thèse, mais durant ses travaux de post-doctorat au laboratoire Laplace à Toulouse. Une attention particulière est portée sur la taille des particules : on rappelle que pour favoriser le frittage, il est souhaitable d'avoir des tailles de particules de l'ordre de la centaine de nanomètres.

Après quelques essais préliminaires, nous avons constaté que la poudre de ferrite $\text{Ni}_{0,27}\text{Cu}_{0,16}\text{Zn}_{0,57}\text{Fe}_2\text{O}_4$ fritte à 900 °C, mais la densité n'est pas suffisante. Les mesures donnent une moyenne de 4,7. Pour augmenter la densité, nous avons recours à l'utilisation de fondants. Techniquement, cela permet de passer d'un frittage en phase solide [BAB05a] à un frittage en phase liquide [BAB05b]. Comme son nom l'indique, l'objectif du fondant est de fondre, et cela à une température inférieure à celle du frittage pour créer une phase liquide. Cette phase permet une plus grande diffusion des ions et donc de réduire la porosité du composant fritté. Réduire la porosité revient à augmenter la densité. Il en résulte qu'il est possible d'obtenir des ferrites denses à une température encore plus faible. On trouve dans la littérature plusieurs espèces chimiques utilisées comme fondant : SiO_2 , Bi_2O_3 , $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$, PbO , MoO_3 , V_2O_5 ... C'est cette dernière espèce que nous avons choisi, car son point de fusion est d'environ 680 °C, ce qui est proche de la température de frittage.

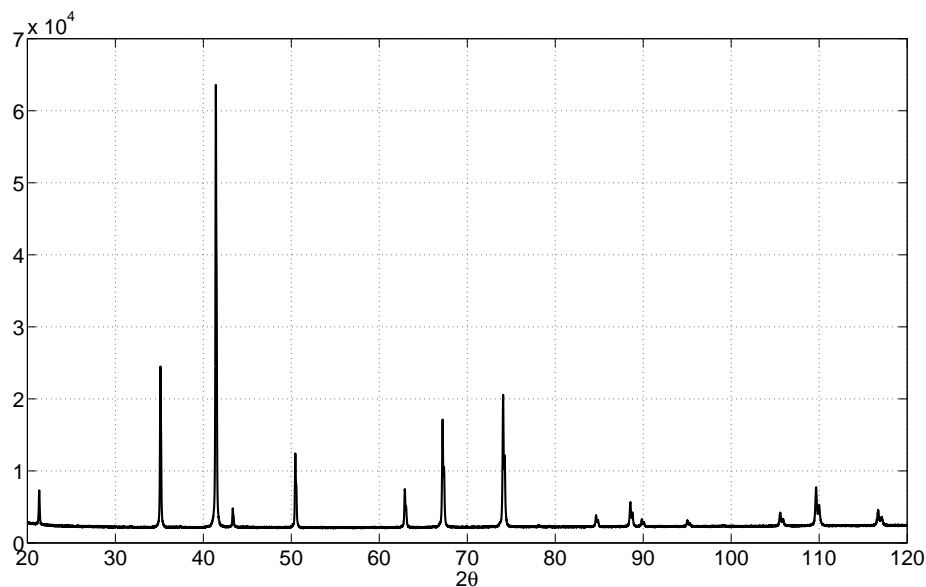
Concernant le pentoxyde de vanadium V_2O_5 , on peut citer plusieurs références indiquant les effets. En 1973, Kulikowski montre qu'un petit ajout de V_2O_5 (inférieur à 0,5 % massique) permet d'augmenter la densité des ferrites Ni-Zn, mais sans précision quant à la composition exacte du ferrite [Kul73]. Par la suite, Jain en 1979 étudie la densification et les propriétés magnétiques des ferrites $\text{Ni}_{0,58}\text{Zn}_{0,40}\text{Fe}_{2,02}\text{O}_4 + x\text{V}_2\text{O}_5$ et $\text{Ni}_{0,62}\text{Zn}_{0,40}\text{Fe}_{1,98}\text{O}_4 + x\text{V}_2\text{O}_5$ avec $0,000 < x < 0,010$ pour des températures de frittage allant de 1100 à 1250 °C. Les auteurs concluent qu'un ajout de pentoxyde de vanadium permet une meilleure densification des ferrites sous-stœchiométrique en fer, une augmentation de la perméabilité, une diminution des pertes magnétiques, ainsi que la diffusion des ions V^{5+} dans la maille spinelle [JDG79]. Ensuite, Hsu en 1995 publie une étude sur l'ajout de V_2O_5 sur les ferrites Ni-Cu-Zn. Une investigation imagée à l'aide d'un microscope électronique en transmission permet aux auteurs de conclure sur le fait qu'une bonne densité est obtenue avec un ajout 0,50 % molaire de V_2O_5 avec un frittage à 900 °C [HKC95]. En 2007, Parvatheeswara décrit l'influence d'un ajout de V_2O_5 sur le ferrite $\text{Ni}_{0,65}\text{Zn}_{0,35}\text{Fe}_2\text{O}_4$ fritté à 1210 °C. L'ajout est de 0,0 à 1,5 % massique par pas de 0,3 %. Les auteurs concluent en signalant que la résistivité semble augmenter, que la perméabilité diminue, mais que les pertes magnétiques augmentent dues à la présence de cristallites plus grande (4,9 μm sans V_2O_5 , et 7,8 μm avec 1,5 % massique) [PKK07]. En 2007 également, Richard Lebourgeois publie lui aussi sur l'addition de V_2O_5 pour réduire la température de frittage et augmenter la densification du ferrite $\text{Ni}_{0,24}\text{Zn}_{0,55}\text{Cu}_{0,2}\text{Co}_{0,02}\text{Fe}_{1,99}\text{O}_4$. L'addition est de 0,6 %, 0,8 %, 1,0 % et 1,2 % massique pour un frittage à 800 °C sous air. Une fois frittés, les auteurs observent que les ferrites ont des tailles de particules très hétérogènes, mais qu'en moyenne la taille augmente avec l'ajout de pentoxyde de vanadium. Ils concluent eux aussi en signalant que ces ajouts permettent de fritter à plus basse température mais que les propriétés magnétiques sont dégradées, notamment la perméabilité et les pertes [LDGH07]. Enfin, en 2010, Kaiser publie un compte-rendu détaillé en reprenant plusieurs éléments bibliographique pour évaluer l'influence du V_2O_5 sur la conductivité

et la croissance de grain d'un ferrite Ni-Zn-Cu [Kai10].

A la vue de toutes ces études, il est difficile d'estimer précisément la quantité nécessaire à ajouter dans la poudre de ferrite pour ne pas détériorer les propriétés magnétiques. Cependant, une tendance est quand même observée : l'ajout de V_2O_5 permet d'augmenter la densité. En conséquence, nous avons arbitrairement choisi d'ajouter 1 % massique de pentoxyde de vanadium dans le ferrite $Ni_{0,27}Cu_{0,16}Zn_{0,57}Fe_2O_4$. Pour cela, nous avons utilisé la poudre brute de Marion Technologies et nous l'avons calciné à 1000 °C sous air pendant 2 heures. Cette nouvelle calcination permet de s'assurer de l'omniprésence de la phase spinelle.



(a) avant calcination



(b) après calcination

FIGURE 7.15 – Spectres de diffraction de rayons X de la poudre de ferrite de spinelle.

On remarque sur les spectres l'intérêt d'effectuer une nouvelle calcination. Avant cal-

ination, on observe de nombreux pics qui sont non seulement dûs à la phase spinelle, mais aussi à la présence d'oxydes simples qui non pas réagis. Nous avons pu notamment identifier des pics correspondant à de l'hématite Fe_2O_3 . A cause de la présence de ces deux phases, le logiciels de traitement de données ne nous a pas permis d'estimer clairement la taille moyenne des cristallites. Après calcination, il ne reste que les pics liés à la phase spinelle. On remarque que ces pics se sont aussi affinés, ce qui laisse entendre que les cristallites ont grossi sous l'effet de la température. On estime ici la taille moyenne des cristallites à 283 nm.

Par la suite, nous avons à nouveau eu recours au broyeur pour mélanger l'oxyde de vanadium à la poudre de ferrite spinelle. Dans une jarre, nous avons placé 5,5 grammes de poudre auxquels nous avons additionné 55 milligrammes de V_2O_5 . Nous avons utilisé 18 billes en acier chromé de diamètre 7 millimètres et de masse 1,4 grammes. Quelques gouttes d'éthanol sont nécessaires pour lubrifier. La jarre est placée dans le broyeur pulverisette 6 pendant une durée 3 heures à une vitesse 450 tours par minute. Afin d'évaluer l'influence de cet ajout, nous avons commencé par faire l'acquisition d'un spectre de diffraction de rayons X sur cette poudre directement sortie d broyage.

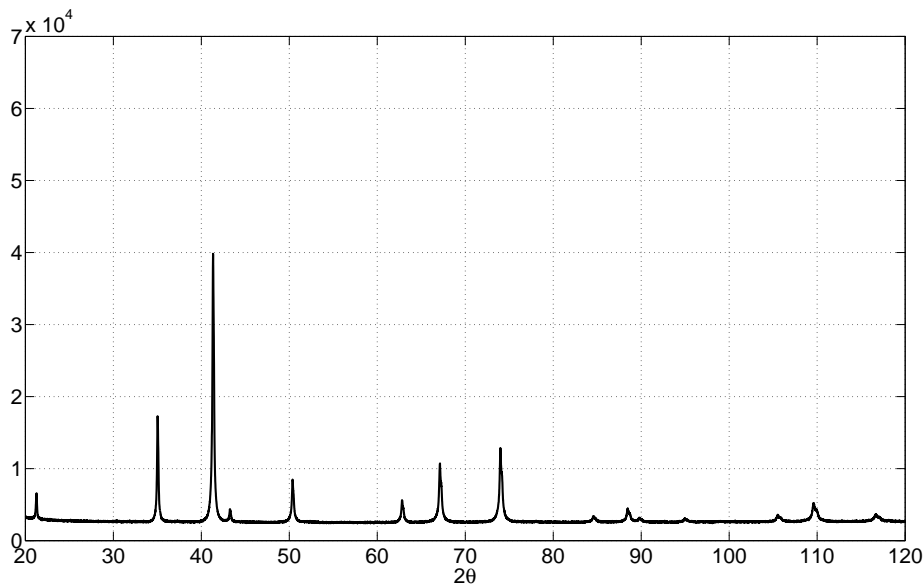


FIGURE 7.16 – Spectres de diffraction de rayons X de la poudre de ferrite de spinelle broyée avec du pentoxyde de vanadium V_2O_5 .

On note que le nombre de pics du diffractogramme reste inchangé, ce qui signifie que la phase spinelle est conservée. Cela signifie aussi que le l'oxyde de vanadium ne se détecte pas avec la diffraction de rayons X, certainement parce qu'il n'est pas suffisamment abondant et il est possible qu'il se trouve en phase vitreuse. On remarque aussi que les pics se sont quelque peu élargis, et que leur intensité est moindres. Cela est la signature que les particules diminuent de taille durant le broyage. On estime ici que la taille moyenne des cristallites est 77 nm. L'acquisition et l'analyse de ces spectres permettent de s'assurer que le les paramètres de réglage du broyage sont satisfaisant, notamment dans le sens où la phase spinelle est conservée.

Toujours dans l'optique de comprendre l'influence du pentoxyde de vanadium, nous comparons maintenant deux échantillons de ferrite, mais cette fois-ci frittés. Pour cela, nous avons utilisé la même poudre fabriquée par Marion Technologies, recuite, puis broyée

avec ou sans V_2O_5 . Chaque poudre est ensuite frittée par le procédé PECS à 800 °C pendant 10 minutes pour obtenir des ferrites solides.

A l'aide de nouveaux diffractogrammes, nous avons mesuré le paramètre de maille. Dans les deux cas, le paramètre de maille vaut $a = 0,841$ nm. Il est aussi possible d'évaluer la taille moyenne des cristallites grâce à la largeur des pics du spectre. Sans V_2O_5 , le calcul donne une taille moyenne de 173 nm, et avec V_2O_5 , le calcul donne une taille moyenne de 287 nm. Une autre mesure concernant l'influence de cet ajout est la densité par la méthode d'Archimède. Sans V_2O_5 , la densité est de 4,847, tandis qu'avec V_2O_5 la densité est de 5,267. En comparaison, la densité théorique du ferrite $Ni_{0,27}Cu_{0,16}Zn_{0,57}Fe_2O_4$ seul est 5,339. De plus, une mesure de la perméabilité initiale a été réalisée à l'aide de l'analyseur de spectre HP4195A.

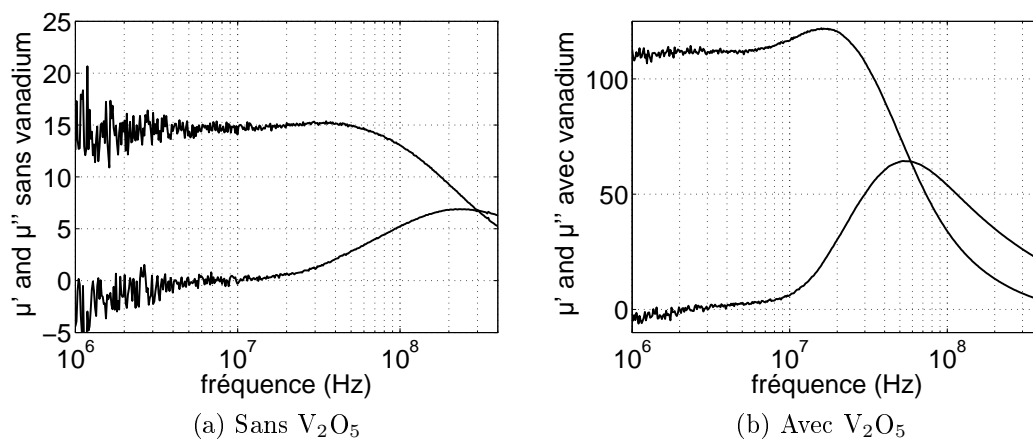
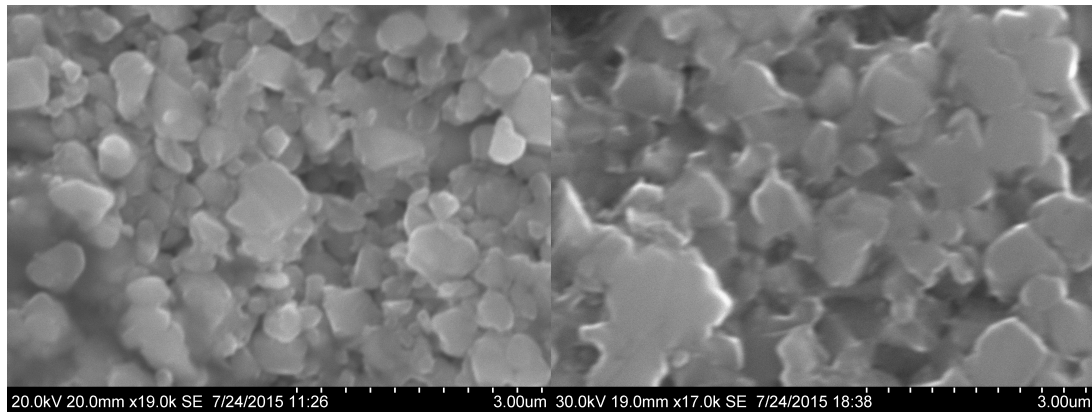


FIGURE 7.17 – Perméabilités initiales du ferrite $Ni_{0,27}Cu_{0,16}Zn_{0,57}Fe_2O_4$.

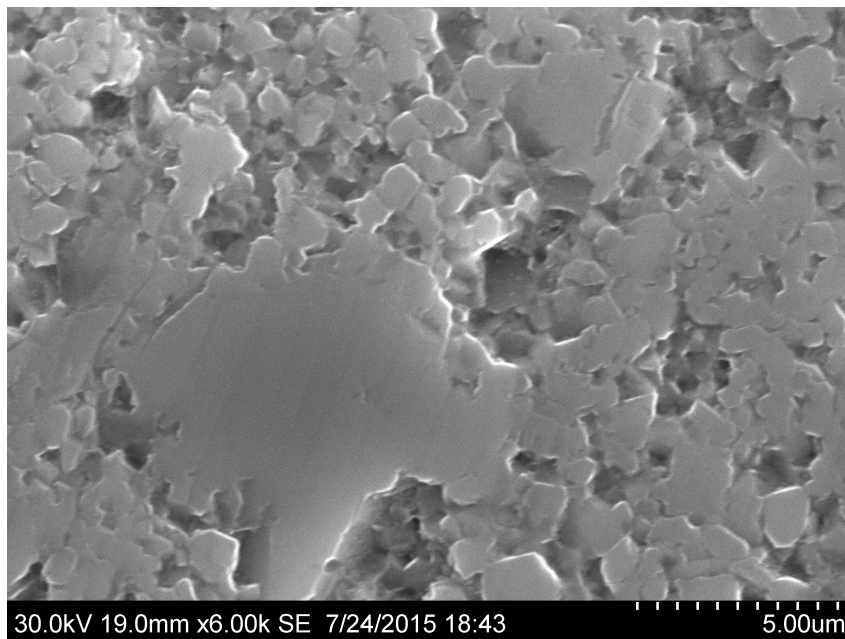
Par la suite, une mesure de résistivité est effectuée à l'aide de la presse décrite de la section 6. Sans V_2O_5 , la résistivité est d'environ 106 $\Omega.m$, tandis qu'avec V_2O_5 la résistivité est d'environ 35,7 $\Omega.m$. Ceci s'explique principalement par l'augmentation de la densité : la porosité étant plus faible, les particules présentent plus de surface de contact entre elles et permettent à un courant électrique de s'établir plus facilement.

Enfin, un contrôle visuel est fait par microscopie électronique à balayage pour observer les tailles des particules.



(a) Sans V_2O_5

(b) Avec V_2O_5



(c) Avec V_2O_5

FIGURE 7.18 – Micrographie du ferrite $Ni_{0,27}Cu_{0,16}Zn_{0,57}Fe_2O_4$.

Sur la figure 7.18, en (a) et (b), deux échantillons sont comparables car ils sont à la même échelle. On note qu'il y a peu de différences, si ce n'est que les particules semblent légèrement plus grandes quand le ferrite a été fritté avec du pentoxyde de vanadium. En revanche, il est possible de trouver de régions de l'échantillon avec vanadium contenant des particules bien plus grandes, voir (c), ce qui n'est pas le cas pour l'échantillon sans vanadium, où une certaine régularité dans la taille des particules est observée sur toute la surface du ferrite.

TABLE 7.1 – Tableau récapitulatif de l'ajout de pentoxyde de vanadium.

ferrite $\text{Ni}_{0,27}\text{Cu}_{0,16}\text{Zn}_{0,57}\text{Fe}_2\text{O}_4$	sans V_2O_5	avec V_2O_5 1 % masse
densité	4,847	5,267
pourcentage densité théorique	90,78 %	98,65 %
paramètre de maille	0,8414 nm	0,8412 nm
taille des cristallites (calcul DRX)	173 nm	287 nm
taille des particules (visualisation MEB)	0,2 à 1 μm	0,2 à 5 μm
perméabilité statique	15	112
résistivité	106 $\Omega\cdot\text{m}$	37,5 $\Omega\cdot\text{m}$

En résumé, nous pouvons affirmer que l'addition de pentoxyde de vanadium permet une meilleure densification lors du frittage, notamment dû au fait que le frittage s'effectue en phase liquide. Cette aide au frittage induit une croissance des cristallites. Ceci est vu comme une diminution de la porosité, ce qui a pour conséquence l'augmentation de la perméabilité puisque l'entrefer entre particule est moindre. En revanche, comme le contact entre les particules augmente, il vient que la résistivité du matériau diminue.

7.4 L'assemblage et le cofrittage - version initiale

En conséquence, après avoir choisi les matériaux nécessaires à la réalisation des transformateurs, il est possible d'assembler les différentes parties pour réaliser un cofrittage. L'assemblage se fait directement dans le moule en graphite utilisé pour le procédé PECS. Par la suite, afin d'alléger la description du protocole, nous omettons d'évoquer les étapes concernant le papiex. Il faut donc garder en tête que les parois du moule doivent en être revêtues, comme détaillé dans la sous-section 4.4.6.

Il faut donc, dans l'ordre :

1. prendre la partie tubulaire du moule de diamètre 20 mm, et placer un premier piston,
2. commencer à remplir le moule avec environ 1,8 g de poudre,
3. insérer la première spirale, en ayant pris soin d'incliner vers le bas les parties dédiées aux contacts électriques,
4. placer au centre une rondelle de mica,
5. insérer la deuxième spirale, en ayant pris soin cette fois-ci d'incliner les contacts vers le haut,
6. recouvrir le tout par 1,8 g de poudre,
7. refermer le moule par le second piston.

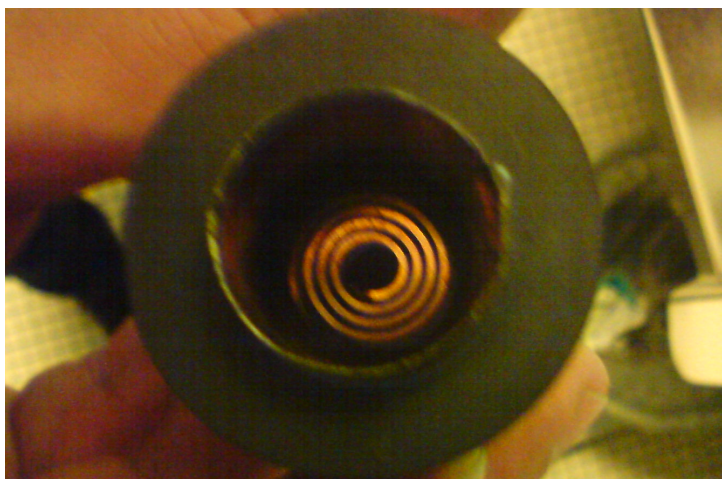


FIGURE 7.19 – Étape 3 de l'assemblage.

On montre une coupe de l'assemblage complet sur la figure suivante 7.20

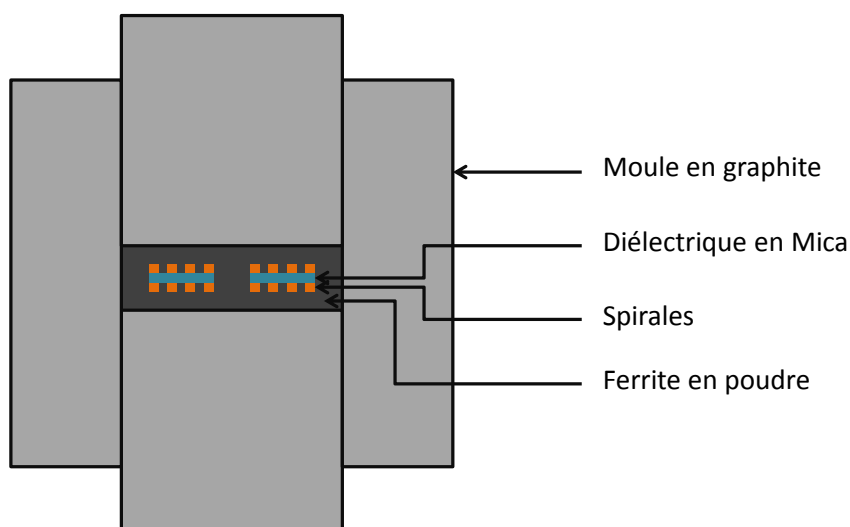


FIGURE 7.20 – Schéma de l'assemblage prêt à être fritté. Version finale.

On précise que la masse de poudre à insérer deux fois, les 1,8 grammes, est difficilement explicable par un calcul ; elle a été déterminée au fil des différents essais. Premièrement, elle est fonction du diamètre (donc du volume) du moule. Secondement, elle est tributaire de la géométrie de la spirale : il faut que la partie correspondant au contact électrique soit entièrement enfouie dans la poudre, car dans le cas contraire, le piston peut venir enfler le contact et déplacer l'ensemble de la spirale. Il ne faut pas non plus insérer trop de poudre, car si les contacts sont trop enfouis, il sera alors difficile d'y accéder.



FIGURE 7.21 – Premier cofrittage de transformateur monolithique.

7.5 La validation du protocole par tomodesitométrie

Par la suite, il faut pouvoir retrouver les contacts en cuivre pour relier électriquement le transformateur à un quelconque circuit. La question de savoir où sont les contacts se pose. Il serait judicieux d'utiliser une technique permettant de visualiser le cuivre dans le ferrite, sans pour autant avoir à détruire l'échantillon. La technologie salvatrice permettant un contrôle non destructif (CND) s'appelle la tomodesitométrie. Alléluia !

La tomodesitométrie est une technique d'imagerie permettant de reconstruire numériquement un objet en 3D. Cette technologie est très présente dans le domaine médical pour "scanner" l'intérieur du corps humain, et elle se développe actuellement dans les domaines de la R&D des sciences de l'ingénieur. Nous avons utilisé deux tomographes. Le premier appartient à l'IFSTTAR sur le site de Versailles-Satory. Le second est celui du laboratoire de génie mécanique¹⁷ de l'ENS de Cachan, et il est principalement dédié à l'étude des fissures interne dans du béton.

Le principe de fonctionnement est le suivant. L'objet à analyser est placé entre une source ponctuelle de rayons X et un détecteur. Lorsqu'un cliché est réalisé, les rayons X se propagent de la source vers le détecteur en traversant l'échantillon. Plus l'échantillon est dense, plus il absorbe les rayons incidents, d'où le nom de cette technologie. Par la suite, il est possible de faire pivoter l'échantillon sur lui-même et de reprendre un cliché. Une rotation complète de l'échantillon est finalement réalisée en un certain nombre de clichés. Plus grand est le nombre de cliché, meilleure sera la résolution. Par la suite, un ordinateur utilisant l'ensemble des images avec un algorithme de reconstruction permet d'obtenir une vue en trois dimensions de l'échantillon¹⁸. La partie la plus intéressante est la suivante : il est numériquement possible de faire apparaître seulement le ferrite ou seulement le cuivre en jouant sur les contrastes ainsi que l'histogramme du niveau de gris car les matériaux ont des densités différentes. Cet outil sera donc d'une grande aide par la suite pour visualiser les défauts internes.

Par ailleurs, comme énoncé précédemment, le diélectrique est un point sensible dans la réalisation des transformateurs. Afin de vérifier qu'il n'entre pas en fusion durant le frittage, il est nécessaire de mesurer la résistance d'isolation entre le primaire et le secondaire

17. Le LMT pour Laboratoire de Mécanique et Technologie.

18. On comprend alors que cette technologie prend aussi les noms de tomographie axiale calculée par ordinateur (TACO), ou en anglais CT-scan pour computerized tomography.

une fois le protocole PECS achevé.

7.5.1 1^{ers} essais : structure à contacts enfouis

Pour les premiers essais, nous avons utilisé deux spirales de cuivres de Chimicmetal, voir figure 7.5, de la poudre de ferrite et une rondelles de mica (0,1 mm). Une fois fritté, il est impossible de savoir où se positionnent les contacts, voir figure 7.21. Le tomographe de l'IFSTTAR nous a permis d'obtenir les clichés suivants :

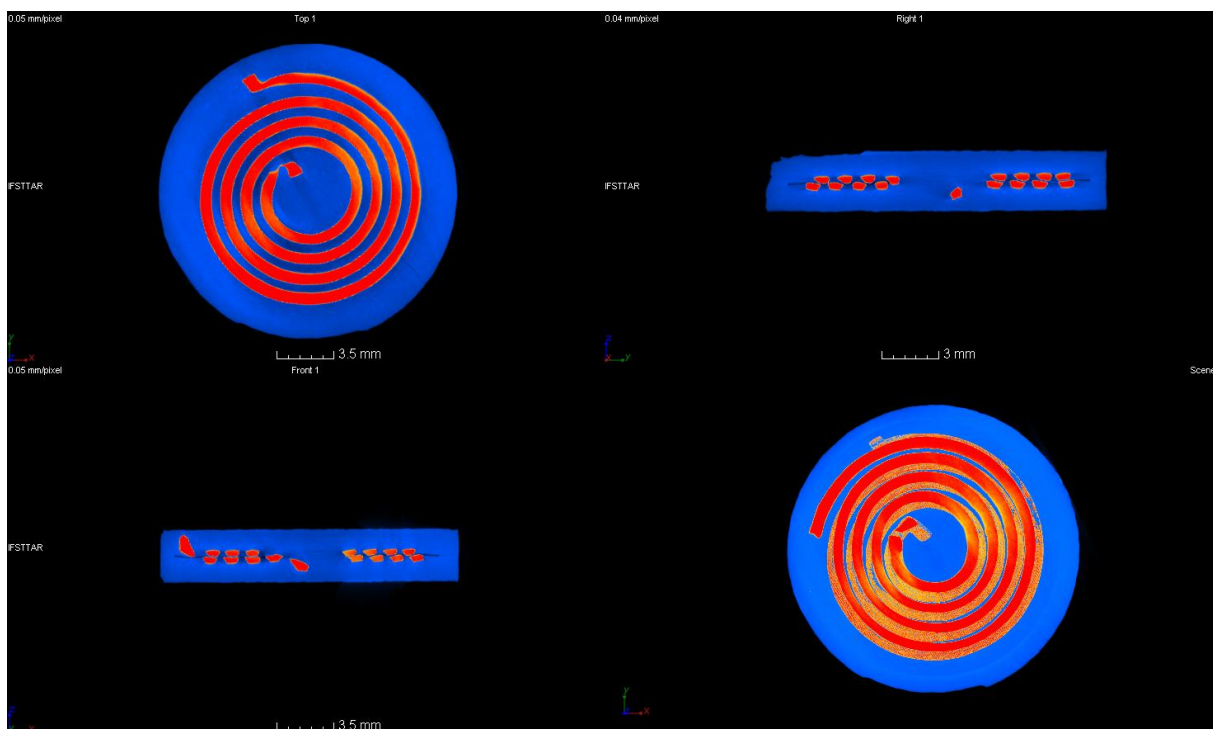


FIGURE 7.22 – Clichés du premier transformateur. Tomographe IFSTTAR.

En se basant sur le repérage de défauts au niveau du contour, il est possible d'estimer la position des contacts du cuivre dans le ferrite. Nous avons essayé d'accéder aux contacts à l'aide d'une perceuse, mais sous l'effet des contraintes mécaniques, une fissure s'est créée, puis s'est propagée dans le plan de la rondelle de mica.

La première conclusion tirée est la suivante : il faut pouvoir accéder aux contacts directement en sortie de frittage. Dans cette optique, nous utiliserons par la suite les spirales ayant une grande surface de contact, voir figure 7.11, en prenant soin de faire ressortir les extrémités vers le haut et à l'extérieur du ferrite. Afin de les protéger lors de l'application de la pression uniaxiale exercée sur les pistons, il faut prendre soin d'insérer dans le moule de la poudre d'alumine Al_2O_3 par dessus la poudre de ferrite.

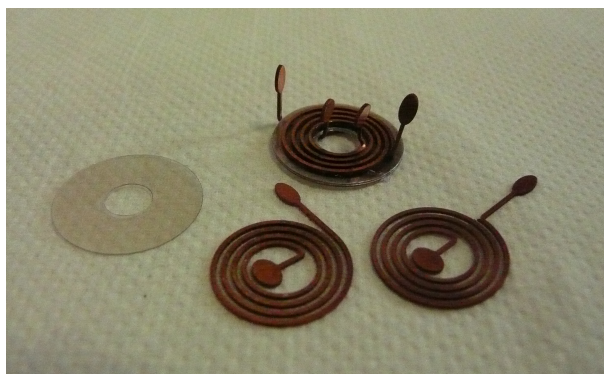


FIGURE 7.23 – Assemblage cuivre-mica.

7.5.2 2^{èmes} essais : structure à contacts sortis sur une face

Ces deuxièmes essais consistent à reprendre le même protocole que précédemment, mais avec des spirales ayant des contacts électriques vers le haut, et en ayant pris soin de recouvrir l'ensemble ferrite-mica-cuivre avec de la poudre d'alumine pour protéger les contacts.



FIGURE 7.24 – Photographie pendant l'étape de démoulage. On distingue les deux pistons (en noir), la poudre d'alumine pour protéger les contacts (en blanc), et le transformateur fritté recouvert de papiex (en noir brillant).



FIGURE 7.25 – Transformateur de la série des deuxièmes essais. Les quatre contacts se trouvent sur le dessus. Diamètre 20 mm.

Après frittage, la résistance d'isolation entre primaire et secondaire mesurée à l'ohmmètre est de $0,7 \Omega$. Cette résistance bien trop faible indique certainement un court-circuit entre les enroulements. Encore une fois, nous utilisons la tomographie, mais cette fois dans le but de localiser le ou les court-circuits.

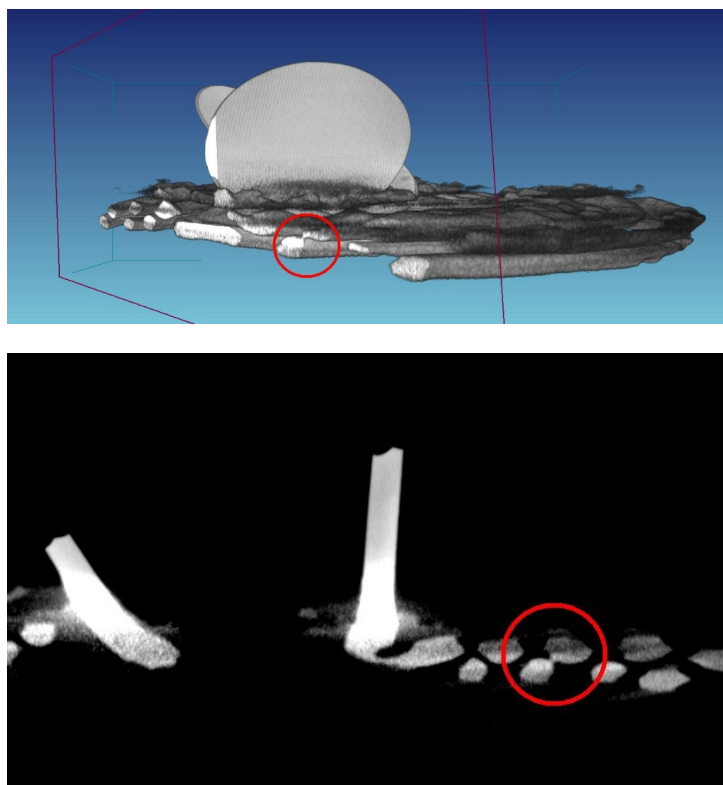


FIGURE 7.26 – Visualisation d'un court-circuit. Tomographe LMT.

Sur la figure 7.26, nous avons pu faire apparaître uniquement les spirales de cuivre en jouant numériquement sur le contraste et l'histogramme du niveau de gris. Nous observons bien un court-circuit car les deux spirales entrent en contact. On imagine alors que le diélectrique a fondu localement. Heureusement, le court-circuit est localisé et il n'est pas réparti sur l'ensemble du diélectrique. La solution envisagée est alors d'augmenter l'épaisseur en employant un plus grand nombre de rondelles de mica.

Par ailleurs, on note que le cuivre s'est fortement dégradé, et que donc l'ensemble rondelle-spirale manque de tenue mécanique. Pour remédier à cela, nous choisissons de

coller le cuivre sur le mica à l'aide d'une pointe de verni isolant¹⁹ qui permet de maintenir l'ensemble, et il en sera d'autant plus facile de placer ces éléments dans le moule.

7.5.3 3^{èmes} essais : structure à isolation renforcée

Pour les troisièmes essais, nous avons augmenté le nombre de rondelles de mica pour en évaluer la conséquence. Nous avons utilisé le même profil de température pour le frittage. Nous avons mesuré la résistance entre les deux enroulements après frittage.

TABLE 7.2 – Résistance d'isolation en fonction du nombre de rondelle.

nombre de rondelles	épaisseur	résistance d'isolation
1	0,1 mm	$\sim 0,7 \Omega$
2	0,2 mm	$\sim 1,1 \Omega$
3	0,3 mm	$\sim 10,6 \Omega$
4	0,4 mm	$\sim 10,9 \Omega$
5	0,5 mm	$\sim 9,8 \Omega$

Pour deux rondelles, la résistance d'isolation reste faible, ce qui sous-entend qu'il y a toujours un court-circuit entre les deux enroulements. On le vérifie une fois encore à l'aide de la tomodesitométrie.

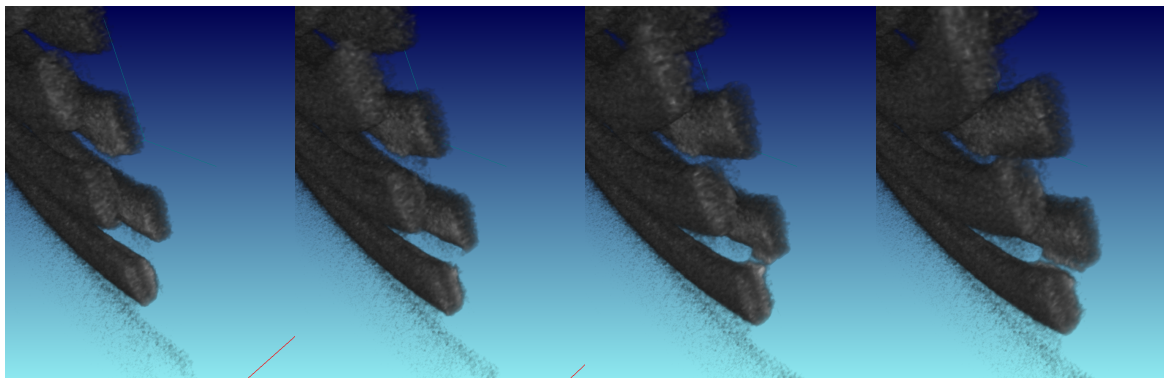


FIGURE 7.27 – Visualisation d'un court-circuit, deux rondelles utilisées.

En revanche, à partir de trois épaisseurs de mica utilisées, la résistance d'isolation augmente environ d'un ordre de grandeur, et semble se stabiliser autour d'une dizaine d'ohms. De nouvelles inspections sont effectuées pour essayer de détecter les défauts.

19. Le verni en question est le même que celui utilisé en électronique pour isoler le cuivre.

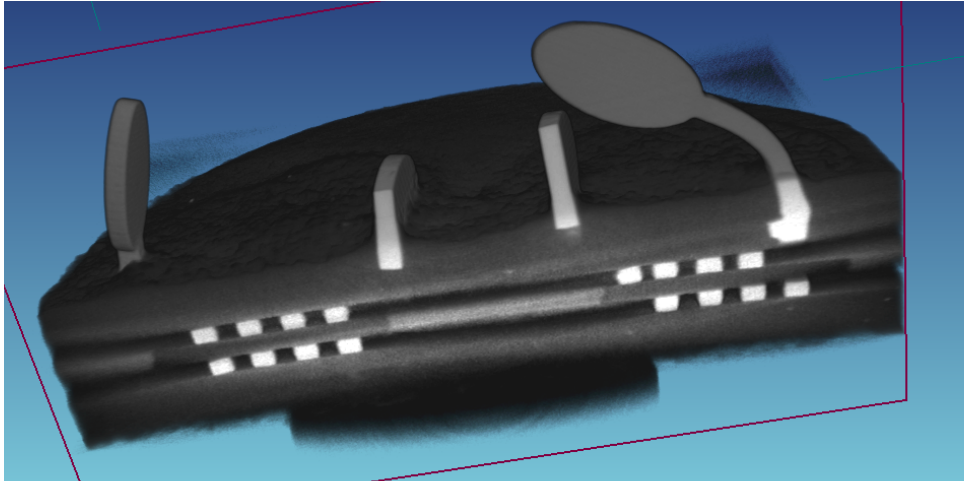


FIGURE 7.28 – Transformateur sans défaut apparent.

Sur la figure 7.28, on note une nette amélioration de la tenue mécanique de l'ensemble du transformateur. L'empilement des rondelles de mica ne semble pas déformé, et les spires de cuivre conservent bien une section rectangulaire. Par ailleurs, les contacts sont suffisamment accessibles pour être reliés à un circuit électriques via des soudures.

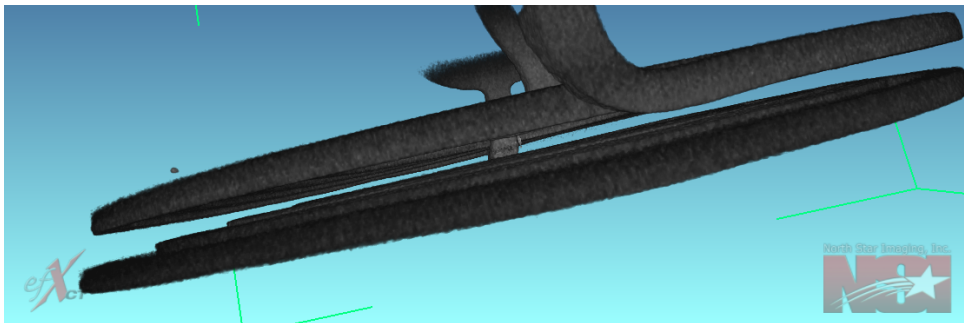


FIGURE 7.29 – Spirales sans court-circuit.



FIGURE 7.30 – Transformateur connecté de la série des troisièmes essais. Diamètre 20 mm.

Malgré une bonne réussite quant au cofrittage de ces matériaux, et à la mise en œuvre du transformateur, le problème de la résistance d'isolation d'une dizaine d'ohms persiste.

Il est bien entendu inacceptable d'utiliser tel quel ce composant car l'isolation galvanique n'est pas respectée. Cependant, cette faible résistance s'explique facilement. Elle provient de la faible résistivité des ferrites frittés par le procédé PECS. Une mesure réalisée avec un système dédié et décrit dans la section 6 indique que la résistivité est de $5,64 \Omega.m$. De plus, la grande surface de contact entre le cuivre et le ferrite favorise la baisse de résistance entre les enroulements.

Pour améliorer la résistance d'isolement, nous avons en premier lieu procédé à un recuit sous air comme habituellement avec les ferrites. L'objectif du recuit est ici de réoxyder le matériau magnétique afin de diminuer sa conductivité. Malheureusement, toutes les tentatives se sont soldées par le même échec : le ferrite se craquèle dû à la différence entre son coefficient de dilatation thermique et celui du cuivre. Ces craquèlements s'opèrent à une température avoisinant les $500 \text{ }^\circ\text{C}$, ce qui est bien peu pour réoxyder.



FIGURE 7.31 – Transformateur de la série des troisièmes essais recuit à $500 \text{ }^\circ\text{C}$.



FIGURE 7.32 – Après recuit à $500 \text{ }^\circ\text{C}$, les transformateurs s'effritent facilement.

Sur la figure 7.31, en plus de fissurer le ferrite, on peut noter que les contacts en cuivre sont eux aussi bien oxydés, ce qui n'est pas souhaitable. Il faut donc trouver une solution pour augmenter la résistivité du ferrite.

7.5.4 4^{èmes} essais : ajout de CaO dans le ferrite

Afin de rendre le ferrite moins conducteur, nous nous sommes inspirés d'une solution déjà existante pour les ferrites Mn-Zn. Il s'agit d'ajouter dans la poudre de ferrite, avant frittage, de l'oxyde de calcium CaO.

Dès 1962, il semble qu'une première étude ait été publiée par M.Paulus et C.Guillaud intitulée "Grain Structure and Properties of Ferrites" dans la revue "Journal of the Physical Society of Japan", volume 17 pages 632 à 640, mais malheureusement l'article est

introuvable sur les bases de données usuelles de l'Internet. En 1991, Otsuki publie des résultats sur l'ajout de CaO dans le ferrite $Mn_{0,74}Zn_{0,18}Fe_{2,06}O_4$. Avec une addition de 0,04 % massique, la résistivité mesurée est de 370 m Ω .m, alors qu'elle était initialement de 12 m Ω .m. Les auteurs indiquent aussi qu'une micrographie à l'aide d'un microscope électronique en transmission révèle que calcium se trouvent entre les cristallites, c'est-à-dire aux joints de grain, ce qui explique l'augmentation de la résistivité [OYO⁺91]. En 1999, Otake montre qu'en plus du CaO, l'ajout de Nb₂O₅, ou de Ta₂O₅, ou de ZrO₂ permet une meilleure ségrégation du CaO au niveau des joints de grain [OYH⁺99]. Enfin, en 2012, Vincent Loyau décrit une méthode mathématique permettant de quantifier et de prédire l'effet du CaO sur la résistivité [LWLM12].

A la vue de ces articles, nous avons essayé de reproduire sur un ferrite Ni-Cu-Zn ce qui est un bon résultat sur les ferrites Mn-Zn. Nous avons décidé d'ajouter 1 % massique de CaO à la poudre de ferrite $Ni_{0,27}Cu_{0,16}Zn_{0,57}Fe_2O_4$ contenant déjà 1 % massique de V₂O₅. Pour cela, nous avons acheté chez Sigma-Aldrich de la poudre de CaO, et nous l'avons mélangée à l'aide du broyeur pulverisette 6 pendant une durée 3 heures à une vitesse 450 tours par minute.

Par la suite, nous avons fritté la poudre par le procédé PECS, avec le même protocole, c'est-à-dire pendant 10 minutes à 800 °C. Pour cette étude, seulement des pastilles de ferrite pur ont été réalisées, nous n'avons pas fabriqué de transformateurs. La première mesure faite est celle de la densité. La mesure par la méthode d'Archimède donne une valeur de 4,795, ce qui est assez faible par rapport à la densité théorique de 5,339 car elle ne représente que 90 % de la valeur théorique.

La mesure de résistivité se fait en utilisant le système décrit dans la section 6. La valeur est de 108 Ω .m, ce qui est équivalent à la valeur du ferrite seul (sans V₂O₅).

Une étude par DRX a montré que le paramètre de maille est de 0,8417 nm, et la taille moyenne de cristallites est calculée à 140 nm.

Afin de visualiser la taille de particule ainsi que la porosité, une micrographie par MEB a été réalisée.

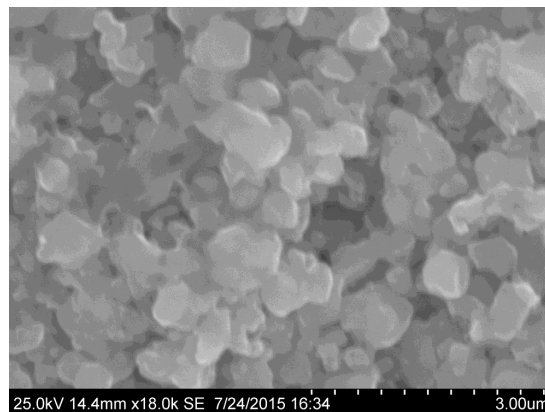


FIGURE 7.33 – Micrographie du ferrite avec CaO.

Sur la figure 7.33, on note la faible taille de particule, qui est inférieure au micromètre. On remarque aussi que l'aspect est semblable au ferrite initial, comme si l'ajout d'oxyde de calcium avait inhibé l'effet de l'oxyde de vanadium.

Enfin, nous avons essayé de mesurer la perméabilité en usinant des tores. Il se trouve malheureusement que tous les échantillons se sont brisés sous les efforts mécaniques dû au perçage avec un outil diamanté. Aucune mesure de perméabilité n'a été possible. On

imagine cependant qu'avec 90 % de densité théorique, la perméabilité resterait faible.

TABLE 7.3 – Tableau récapitulatif de l'ajout d'oxyde de calcium.

ferrite $\text{Ni}_{0,27}\text{Cu}_{0,16}\text{Zn}_{0,57}\text{Fe}_2\text{O}_4$	+1% _m V_2O_5	+1% _m V_2O_5 +1% _m CaO
densité	5,267	4,795
pourcentage densité théorique	98,65 %	89,81 %
paramètre de maille	0,8412 nm	0,8417 nm
taille des cristallites (calcul DRX)	287 nm	140 nm
taille des particules (visualisation MEB)	0,2 à 5 μm	0,2 à 1 μm
perméabilité statique	112	non mesurée
résistivité	37,5 $\Omega\cdot\text{m}$	108 $\Omega\cdot\text{m}$

En conclusion, dans notre cas l'ajout d'oxyde de calcium a détérioré les propriétés magnétiques des matériaux, et nous ne l'utiliserons plus par la suite. Quelques réserves sont tout de même à noter pour adoucir ce jugement sans appel. Par manque de temps, nous n'avons pas étudié correctement l'ajout de CaO. Il aurait fallu évaluer l'effet de différentes quantités, alors que nous avons seulement additionné 1 % massique. De plus, nous n'avons pas eu connaissance de la taille des particules de CaO achetées chez Sigma-Aldrich, et il est imaginable qu'elle ne soit pas suffisamment faible pour venir se loger correctement entre les cristallites du ferrite. Nous concluons finalement que par manque de connaissance et de temps, nous n'utiliserons plus d'oxyde de calcium, mais qu'une étude plus approfondie reste envisageable car cet ajout est bel et bien bénéfique sur les ferrites Mn-Zn issus de la littérature.

7.5.5 5^{èmes} essais : ajout de peinture céramique sur le cuivre

Suite aux résultats non concluant de l'ajout de CaO, nous ne souhaitons plus modifier le matériau magnétique. Il faut donc trouver une solution permettant d'isoler le cuivre du ferrite pour augmenter la résistance d'isolement.

Pour cette série, les cinquièmes essais, un matériau supplémentaire doit être ajouté pour isoler le cuivre du ferrite dans le but d'augmenter la résistance d'isolation entre primaire et secondaire. Il faut donc trouver un matériau qui soit :

- électriquement isolant,
- chimiquement inerte,
- résistant aux hautes températures,
- facilement utilisable sur les petites dimensions du transformateurs.

Après recherche, deux produits sont retenus. Il s'agit du nitrure de bore en spray, et d'une peinture céramique à base d'alumine. Ces deux produits de marque Cotronics Corporation²⁰ ont été achetés chez le distributeur Final Matériaux Avancés²¹.

Sur leur site internet, le distributeur indique concernant le nitrure de bore en spray BN 1012 : "Le liant organique contenu dans le BN 1012 assure d'excellentes propriétés adhésives jusqu'à une température de 250 °C. Au dessus de cette température une couche de particules de nitrure de bore persiste, celle-ci assure une excellente lubrification et conserve ses propriétés jusqu'à de très hautes températures. Le nitrure de bore reste efficace jusqu'à 800 °C dans l'air et 1950 °C sous gaz inerte, ce qui en fait un lubrifiant sec.". Les applications sont :

20. 131 47th Street, Brooklyn, N.Y.

21. 1, rue des Vergers, 67160 Rott

- Protection pour thermocouple et sonde de mesure
- Protection pour outillage de coulée
- Lubrifiant haute température : Moules de fonderie, tréfilage joints, ...
- Isolant électrique
- Additif pour silicone et résine pour améliorer la conductivité thermique
- Agent de démoulage (métallurgie, industrie de métallisation, moule d'injection plastique,...)
- Couche protectrice pour frittage et autre applications
- Revêtement pour diminuer la friction et augmenter l'inertie chimique

Concernant la peinture céramique à base d'alumine Duralco 215 : "La résine DURALCO 215 s'utilise comme résine d'imprégnation ou comme revêtement isolant électrique sur tous composants électriques ou électro-mécaniques. Par imprégnation cette résine à base céramique, permet d'isoler électriquement bobines, électroaimants, instruments, tout en garantissant une protection à hautes températures. DURALCO 215 est d'un usage facile, c'est un mono-composant qui ne demande pas de préparation spécifique. Cette résine, fluide s'applique par pulvérisation, par trempage ou à la brosse. Elle sèche à l'air ambiant et assure une excellente protection, électrique, chimique et thermique. La faible viscosité de la résine, ainsi que la finesse de la charge céramique garantissent une pénétration de la DURALCO 215 dans les espaces les plus réduits. Habituellement les câbles hautes températures sont enduits de TeflonTM ou d'une gaine de fibres de verre pour un usage limité entre 300 et 420 °C. Au delà de cette limite l'isolation électrique est défailante et le composant inutilisable. DURALCO 215 est la solution incontournable pour les applications à hautes températures dans un environnement hostile. L'intégrité de l'isolant est assuré jusqu'à 1400 °C. DURALCO 215 représente le choix le plus judicieux, lorsque isolation électrique, températures élevées sont les contraintes caractéristiques de l'application."

En résumé, ces deux produits résistent à des températures supérieures à celle du frittage, et ils peuvent s'appliquer sur les spirales en cuivre pour les séparer physiquement du ferrite. Pour cela, il faut dans un premier temps assembler les quatre rondelles de mica et les spirales en cuivre, puis dans un second temps appliquer le nitrure de bore en spray ou la peinture céramique²²

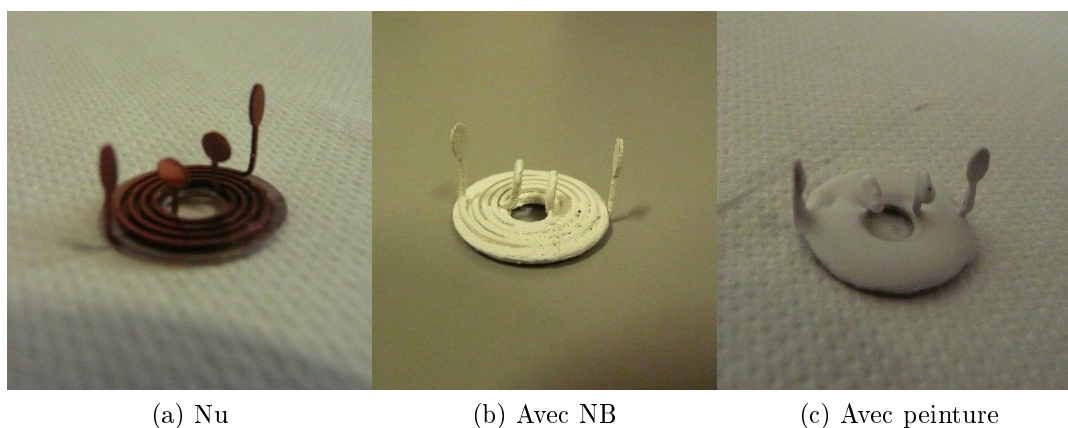


FIGURE 7.34 – Assemblage rondelles-spirales recouvert.

22. Instinctivement, nous avons appliqué la peinture avec un pinceau. Pour un meilleur résultat, n'hésitez pas à passer une deuxième couche.

Par la suite, ces assemblages sont cofrittés par le procédé PECS, avec les réglages habituels, c'est-à-dire pendant 10 minutes à 800 °C sous une pression uniaxiale de 50 MPa. une première mesure à l'ohmmètre est effectuée.

TABLE 7.4 – Résistance d'isolation selon l'enrobage isolent.

isolant	résistance d'isolation
nitru de bore	18 à 140 Ω
peinture céramique	150 à 2800 Ω

Premièrement, on note que l'utilisation d'une couche supplémentaire pour isoler le cuivre du ferrite améliore grandement la résistance d'isolation d'au moins un ordre de grandeur. Secondement, on relève que la résistance d'isolation est plus élevée avec l'utilisation de la peinture céramique qu'avec le nitru de bore. Ceci s'explique par la fragilité du nitru de bore : une fois appliqué, il s'enlève trop facilement (avec les doigts par exemple). On imagine alors que lors de l'application de la pression uniaxiale, il est possible que la poudre de ferrite puisse déplacer le nitru de bore sur de petites zones, laissant ainsi apparaître quelques surfaces de contact entre le cuivre et le ferrite. En revanche, la peinture céramique se présente sous le même aspect qu'une peinture usuelle utilisée dans le bâtiment pour peindre les murs. Une fois appliquée, elle sèche et a alors une meilleure tenue mécanique. C'est donc ce matériau que l'on va conserver dans les futures fabrications.

Par ailleurs, la disparité des valeurs de la résistance d'isolation s'explique par le fait que l'application de ces isolants se fait manuellement et à l'appréciation visuelle de l'opérateur. Si la couche d'isolant est trop faible par endroit, alors des lignes de courant peuvent s'établir entre le primaire et secondaire.

Encore une fois, nous utilisons la tomodesitométrie pour visualiser l'intérieur du composant afin de s'assurer de l'intégrité de l'isolant.

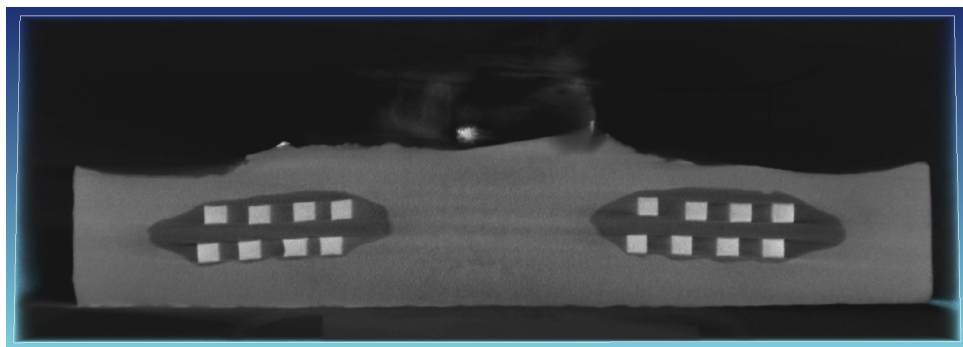


FIGURE 7.35 – Transformateur ayant de la peinture céramique pour recouvrir les spirales de cuivre.

Sur la figure 7.35, le volume occupé par la peinture est clairement visible. Les spirales de cuivre occupent bien la place désirée, et le diélectrique en mica, bien que peu apparent, ne semble pas s'être déformé. Cette image reflète très bien le propos énoncé précédemment : il est difficile d'obtenir une couche de peinture homogène et régulière. Par ailleurs, on note que l'épaisseur de peinture n'est certainement pas suffisante au niveau des spires inférieures, ce qui limite certainement la résistance d'isolation.

D'autres clichés permettent de visualiser le manque partiel de peinture céramique, notamment sur la partie remontante des spirales. Cette zone est critique car c'est justement à cet endroit que des courants électriques peuvent s'établir car la distance entre les deux enroulements est faible.

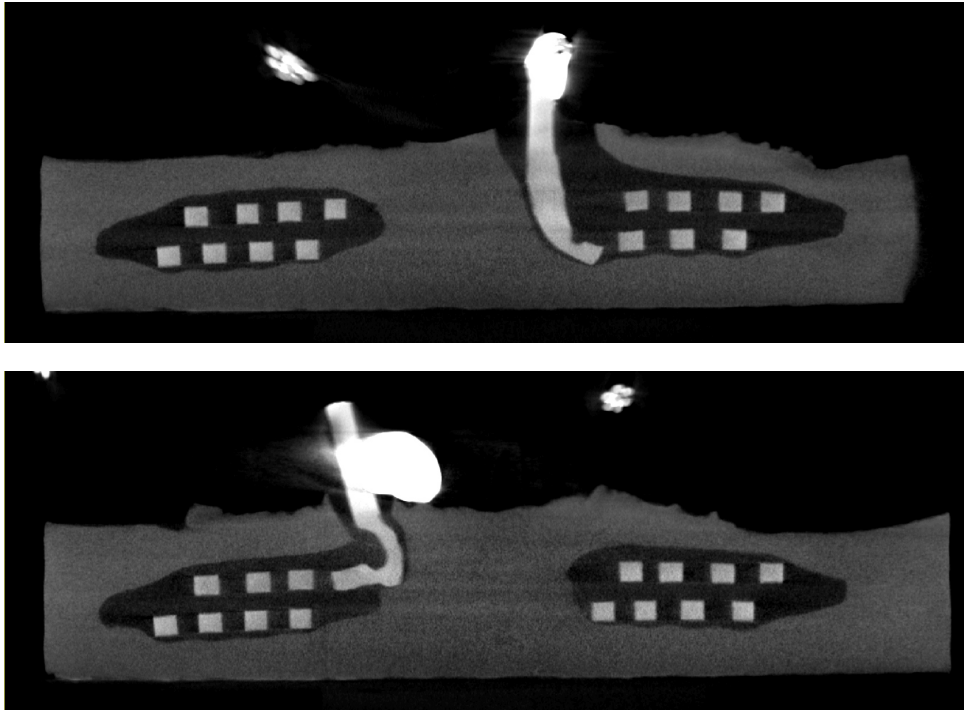


FIGURE 7.36 – Visualisation de l'inhomogénéité de l'épaisseur de la couche de peinture. On note une très faible épaisseur au niveau des spires remontants vers les contacts, ce qui limite certainement la résistance d'isolation.

Cependant, la valeur de la résistance d'isolement n'est toujours pas satisfaisante pour une quelconque application du transformateur. Enfin, les clichés montrent aussi une certaine irrégularité dans la surface supérieure du transformateur. La surface inférieure est plane, car directement en contact avec le piston lors du frittage. En revanche, la surface supérieure est en contact avec une rondelle de papiex, le tout surmonté par de la poudre d'alumine. Premièrement, le papiex a pour effet de diminuer la résistivité du ferrite, et secondement, lors de l'application de la pression uniaxiale, la poudre d'alumine appuie sur le papiex, qui appuie lui-même sur la poudre de ferrite. Cette configuration rend possible la déformation des surfaces, comme visualisé sur la figure 7.36.

7.5.6 6^{èmes} essais : ajout d'une protection céramique en alumine

Afin de limiter la chute de la résistivité du ferrite pendant le frittage, et d'éviter la déformation de la surface supérieure au moment de l'application la pression uniaxiale, une solution simple a été adoptée. Lors du positionnement des différents éléments dans le moule, il faut remplacer la rondelle de papiex séparant la poudre de ferrite de la poudre d'alumine par une rondelle en alumine solide.

Les rondelles d'alumine ne sont pas identiques à celles évoquées précédemment, sur la figure 7.12 par exemple. Elles sont différentes car le diamètre est ici de 20 mm, avec une épaisseur de 2 à 3 mm. Pour les obtenir, nous avons commencé par acheter un cylindre

de céramique en alumine Al_2O_3 chez le distributeur Radiospares. La marque est Macor, du fabricant Corning²³.



FIGURE 7.37 – Tige Macor de 100 mm de long, 20 mm de diamètre.

Ce produit est présenté comme étant une vitrocéramique usinable. Ce point est essentiel dans notre cas car il faut non seulement pouvoir découper le barreau en tranche, mais il est nécessaire de percer chaque tranche pour laisser traverser les contacts des spirales de cuivre. De plus, ce matériau est adaptée pour un frittage car il supporte les hautes températures.

Pour découper en tranche le barreau, nous avons utilisé deux outils de découpe différents. Premièrement une scie à fil diamanté : le modèle 3242 Precision Vertical Diamond Wire Saw de la marque Well. Secondement, une tronçonneuse à disque diamanté : le modèle Secotom 10 de la marque Struers. Quelque soit la machine employé, le résultat de la découpe est satisfaisant car il n'est pas nécessaire ici d'obtenir une grande précision quant à l'état de surface.

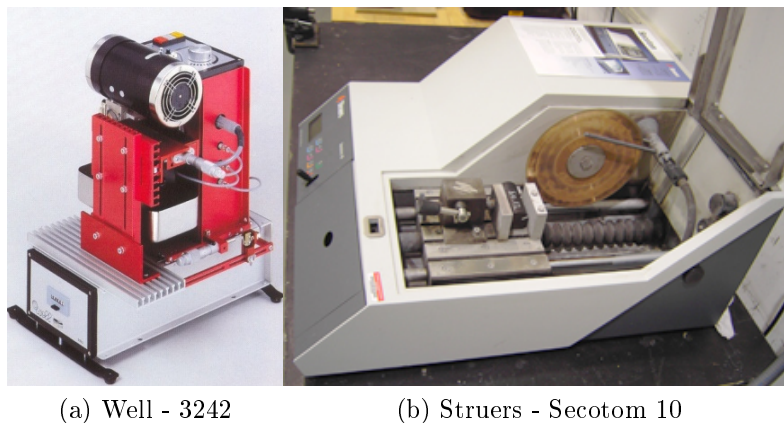


FIGURE 7.38 – Machines pour découper la céramique Macor.

Chaque tranche est ensuite percée à l'aide d'une perceuse à colonne en utilisant un foret diamanté. Cette opération a pour but de laisser traverser les contacts en cuivre pendant l'assemblage.

23. One Riverfront Plaza Corning, NY 14831 USA

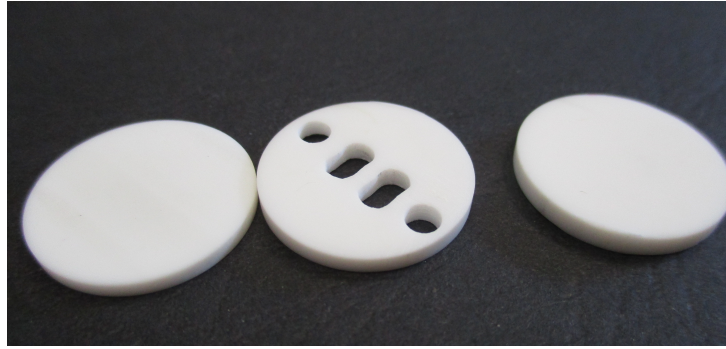


FIGURE 7.39 – Rondelles de céramique en alumine. Diamètre 20 mm.

Par la suite, un frittage par le procédé PECS est réalisé, toujours à 800 °C pendant 10 minutes sous une pression uniaxiale de 50 MPa. Après démoulage, il se trouve que la rondelle de céramique en alumine s'est cofrittée avec le ferrite, et il n'est pas possible de séparer les matériaux.

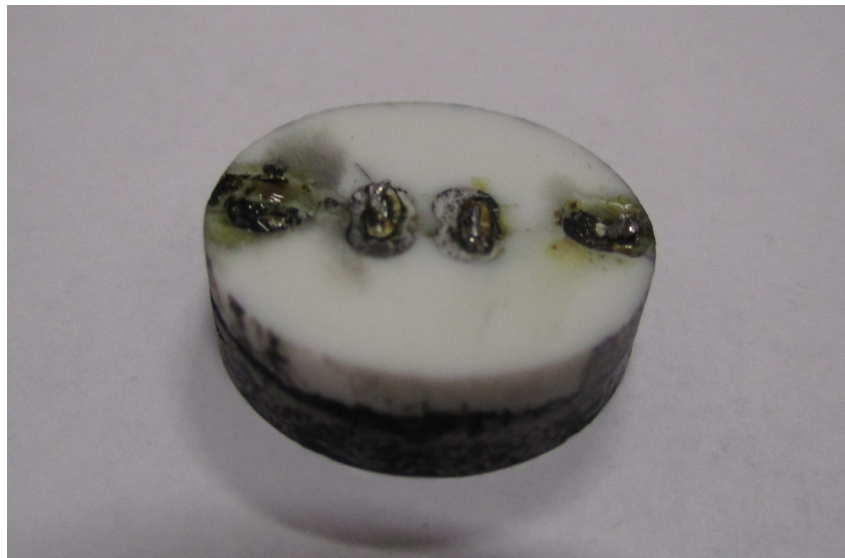


FIGURE 7.40 – Transformateur de la série des sixièmes essais. Diamètre 20 mm.

Sur la figure 7.40, on visualise le cofrittage. Afin de réduire l'épaisseur de la céramique en alumine, il est nécessaire de poncer la surface. Cela a pour conséquence de couper les contacts, et la grande surface des extrémités du cuivre n'est malheureusement plus utilisée. Sur cette même photographie, on précise que le cuivre a été par la suite étamé, étape nécessaire pour connecter le composant durant les mesures.

Par ailleurs, un détail intéressant est visible : au niveau des contacts, on distingue les différents empilements de matériau. Par exemple, sur le deuxième contact en partant de la droite, on distingue le contact recouvert d'une soudure à l'étain, puis on visualise une zone jaunâtre. Il s'agit de la peinture céramique qui a été recouverte par le flux de soudure, d'où sa couleur. Après, un liserai noir indique la présence du ferrite qui est remonté le long des contacts lors de l'application de la pression uniaxiale. Ensuite, il apparaît une zone blanchâtre rugueuse, qui n'est autre que la poudre d'alumine nécessaire à la protection des contacts et qui ne fritte pas en dessous de 1350 °C ; elle apparaît ici car quelques particules viennent s'incruster à la surface du ferrite durant le frittage, et il suffirait d'abraser cette partie pour voir émerger le ferrite.

Une vue interne permettrait de visualiser tous ces différents matériaux, raison pour laquelle nous usons encore de la facilité d'utilisation de la tomographie.

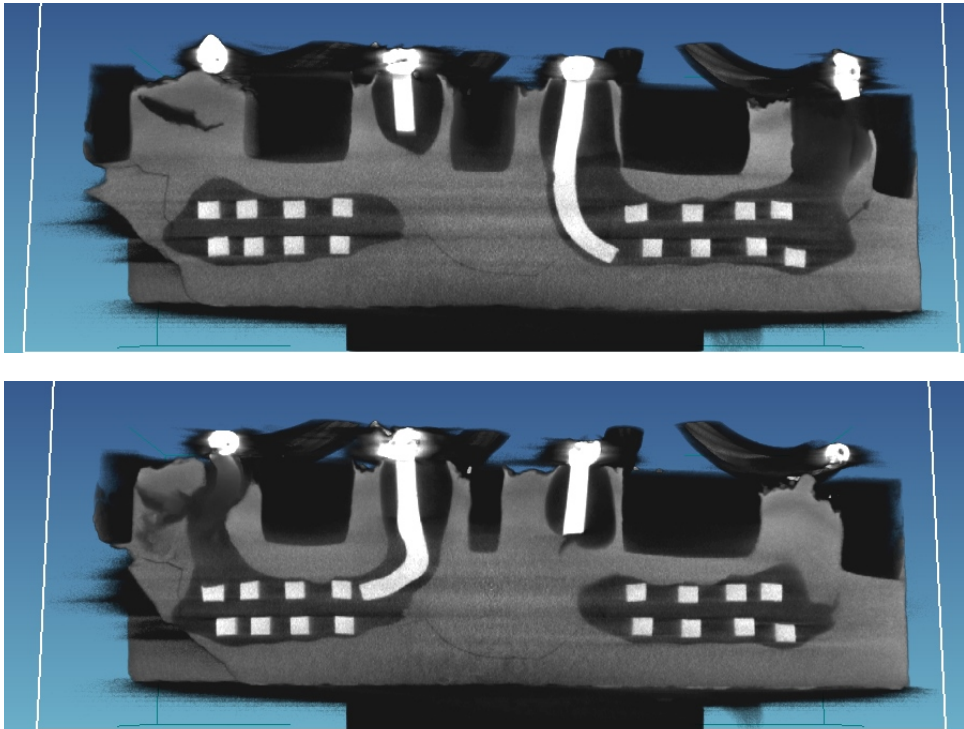


FIGURE 7.41 – Visualisation des différents matériaux au niveau des contacts.

Sur la figure 7.41, on retrouve bien les différents matériaux évoqués précédemment. La rondelle de céramique en alumine qui surmonte le ferrite est visible en noir. On observe aussi que la peinture céramique enrobe le cuivre correctement, et que le ferrite a tendance à remonter par les trous de la rondelle de céramique.

La résistance d'isolation mesurée à l'ohmmètre est d'environ 8000 ohms. L'ajout de la rondelle de céramique se trouve donc être bénéfique même si la valeur de cette résistance reste trop faible.

En revanche, pour la première fois, on relève la présence de fissure dans du ferrite. Ces fissures sont un problème conséquent. Elles sont synonymes d'amorce de rupture mécanique. On remarque d'ailleurs sur la figure 7.41 que le transformateur n'est pas complet, car il s'est cassé en bas à droite. Ces fissures introduisent aussi des entrefers dans le matériau, le rendant inhomogène. Ces entrefers vont donc dévier les lignes de champ magnétique, ce qui entraînent une saturation locale et donc des pertes magnétiques plus importantes. Cependant, la priorité étant d'améliorer la résistance d'isolation, cet ajout de rondelle en céramique est vue comme un apport bénéfique.

7.5.7 7^{èmes} essais : ajout de deux protections céramiques

Afin d'améliorer la résistance d'isolation, nous avons fait le choix d'augmenter l'épaisseur de la couche de peinture. Par ailleurs, bien que l'ajout d'une rondelle a provoqué l'apparition de fissures dans le matériau magnétique, nous faisons le choix de non seulement la conserver, mais aussi d'en ajouter une autre, mais cette fois au niveau inférieur du transformateur. En effet, nous avons aussi remarqué que le cofrittage du ferrite et de la céramique en alumine a permis de limiter les différents petits éclats. Par exemple, sur la

figure 7.41, on remarque un éclat sur la surface inférieure alors que la surface supérieure conserve une apparence correcte (selon la tomographie).

Après un frittage par procédé PECS, à 800 °C pendant 10 minutes sous une pression uniaxiale de 50 MPa, puis un polissage pour réduire l'épaisseur des deux rondelles de céramique en alumine, puis une soudure avec des fils, nous obtenons le transformateur suivant :

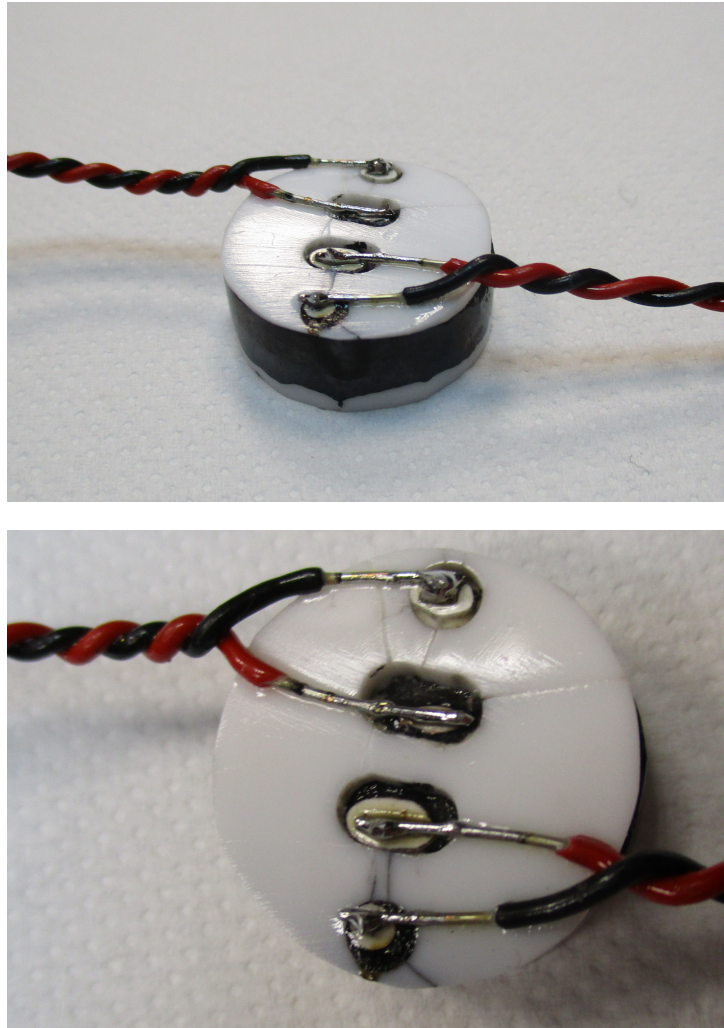


FIGURE 7.42 – Transformateur de la série des septièmes essais. Diamètre 20 mm.

Ici aussi, on observe aisément la peinture céramique autour des contacts. De plus, on observe que le ferrite s'est infiltré entre la rondelle de céramique et le moule au moment de l'application de la pression uniaxiale, ce qui explique l'irrégularité de la frontière entre les deux matériaux. On précise que cette imperfection n'est présente qu'en périphérie du composant. On précise aussi qu'il est possible de poncer suffisamment la céramique en alumine afin de l'enlever entièrement.

Enfin, on mesure la résistance d'isolation des transformateurs de la septième série. La grande dispersion des valeurs nous amène à ne pas donner seulement la moyenne, comme fait pour les transformateurs des série précédentes.

TABLE 7.5 – Résistance d’isolation des transformateurs de la septième série.

numéro	résistance d’isolation
Transfo 1	31,8 k Ω
Transfo 2	1,20 M Ω
Transfo 3	10,6 k Ω
Transfo 4	138 k Ω
moyenne	345 k Ω

On note une nette amélioration de la résistance d’isolation, pouvant même atteindre une valeur supérieure au mégohm, ce qui commence à être acceptable pour une isolation galvanique. La raison pouvant expliquer la grande hétérogénéité des valeurs provient de la peinture céramique. Pour cette série, nous avons bien augmenté l’épaisseur de la peinture, mais il est difficile de reproduire exactement cette couche d’un échantillon à l’autre.

Malheureusement, tout comme les échantillons précédents, il est possible de visualiser à l’aide de la tomodesitométrie quelques fissures dans le matériau.

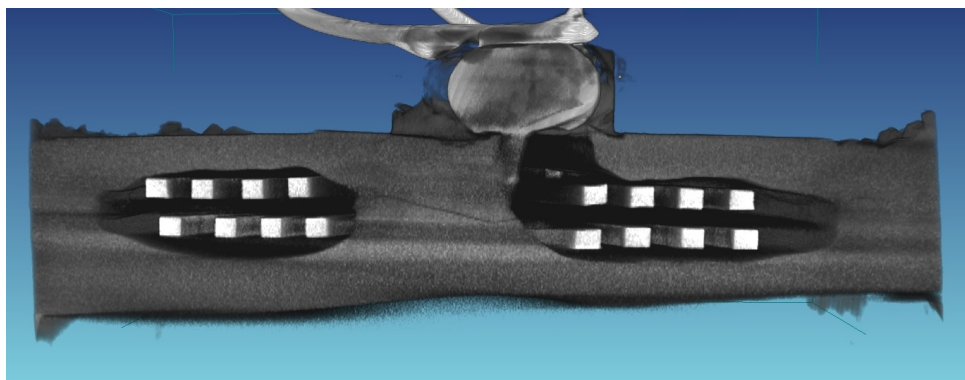


FIGURE 7.43 – Visualisation de fissure, notamment dans la jambe centrale.

Sur la figure 7.43, les rondelles en céramique ont été filtrées numériquement afin d’avoir un meilleur contraste sur le ferrite. On repère bien une fissure dans la jambe centrale, et qui est vue comme un entrefer. Cet entrefer diminue le coefficient de couplage entre le bobinage primaire et le secondaire, mais heureusement, la fissure reste très localisée et ne s’est pas répandue dans sur toute la section de la jambe centrale. Enfin, on note aussi que la surface inférieure n’est pas aussi plate que pour les échantillons précédents. On estime que ce retrait est dû à la rondelle qui doit freiner le retrait du matériau durant la baisse en température en fin de frittage.

Après tous ces essais, nous n’avons pas conduit d’autres tests car les résistances d’isolation sont devenues acceptables.

7.6 L’assemblage et le cofrittage - version finale

Après toutes ces expériences, il convient de récapituler toutes les modifications apportées et de mettre à jour le protocole d’assemblage pour ensuite réaliser le cofrittage. Une fois de plus, nous omettons d’évoquer les étapes concernant le papiex ; on rappelle donc qu’il faut en revêtir les parois du moule.

Il faut donc, dans l’ordre :

1. réaliser un premier assemblage de 4 rondelles de mica (environ 0,1 mm chacune), auquel on colle les spirales supérieure et inférieure en faisant ressortir les 4 contacts électriques vers le haut,
2. peindre ce premier assemblage avec de la peinture céramique en prenant soin d'enrober la totalité,
3. découper 2 rondelles de céramique en alumine (environ 2 mm chacune), et percer l'une d'entre elles afin de laisser passer les contacts électriques,
4. prendre la partie tubulaire du moule et placer un premier piston,
5. placer la rondelle de céramique non percée,
6. commencer à remplir le moule avec environ 1,8 g de poudre de ferrite,
7. déposer l'assemblage mica-cuivre-peinture au centre,
8. continuer à remplir le moule avec environ 1,8 g de poudre de ferrite,
9. placer la rondelle de céramique percée en prenant soin de faire correspondre les trous avec les contacts électriques,
10. recouvrir le tout de poudre d'alumine qui ne fritte pas afin de protéger les contacts électriques,
11. refermer le moule par le second piston.

Afin d'illustrer ce protocole, une coupe du moule après assemblage est montrée sur la figure suivante :

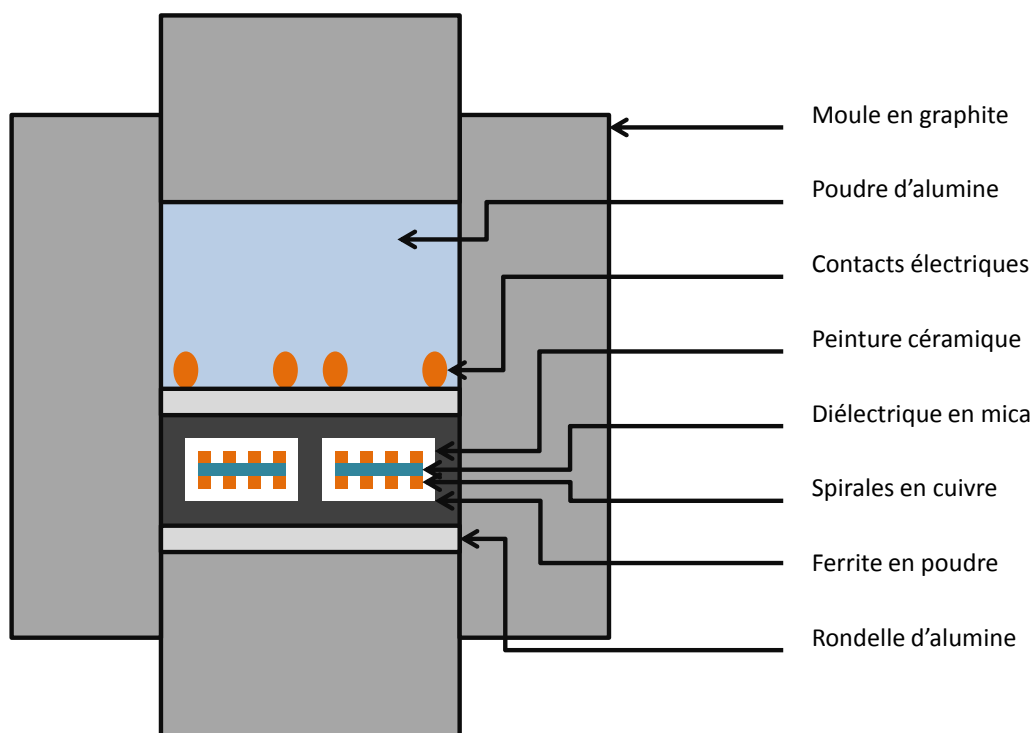


FIGURE 7.44 – Schéma de l'assemblage prêt à être fritté. Version finale.

C'est avec cet assemblage que les transformateurs seront ensuite réalisés pour une application. On rappelle une dernière fois qu'avec le procédé de frittage PECS, ils sont frittés à 800 °C pendant 10 minutes sous une pression uniaxiale de 50 MPa.

7.7 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, nous pouvons affirmer que nous sommes arrivés à réaliser des transformateurs monolithiques fonctionnels, ce qui est un résultat essentiel pour cette thèse²⁴. A chaque prototype fabriqué, nous avons mis en avant les défauts associés, et nous avons proposé une solution technique. Cette succession d'expériences et d'analyses a permis la mise au point d'un protocole de fabrication qui s'avère suffisamment fiable. La validité de ce protocole s'est axée autour de plusieurs tests. Premièrement un test visuel pour vérifier l'intégrité du composant (effritement, délaminage, ...). Deuxièmement, un test par mesure de la résistance d'isolation permet de donner une image de la qualité de la réalisation, car dans le cas d'un transformateur, on souhaite bien évidemment qu'il y ait une isolation galvanique. Troisièmement, la technique de la tomodesitométrie nous permet d'obtenir des tomographies afin d'opérer un contrôle non destructif des composants, principalement dans le but de visualiser l'aspect des spirales de cuivre au sein du matériau magnétique.

24. On remercie au passage Gérard Chaplier pour son aide et ses astuces qui ont permis la réalisation de ces transformateurs.

Troisième partie

Utilisation des composants fabriqués.
Application au cas d'une alimentation
de type VRM

Chapitre 8

Caractéristiques mesurées et simulées des transformateurs

Sommaire

8.1	Introduction	181
8.2	Schémas équivalents et équations	181
8.3	Résultats de mesure	184
8.3.1	Rapport de transformation	184
8.3.2	Inductances	186
8.3.3	Résistances	189
8.3.4	Mesures avec charge résistive	192
8.4	Résultats de simulation	195
8.5	Conclusion	196

8.1 Introduction

Le moment est venue de caractériser les transformateurs fabriqués par le procédé PECS¹. Ces transformateurs sont destinés à être utilisés dans une structure de type alimentation à découpage, et les caractéristiques attendues sont décrites dans un article des techniques de l'ingénieur [FAC⁺91]. Bien que datant d'environ 25 ans, cet article met en avant les grandeurs utiles décrivant le fonctionnement électrique et magnétique d'un tel composant, afin de comprendre sa place dans une structure à découpage.

Il convient dans ce chapitre d'extraire les caractéristiques des transformateurs afin déterminer un modèle équivalent, et de les comparer avec quelques simulations par éléments finis.

8.2 Schémas équivalents et équations

Il existe plusieurs schémas électriques pour modéliser un transformateur. Certains se dessinent simplement par quelques éléments de base, d'autres au contraire s'attardent à prendre en compte tous les éléments parasites ou non linéaires. Par exemple, on peut citer

1. PECS est l'acronyme de Pulsed Electric Current Sintering, qui est la technologie de frittage employée.

ici la thèse d'Ambroise Schellmanns qui décrit étape par étape des schémas équivalents complet d'un transformateur à deux enroulements puis à trois enroulements [Sch99]. On peut aussi citer la thèse de Wenhua Tan, qui tient à modéliser les éléments parasites en haute fréquence pour les prendre en compte dans la conception de filtres planaires [Tan12]. Notre approche ici est toute différente. Plutôt que d'obtenir des schémas complexes permettant une bonne connaissance des systèmes réels, nous avons fait le choix de se limiter à une modélisation simple tout en sachant qu'elle est représentative d'un fonctionnement dans des conditions restreintes.

Nous utilisons donc les deux schémas ci dessous qui sont équivalents :

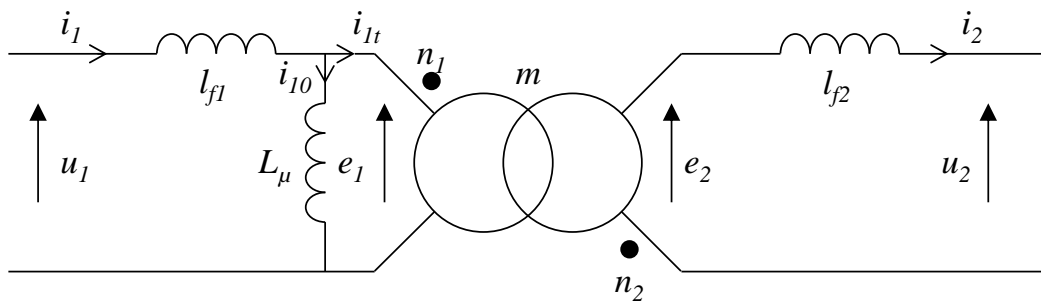


FIGURE 8.1 – Schéma de type transformateur.

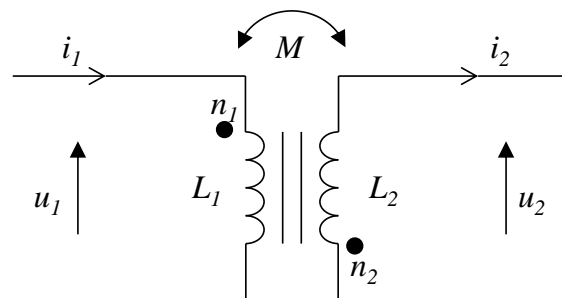


FIGURE 8.2 – Schéma de type inductances couplées.

Bien qu'équivalent, les deux schémas existent car ils ne mettent pas l'accent sur les mêmes grandeurs électriques. Par exemple, le schéma de type **transformateur** met en avant l'inductance magnétisante L_μ , tandis que le schéma de type **inductances couplées** fait intervenir l'inductance mutuelle M . Nous avons ici volontairement occulté les éléments dissipatifs (résistances pertes cuivre et résistances pertes fer), car nous verrons dans la suite que les inductances de fuites sont en fait le défaut majeur des transformateurs fabriqués, car elles ne sont pas négligeables devant l'inductance mutuelle.

On précise tout de même le nom des grandeurs des figures 8.1 et 8.2. Sur le premier schéma, u_1 , u_2 , i_1 et i_2 sont les grandeurs électriques d'entrée et de sortie et qui sont toujours mesurables par des sondes de tension et de courant. e_1 et e_2 sont les forces électromotrices (fem) primaire et secondaire de la partie idéale du transformateur, et qui ne sont pas toujours mesurables. n_1 et n_2 sont respectivement le nombre de tours des enroulement primaire et secondaire, et qui sont tous les deux de quatre dans notre étude. m est le rapport du nombre de tours, et qui vaut ici $m = \frac{n_2}{n_1} = 1$, il est aussi vu comme le

rapport de transformation du transformateur idéal. En général, ce rapport de transformation du transformateur idéal est quelque peu différent du rapport de transformation du transformateur réel, qui lui est défini comme étant le rapport de la tension secondaire sur la tension primaire. Le courant i_{1t} est le courant entrant dans la partie idéale du transformateur, et il est lié au courant secondaire par la relation $i_{1t} = m \cdot i_2$. Le courant i_{10} est la courant magnétisant (ou le courant à vide), et il est à minimiser car il ne participe pas directement au transfert de puissance du primaire vers le secondaire. l_{f1} et l_{f2} sont respectivement les inductances de fuite primaire et secondaire. Sur le second schéma, on trouve en plus L_1 et L_2 qui sont respectivement l'inductance vue du primaire et l'inductance vue du secondaire, aussi appelées les inductances propres de chacun des enroulements. Enfin, M est l'inductance mutuelle.

Ces deux schémas sont équivalents et il est tout à fait possible de déterminer des relations entre les différentes grandeurs. A partir du schéma électrique de type **inductances couplées**, on peut écrire les équations magnétiques et électriques au primaire comme au secondaire :

$$\psi_1 = n_1 \phi_1 = L_1 \cdot i_1 - M \cdot i_2 \quad (8.1)$$

$$\psi_2 = n_2 \phi_2 = M \cdot i_1 - L_2 \cdot i_2 \quad (8.2)$$

$$u_1 = L_1 \cdot \frac{di_1}{dt} - M \cdot \frac{di_2}{dt} \quad (8.3)$$

$$u_2 = M \cdot \frac{di_1}{dt} - L_2 \cdot \frac{di_2}{dt} \quad (8.4)$$

A partir du schéma électrique de type **transformateur**, on peut écrire les équations électriques au primaire comme au secondaire :

$$\begin{aligned} u_1 &= l_{f1} \cdot \frac{di_1}{dt} + L_\mu \cdot \frac{di_{10}}{dt} \\ &= l_{f1} \cdot \frac{di_1}{dt} + L_\mu \cdot \frac{d(i_1 - i_{1t})}{dt} \\ &= l_{f1} \cdot \frac{di_1}{dt} + L_\mu \cdot \frac{d(i_1 - m \cdot i_2)}{dt} \\ &= (l_{f1} + L_\mu) \cdot \frac{di_1}{dt} - m \cdot L_\mu \cdot \frac{di_2}{dt} \end{aligned} \quad (8.5)$$

$$\begin{aligned} u_2 &= e_2 - l_{f2} \cdot \frac{di_2}{dt} \\ &= m \cdot e_1 - l_{f2} \cdot \frac{di_2}{dt} \\ &= m \cdot L_\mu \cdot \frac{di_{10}}{dt} - l_{f2} \cdot \frac{di_2}{dt} \\ &= m \cdot L_\mu \cdot \frac{d(i_1 - m \cdot i_2)}{dt} - l_{f2} \cdot \frac{di_2}{dt} \\ &= m \cdot L_\mu \cdot \frac{di_1}{dt} - (m^2 \cdot L_\mu + l_{f2}) \cdot \frac{di_2}{dt} \end{aligned} \quad (8.6)$$

Par identification des équations électriques, on en déduit les relations qui permettent de faire une équivalence des grandeurs des deux schéma :

$$L_\mu = \frac{M}{m} \quad (8.7)$$

$$L_1 = l_{f1} + L_\mu \Leftrightarrow l_{f1} = L_1 - \frac{M}{m} \quad (8.8)$$

$$L_2 = l_{f2} + m^2 L_\mu \Leftrightarrow l_{f2} = L_2 - mM \quad (8.9)$$

Dans notre cas, les transformateurs monolithiques fabriqués par le procédé PECS ont été conçus avec quatre tours au bobinage primaire et quatre également au bobinage secondaire. On a donc :

$$m = \frac{n_2}{n_1} = \frac{4}{4} = 1 \quad (8.10)$$

ce qui permet de simplifier les équations précédentes :

$$L_\mu = M \quad (8.11)$$

$$L_1 = l_{f1} + L_\mu \Leftrightarrow l_{f1} = L_1 - M \quad (8.12)$$

$$L_2 = l_{f2} + L_\mu \Leftrightarrow l_{f2} = L_2 - M \quad (8.13)$$

On se permet d'insister une dernière fois : c'est uniquement dans ce cas particulier que l'inductance magnétisante est égale à l'inductance mutuelle, et qu'il faut garder en tête qu'elles prennent en général des valeurs différentes.

Enfin, on définit le coefficient de couplage k , qui n'est pas représenté sur les schémas, comme suit :

$$k = \frac{M}{\sqrt{L_1 L_2}} \quad (8.14)$$

8.3 Résultats de mesure

Nous avons à disposition quatre transformateurs numérotés 1, 2, 3, et 4, ainsi qu'un transformateur à air, c'est-à-dire un transformateur comprenant deux enroulements séparés par un diélectrique mais qui ne comprend pas de matériau magnétique. Ce transformateur à air est numéroté 0.

8.3.1 Rapport de transformation

Un résultat des plus intéressants concernant les transformateurs est le rapport de transformation. Il est défini comme étant le rapport de la tension secondaire u_2 sur la tension primaire u_1 . Dans le cas où le transformateur est idéal, ce rapport est aussi égale au rapport des nombres de spires n_2 sur n_1 . Pour notre étude, nous avons mesuré ce rapport de transformation en fonction de la fréquence avec de l'analyseur HP 4194 A. Ce rapport de transformation dépend de la charge mise au secondaire, et avec l'analyseur il nous a été possible de faire des mesures à vide ou bien avec une charge de 50 ohms.

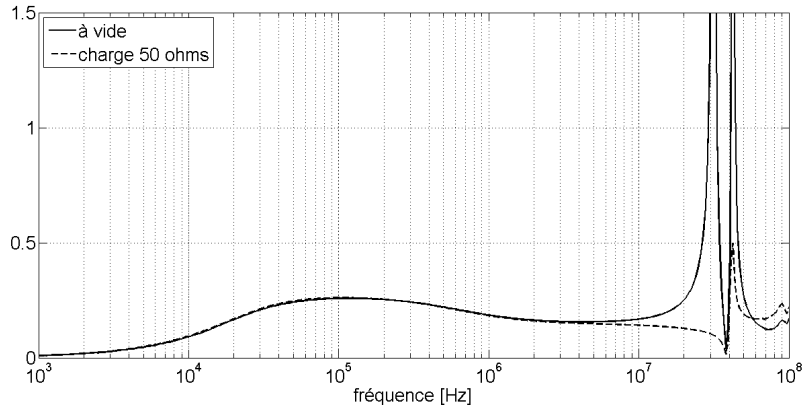


FIGURE 8.3 – Rapport de transformation du transformateur 0 (à air).

La figure 8.3 montre le rapport de transformation d'un transformateur à air. Ce transformateur ayant 4 spires au primaire et 4 au secondaire, le rapport de transformation idéal est de 1. Cependant, avec l'absence de matériau magnétique, le flux n'est pas canalisé, et le champ créé par le primaire n'est pas entièrement vu par le secondaire. Ceci explique les faibles valeurs mesurées. Il est possible d'améliorer ce rapport de transformation du transformateur à air en plaçant correctement les bobines l'une par rapport à l'autre, et de manière à maximiser les surfaces en regard. Dans notre mesure, nous avons placé les spirales identiquement au cas du transformateur avec circuit magnétique.

On remarque cependant deux résonances, une à la fréquence de 31 MHz et l'autre à la fréquence de 42 MHz. Ces résonances sont dues aux capacités parasites des spirales, et elles sont amorties dès qu'une résistance de charge est branchée.

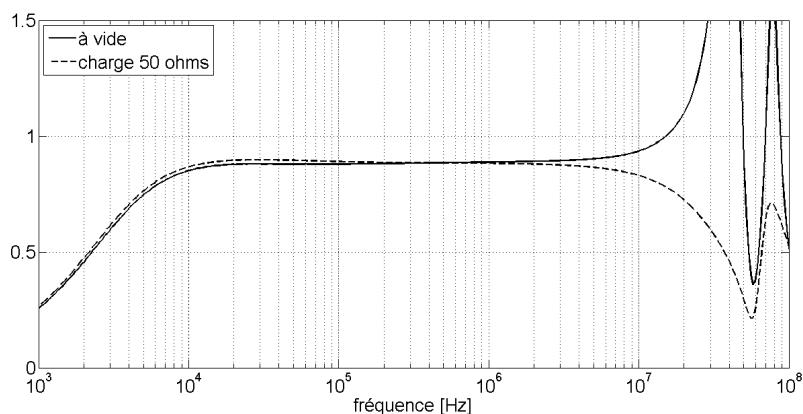


FIGURE 8.4 – Rapport de transformation du transformateur 1 (avec ferrite fritté par le procédé PECS).

Sur le spectre la figure 8.4, on retrouve les mêmes résonances en haute fréquence, et qui sont amorties quand le transformateur est chargé. Ce spectre permet aussi de délimiter une bande utile comprise entre 10 kHz et 10 MHz. Entre ces fréquences, le rapport de transformation est maximal et prend une valeur relativement stable. Ce rapport devrait être égale à 1 si le transformateur était idéal, mais il est de 0,885 (à 1 MHz), ce qui signifie que les inductances de fuite ne sont pas négligeables devant l'inductance mutuelle.

Afin d'avoir une idée de la dispersion des valeurs, on trace les courbes des rapports de transformation des quatre transformateurs, lorsqu'ils sont chargés par 50 ohms afin

d'avoir aussi l'image de la bande utile.

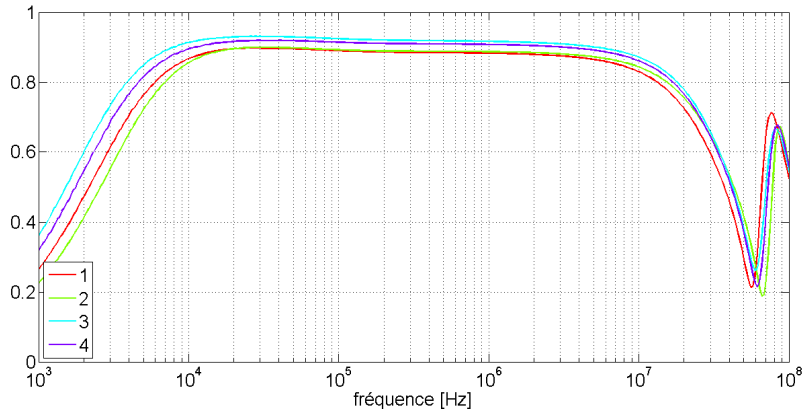


FIGURE 8.5 – Rapport de transformation des transformateurs avec une charge de 50 ohms.

Sur la figure 8.5, on relève que les transformateurs ont un comportement très similaire les uns par rapport aux autres. On en déduit que le frittage par procédé PECS est reproductible, et que les petites dispersions des valeurs sont sans doute dues aux manipulations lors de l'assemblage ; par exemple, il est difficile de positionner les bobines dans le moule exactement au même endroit pour chaque échantillon. Les valeurs des rapports de transformation à 1 MHz sont données dans le tableau suivant :

TABLE 8.1 – Rapport de transformation à 1 MHz chargé par 50 Ω .

Échantillon	u_2/u_1
1	0,883
2	0,887
3	0,916
4	0,907

8.3.2 Inductances

Par la suite, il est nécessaire de mesurer les inductances propres L_1 , qui est l'inductance de l'impédance d'entrée des transformateurs. Dans cette étude, l'inductance propre L_1 est aussi la somme de l'inductance de fuite l_{f1} et de l'inductance mutuelle M .

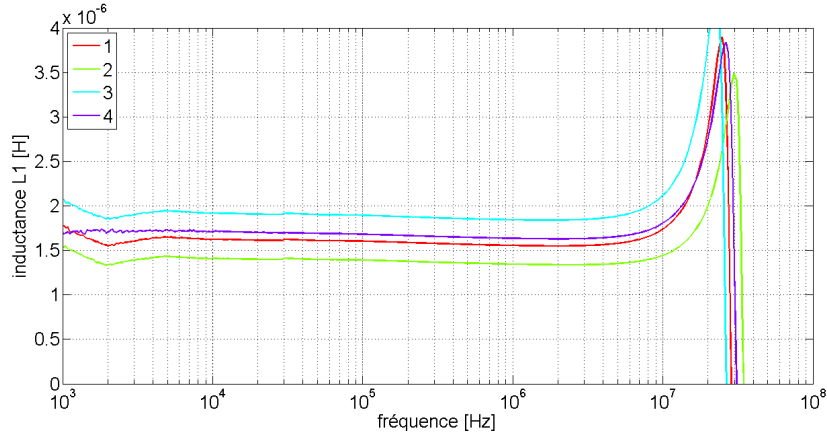


FIGURE 8.6 – Inductances L_1 .

Il est à noter que dans la bande utile, la valeur des inductances propres L_1 est compris entre 1 et 2 μH . Ces inductances sont de type $L = \frac{n^2}{\mathcal{R}}$, et compte tenu du faible nombre de tours, on comprend les faibles valeurs. Par ailleurs, au delà de 10 MHz, les mesures sont faussées. En effet, l'analyseur HP 4194 A mesure une impédance sous forme de module et de phase ($Z = |Z| \exp(j\theta)$), et nous avons tracé les courbes d'inductance en utilisant un modèle R - L série. Or, au vu des courbes tracées précédemment, des effets capacitifs sont notables au delà de 10 MHz. Des mesures similaires ont été réalisées pour les inductances propres L_2 , et les valeurs se trouvent être quasi identiques. Ceci s'explique par la bonne symétrie du composant, où la réluctance du circuit magnétique associé à la spirale supérieure est de même valeur que celle du circuit magnétique associé à la spirale inférieure. Enfin, les valeurs des inductances propres L_1 à 1 MHz sont données dans le tableau suivant :

TABLE 8.2 – Inductances propres L_1 à 1 MHz.

Échantillon	L_1 en μH
1	1,56
2	1,34
3	1,84
4	1,63

Bien que du même ordre de grandeur, on remarque une dispersion plus prononcée sur les valeurs d'inductances que sur les valeurs du rapport de transformation. Ceci s'explique par le fait que l'inductance est plus sensible au positionnement des spirales que ne peut l'être le rapport de transformation. En effet, l'inductance est inversement proportionnelle à la réluctance, qui s'écrit : $\mathcal{R} = \frac{\ell}{\mu_0 \mu_r S}$; et la section du circuit magnétique dépend de la position des spirales. Il suffit que lors de l'application de la pression uniaxiale les spirales se déplacent un peu, la réluctance est inévitablement modifiée. En revanche, le rapport de transformation est sensible à la position des spirales, l'une par rapport à l'autre. Celles-ci sont fixées sur les rondelles de mica avant le frittage, et leurs positions relativement reste inchangées. Le matériau magnétique permet de canaliser le flux magnétique, et comme les mesures ont été réalisées loin de la saturation du matériau, la position des spirales présente moins d'influence sur la rapport de transformation que sur l'inductance.

Par la suite, on mesure l'inductance mutuelle M de ces quatre transformateurs. Pour

cela, il faut mesurer le courant primaire à l'aide d'une sonde² et la tension secondaire.

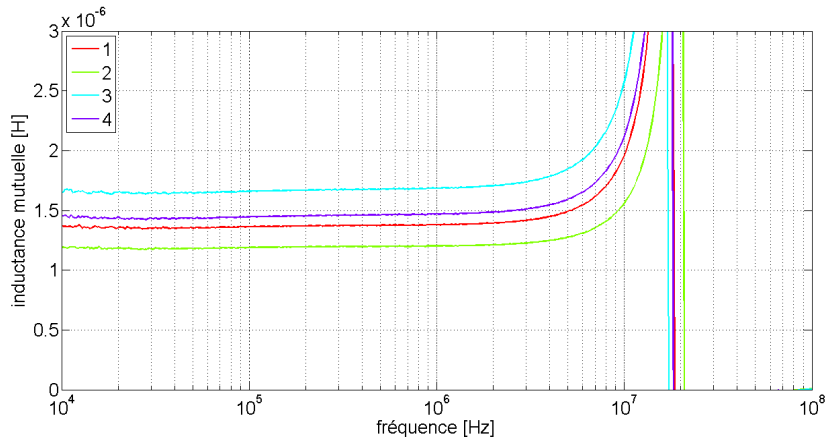


FIGURE 8.7 – Inductances mutuelles M .

Une fois encore, il faut savoir faire preuve de prudence pour les mesures au delà de 10 MHz. En effet, à ces fréquences les valeurs des inductances mutuelles M sont plus élevées que les inductances propres L_1 , ce qui n'est pas physique. On peut toujours l'expliquer par le fait que les mesures ont été calées sur un modèle R - L série sans prendre en compte les capacités parasites. Cependant, on estime que les mesures à 1 MHz sont fiables car à cette fréquence il n'y a que peu d'effet des capacités. On donne les valeurs suivantes :

TABLE 8.3 – Inductances mutuelles M à 1 MHz.

Échantillon	M en μH
1	1,38
2	1,20
3	1,69
4	1,47

On rappelle que pour notre étude, l'inductance mutuelle M présentée sur le schéma de type **inductances couplées** a la même valeur que l'inductance magnétisante L_μ présentée sur le schéma **transformateur**, car les enroulements présentent le même nombre de tours. De ces mesures, il est possible d'en déduire l'inductance de fuite l_{f1} , en utilisant la relation : $l_{f1} = L_1 - M$. On obtient alors les valeurs suivantes :

TABLE 8.4 – Inductances de fuites l_{f1} à 1 MHz.

Échantillon	l_{f1} en μH	l_{f1}/L_1
1	0,18	0,12
2	0,14	0,10
3	0,15	0,08
4	0,16	0,10

2. Il est nécessaire de faire une correction sur les sondes de courant, car elles apportent généralement un déphasage. Une mesure au préalable sur une charge connue permet de retrouver la fonction de transfert afin de pouvoir l'inverser lors de la correction. Par ailleurs, sur la figure 8.7, la plage de fréquence débute à 10 kHz et non à 1 kHz car la sonde possède elle-même une bande passante.

On note que les inductances de fuites l_{f1} sont relativement élevées, elles représentent environ 10 % de la valeur des inductances propres L_1 . Ceci n'est pas un bon présage pour les transformateurs, car en général les inductances de fuites des transformateurs industriels sont négligeables devant les inductances propres, dans le but de maximiser le couplage.

Des mesures similaires ont été effectuées pour déterminer L_2 et l_{f2} , et il se trouve que les valeurs obtenues sont quasi identiques (aux erreurs d'incertitudes près). Cela se traduit par le fait que les enroulements des transformateurs fabriqués sont interchangeables, dans le sens où il n'est pas nécessaire de différencier le primaire du secondaire.

8.3.3 Résistances

Par la suite, nous avons tout de même mesuré la partie résistive des enroulements. Sur le schéma électrique du transformateurs, il est d'usage de modéliser les pertes cuivre par une résistance R_j en série avec l'inductance de fuite, et les pertes fer par une résistance R_f en parallèle avec l'inductance magnétisante.

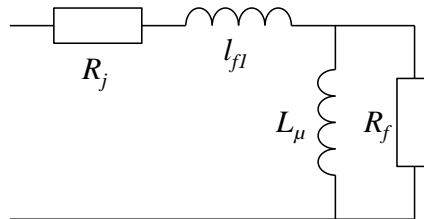


FIGURE 8.8 – Modèle électrique du primaire d'un transformateur non chargé ($i_2 = 0$).

L'impédance équivalente en régime harmonique vaut :

$$Z_{eq} = R_j + \frac{R_f L_{\mu}^2 \omega^2}{R_f^2 + L_{\mu}^2 \omega^2} + j \left(L_f \omega + \frac{R_f^2 L_f \omega}{R_f^2 + L_{\mu}^2 \omega^2} \right) = R_{eq} + j X_{eq} \quad (8.15)$$

La mesure partie réelle de l'impédance (R_{eq}) des enroulements est montrée sur la figure suivante.

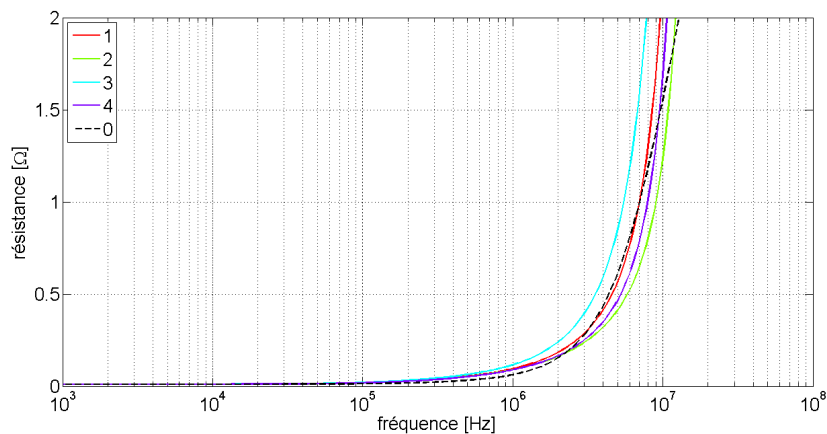


FIGURE 8.9 – Résistances des enroulements (partie réelle de l'impédance R_{eq}).

Sur la figure 8.9, on représente le spectre de la partie réelle de l'impédance qui représente les pertes cuivre et les pertes fer. Comme attendu, la résistance R_{eq} de chaque échantillon augmente avec la fréquence. La résistance du cuivre augmente à cause de l'apparition de l'effet de peau, et la résistance des pertes fer augmente car les cycles d'hystérésis des matériaux magnétiques s'élargissent et sont parcourus plus de fois par seconde.

Par ailleurs, le transformateur à air ne présente que des pertes cuivre, et pourtant, entre 2 MHz et 10 MHz, les pertes sont plus importantes que dans les transformateurs qui présentent quant à eux des pertes cuivre mais aussi des pertes fer. Cela est dû au fait que la présence du matériau magnétique diminue l'intensité du champ magnétique dans les spirales de cuivre, et diminue par la même occasion l'influence de l'effet de peau. Cependant, à plus haute fréquence, les pertes fer augmentent suffisamment pour que les pertes dans les transformateurs soient supérieures aux pertes cuivre du transformateur à air.

Cependant, si l'on souhaite avoir une idée de la valeur de R_f , il faut supposer que la valeur R_j soit identique pour tout les échantillons. Cette approximation est acceptable pour les basses fréquences, et on peut estimer qu'à 1 MHz, $R_j = 62,0 \text{ m}\Omega$. Il est alors possible de déterminer la résistance R_f des pertes fer connaissant R_{eq} , R_j et L_μ en écrivant :

$$R_{eq} = R_j + \frac{R_f L_\mu^2 \omega^2}{R_f^2 + L_\mu^2 \omega^2} \Leftrightarrow R_f^2 (R_{eq} - R_j) - R_f L_\mu^2 \omega^2 + L_\mu^2 \omega^2 (R_{eq} - R_j) = 0 \quad (8.16)$$

où on reconnaît une équation du second degré, et les racines sont de la forme :

$$R_f = \frac{L_\mu^2 \omega^2 \pm \sqrt{L_\mu^4 \omega^4 - 4L_\mu^2 \omega^2 (R_{eq} - R_j)^2}}{2(R_{eq} - R_j)} \quad (8.17)$$

Mathématiquement il existe donc deux valeurs possible pour R_f . Il faut donc choisir celle qui paraît la plus plausible physiquement. Pour cela, on calcule ces deux valeurs³ pour le premier transformateur à la fréquence de 1 MHz :

$$R_f = 32,7 \text{ m}\Omega \quad \text{ou} \quad R_f = 2,30 \text{ k}\Omega \quad (8.18)$$

Quelle valeur choisir ? Dans le cas où $R_f = 32,7 \text{ m}\Omega$ qui est une valeur très faible par rapport à l'impédance de l'inductance magnétisante, cela signifierait que le courant d'entrée i_1 circulerait principalement dans la résistance R_f et très peu dans l'inductance magnétisante L_μ . Cela se traduirait par le fait qu'il y aurait beaucoup de pertes et très peu d'inductance. Or, lorsque l'on trace les spectres des perméabilités μ' et μ'' du matériau seul, on a :

3. Ces deux résultats se retrouvent en faisant les deux approximations suivantes. La première est $R_f^2 \ll L_\mu^2 \omega^2$, alors

$$R_{eq} = R_j + \frac{R_f L_\mu^2 \omega^2}{R_f^2 + L_\mu^2 \omega^2} \xrightarrow{R_f^2 \ll L_\mu^2 \omega^2} R_{eq} = R_j + R_f$$

et la seconde est $R_f^2 \gg L_\mu^2 \omega^2$, alors

$$R_{eq} = R_j + \frac{R_f L_\mu^2 \omega^2}{R_f^2 + L_\mu^2 \omega^2} \xrightarrow{R_f^2 \gg L_\mu^2 \omega^2} R_{eq} = R_j + \frac{L_\mu^2 \omega^2}{R_f}$$

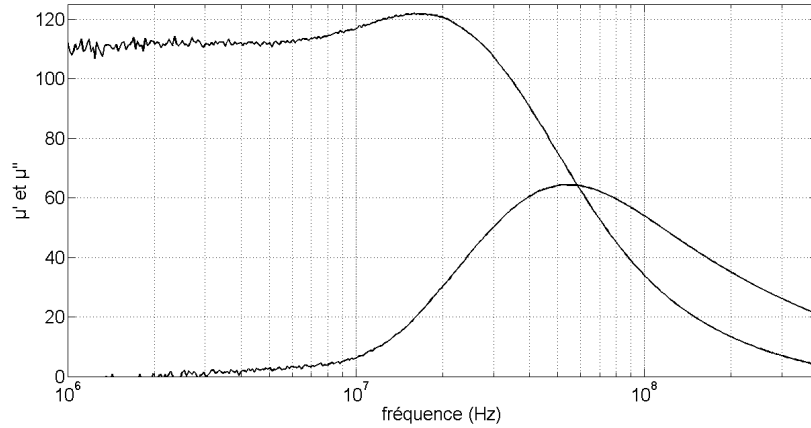


FIGURE 8.10 – Spectre des perméabilité du ferrite des transformateurs.

Sur la figure 8.10, on relève que la valeur de μ'' est quasi nulle à 1 MHz alors que ce n'est pas le cas pour μ' . A cette fréquence, le matériau est donc plutôt inductif que dissipatif. Ceci permet de trancher quant à la valeur de la résistance R_f à choisir : il faut choisir le cas où $R_f = 2,30 \text{ k}\Omega$.

Finalement, la racine donnant des résultats réalistes est celle qui se calcule avec le signe plus au numérateur. On peut alors dresser le tableau de valeurs à 1 MHz :

TABLE 8.5 – Valeurs de résistances des transformateurs à 1 MHz.

Échantillon	R_{eq} en $\text{m}\Omega$	R_j en $\text{m}\Omega$	R_f en $\text{k}\Omega$
0	62,0	62,0	$+\infty$
1	94,7	62,0	2,30
2	89,1	62,0	2,10
3	116	62,0	2,09
4	88,4	62,0	3,23

On remarque que $R_{eq} \approx R_j + \frac{L_\mu^2 \omega^2}{R_f}$, qui est bien le résultat lorsque $R_f^2 \gg L_\mu^2 \omega^2$. Pour cette raison, on peut considérer qu'elle n'intervient pas, et que les pertes fer sont négligeables à cette fréquence. C'est pour cette même raison que nous avons fait le choix de ne pas la représenter sur le schéma de la figure 8.1.

Enfin, nous avons mesuré la résistance d'isolation entre les deux enroulements en fonction de la fréquence, toujours à l'aide de l'analyseur HP 4194 A. On rappelle qu'en continu, nous avons mesuré à l'ohmmètre les résistances suivantes :

TABLE 8.6 – Résistance d'isolation DC des transformateurs.

Échantillon	R_{DC} d'isolation
1	31,8 $\text{k}\Omega$
2	1,20 $\text{M}\Omega$
3	10,6 $\text{k}\Omega$
4	138 $\text{k}\Omega$

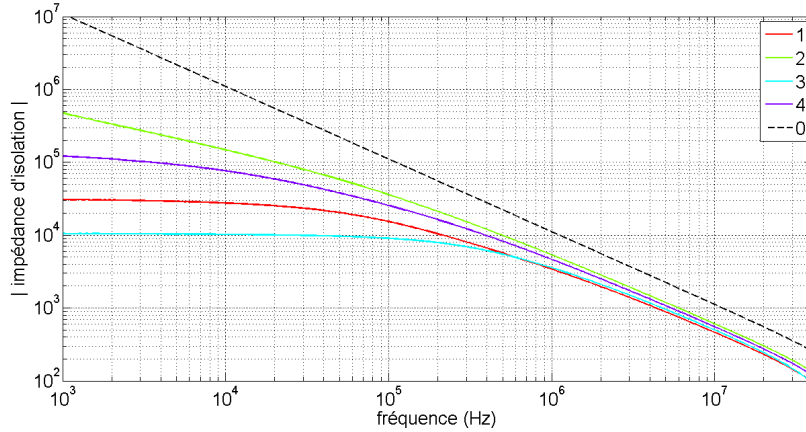


FIGURE 8.11 – Module de l'impédance d'isolation.

Sur la figure 8.11, le spectre de l'impédance d'isolation est tracé pour les quatre transformateurs ainsi que pour le transformateur à air numéroté 0. On précise que cette mesure est réalisée en injectant une tension de 1 V crête-à-crête. Le transformateur à air permet de visualiser l'effet des capacités parasites, dont on s'est pour l'instant bien gardé de les localiser⁴. Elles permettent cependant de fixer une limite supérieure de l'impédance d'isolation, et on remarque que cette impédance est purement capacitive, avec une pente de -20dB/dec. On peut d'ailleurs calculer ici la valeur de la capacité entre primaire et secondaire : à 1 MHz, l'impédance est de $10^4 \Omega$, ce qui correspond à une capacité de 15,9 pF. Bien que nous nous soyons réjouis d'avoir amélioré considérablement cette résistance lors de la mise au point de la fabrication des transformateurs, elle semble ici bien faible dès lors que l'on souhaite travailler à une fréquence de l'ordre du mégahertz. On dresse la tableau de valeurs de cette résistance d'isolation pour chacun des échantillons à la fréquence de 1 MHz.

TABLE 8.7 – Impédance d'isolation à 1 MHz.

Échantillon	Impédance d'isolation
0	11,1 k Ω
1	3,41 k Ω
2	5,37 k Ω
3	3,56 k Ω
4	4,65 k Ω

8.3.4 Mesures avec charge résistive

Afin de tester les transformateurs dans des conditions réelles, il faut le relier à une alimentation et à une charge. Afin de minimiser les problèmes de résistance d'isolation, nous avons fait les mesures sur le transformateur numéro 2. A 1 MHz, on rappelle que $L_\mu = M = 1,20 \mu\text{H}$ et $l_{f1} = l_{f2} = 0,14 \mu\text{H}$. L'impédance liée à l'inductance magnétisante est $L_\mu\omega = 7,54 \Omega$. Cette valeur est en fait très contraignante, car elle limite la valeur de la charge. En effet, il est toujours possible de ramener les éléments du circuit secondaire au

4. Sont-ce des capacités entre enroulements ou bien entre tours? Certains répondraient "les deux mon capitaine!"

niveau du circuit primaire. Ces éléments remplacent alors le transformateur. On illustre ces propos par les schémas suivants :

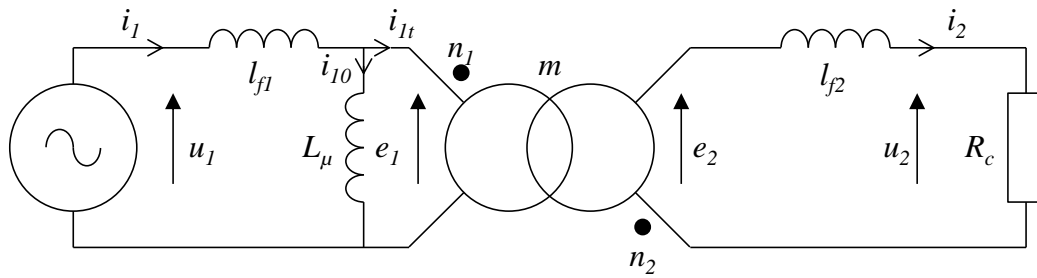


FIGURE 8.12 – Schéma électrique équivalent.

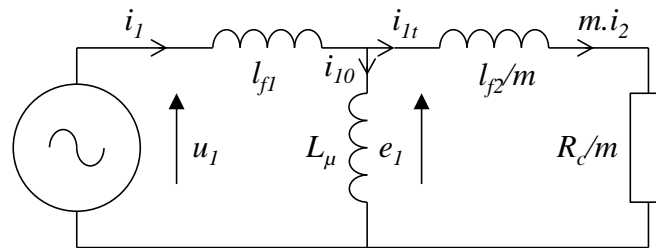


FIGURE 8.13 – Schéma électrique équivalent, avec le secondaire ramené au primaire.

On rappelle que dans notre cas, $m = \frac{n_2}{n_1} = 1$. On remarque alors que si on veut maximiser le courant i_{1t} qui est l'image du courant i_2 , il faut alors que l'impédance $\sqrt{R_c^2 + l_{f2}^2 \omega^2}$ soit plus faible que l'impédance $L_\mu \omega$, qui vaut $7,54 \Omega$ à 1 MHz . Il faut alors que la résistance de charge R_c soit la plus faible possible.

Dans le cas extrême où $R_c = 0$, on a alors $i_{10} = \frac{l_{f2}}{l_\mu + l_{f2}} i_1 \approx 0,1 \cdot i_1$ et de même on a $i_2 = i_{1t} = \frac{l_\mu}{l_\mu + l_{f2}} i_1 \approx 0,9 \cdot i_1$. Cela signifie que même en court-circuit, le courant magnétisant i_{10} n'est pas négligeable devant le courant de sortie i_2 . On peut affirmer que les transformateurs sont assez mal dimensionnés...

Une première solution pour remédier à ce problème serait d'augmenter l'inductance magnétisante. Pour cela il faudrait soit augmenter la perméabilité soit reconcevoir la géométrie du circuit magnétique. Pour ce qui est de la perméabilité, il serait possible de modifier les paramètres de frittage afin d'avoir des cristallites plus grosses pour augmenter la susceptibilité par l'apparition de domaines de Weiss ; mais cela risquerait de diminuer la bande passante du matériau. Pour la géométrie, cela paraît difficile de la modifier car nous sommes limités par les dimensions du moule de frittage.

Une deuxième solution serait d'augmenter la fréquence, pour augmenter l'impédance liée à $L_\mu \omega$. Cependant, on se souvient que les pertes cuivre et fer ont été négligées à 1 MHz , mais qu'elles deviennent importantes au-delà. Travailler à plus haute fréquence impliquerait des pertes qui ne sont évidemment pas souhaitables.

Envers et contre tout, nous avons tout de même souhaité effectué des mesures avec une charge réelle. Pour cela, nous avons placé une charge de 10Ω non inductive et capable de dissiper 100 W . A 1 MHz , il faut prendre soin de minimiser la longueur de fils et de les

torsader afin d'éviter les effets de propagation d'onde, car si on souhaite faire des mesures précises, il est nécessaire d'acquérir les signaux de manière synchrone pour ne pas ajouter un déphasage.

Sur la figure suivante, on trace les tensions et courants d'entrée et de sortie.

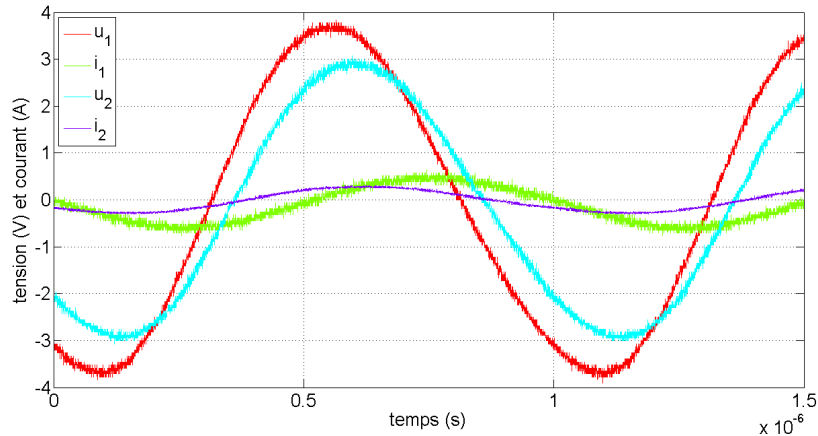


FIGURE 8.14 – Grandeurs électriques d'un transformateur chargé par 10Ω .

Ces mesures sont brutes, c'est-à-dire qu'elles sont issues de l'oscilloscope sans traitement comme par exemple un moyennage ou une acquisition en mode haute résolution. De ces courbes, on extrait les valeurs intéressantes :

TABLE 8.8 – Valeurs efficaces des grandeurs électriques.

Grandeur	Valeur
u_{1eff}	2,60 V
u_{2eff}	2,06 V
i_{1eff}	379 mA
i_{2eff}	198 mA

De ces courbes, on calcule aussi d'autres grandeurs qui sont en rapport avec l'électronique de puissance :

TABLE 8.9 – Grandeurs pour l'électronique de puissance.

Grandeur	Valeur
rapport de transformation	0,793
S_1	0,985 VA
P_1	0,348 W
Q_1	0,921 var
$\cos(\phi_1)$	0,353
S_2	0,408 VA
P_2	0,403 W
Q_2	0,060 var
$\cos(\phi_2)$	0,989

Plusieurs conclusions sont à tirer des valeurs. Premièrement, on peut évoquer le rapport de transformation qui est logiquement plus faible avec une charge de 10Ω qu'avec

une charge de 50Ω (la charge de 50Ω était celle de l'analyseur d'impédance, et la mesure était faite pour le rapport de transformation en fonction de la fréquence). On évoque également que les tension u_1 et u_2 ne sont pas tout à fait en phase, et que ce déphasage est dû aux inductances de fuites. Deuxièmement, on note que la puissance absorbée par le primaire est essentiellement de la puissance réactive, ce qui reste cohérent avec le fait que l'inductance magnétisante est très faible et qu'elle absorbe donc beaucoup de courant. Ce résultat est visible sur les courbes de la figure 8.14, où le courant i_1 est plutôt en quadrature qu'en phase avec la tension u_1 . Troisièmement, la puissance fournie par le secondaire à la charge est quant à elle essentiellement active, ce qui signifie que la résistance de charge est peu inductive, et le peu de puissance réactive est certainement lié au câblage. Quatrièmement, un résultat qui nous échappe quelque peu, est le fait que la puissance active délivrée par le secondaire est plus grande que la puissance active absorbée par le primaire ; ce qui implique que le rendement est supérieur à 1 ($\eta = \frac{0,403}{0,348} = 1,16$). Bien entendu, ce résultat cache une erreur de mesure, et même après calibration des sondes de courant, nous n'avons pas su la localiser.

8.4 Résultats de simulation

Comme les mesures effectuées à des fréquences de l'ordre du mégahertz ne sont pas évidentes, et que les résultats ne sont pas toujours justes, le choix a été fait de les comparer à des simulations numériques en utilisant la méthode des éléments finis⁵. Le logiciel mis à disposition est Maxwell qui est inclus dans la suite Ansys.

La première étape est de dessiner le transformateur en 3D le plus justement possible.

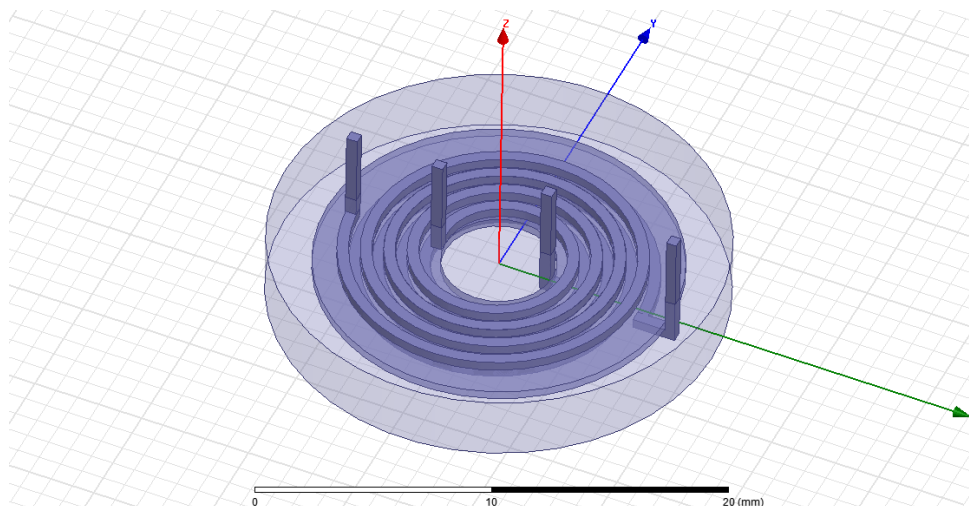


FIGURE 8.15 – Dessin du transformateur sur le logiciel Maxwell.

Comme pour les échantillons, l'enroulement primaire est celui qui se trouve au-dessus du mica, et l'enroulement secondaire est celui qui se trouve au-dessous. Les caractéristiques du cuivre et du mica peuvent être chargées à partir du logiciel, mais pour le ferrite, il a fallu renseigner la résistivité ($\rho=35 \Omega.m$) et la perméabilité ($\mu=110$). Puis, par une simulation avec les solveurs par défaut du logiciel, les résultats des inductances sont les suivants :

5. On remercie ici Mickaël Petit d'avoir participé aux simulations.

TABLE 8.10 – Valeurs simulées des inductances.

Inductance	Valeur en μH
L_1	4,59
L_2	4,72
M	4,37

Les résultats de simulations donnent des valeurs du même ordre de grandeur que les valeurs mesurées. Cependant, les simulations donnent des valeurs environ deux fois plus grandes, que ce soit pour les inductances propres ou mutuelles, et donc aussi pour les inductances de fuites. Cette différence s'explique par la non prise en compte de la couche de peinture céramique lors de la simulation. En effet, un premier test en ajoutant cette couche de peinture a considérablement augmenté le nombre de cellules du maillage, et n'a pas permis au calcul de converger. Intuitivement, le volume occupé par la peinture augmente la distance entre conducteur et matériau magnétique, ce qui explique que les inductances mesurées sont plus faibles que les inductances simulées.

8.5 Conclusion

Au vue des mesures présentées dans ce chapitre, nous concluons que les transformateurs fabriqués par le procédé PECS sont mal dimensionnés. Nous avons identifié deux principales causes :

- La première cause est la faible valeur de l'inductance magnétisante L_μ (qui est égale dans notre étude à la mutuelle M). Sa faible valeur limite considérablement la possibilité de charger les transformateurs par de grandes charges, car l'impédance liée à cette inductance est de $7,54 \Omega$ à 1 MHz.
- La deuxième cause est la valeur des inductances de fuites par rapport à l'inductance magnétisante. En effet, l_{f1} et l_{f2} ne sont pas négligeables devant L_μ (ou M), ce qui se traduit par un rapport de transformation trop faible pour une utilisation efficace.

L'utilisation prévue des ces composants, à savoir les utiliser comme transformateurs, semble donc bien compromise pour une alimentation à découpage. Il faut donc leur trouver un autre usage, ce qui est fait dans le chapitre suivant 9, où leur place est toute trouvée lorsqu'ils sont utilisés comme coupleur.

Chapitre 9

Application : la réalisation d'un convertisseur statique DC-DC

Sommaire

9.1	Introduction	197
9.2	La structure : le VRM entrelacé couplé	198
9.3	Simulations des formes d'ondes	199
9.4	La réalisation du prototype	200
9.5	Performances de la structure	202
9.6	Conclusion	210

9.1 Introduction

En début de projet de thèse, l'idée était de réaliser un transformateur monolithique fritté par le procédé PECS. Après bien des améliorations, il a été possible de réaliser de tels transformateurs, mais les caractéristiques mesurées étaient bien éloignées de celles d'un transformateur idéal. Deux défauts majeurs rendent ces composants non fonctionnels. Le premier est la faible impédance d'isolation entre les deux enroulements. Le second est la faible inductance magnétisante, ce qui se répercute sur le fait que l'inductance de fuite n'est pas négligeable par rapport à l'inductance mutuelle.

Nous avons tout de même souhaité les utiliser dans une structure de conversion de puissance¹. Pour cela, il a fallu se détacher du projet initial qui était de les insérer dans une alimentation de type flyback ou forward. Au vu des caractéristiques des composants fabriqués, nous avons abandonné l'utilisation en mode transformateur, et nous avons opté pour une utilisation en mode coupleur, où le composant vient coupler magnétiquement les courants électriques circulant dans deux lignes électriques.

L'inductance de fuite du transformateur peut alors être vue comme une inductance classique et qui peut par exemple être utile pour du filtrage afin de lisser le courant. Ce qui était un défaut en mode transformateur peut être maintenant vue comme un avantage en mode coupleur.

1. On remercie au passage Fabien Adam, Denis Labrousse, et Bertrand Revol de l'équipe EPI (Électronique de Puissance et Intégration) pour leur aide précieuse dans la réalisation du prototype présenté dans ce chapitre.

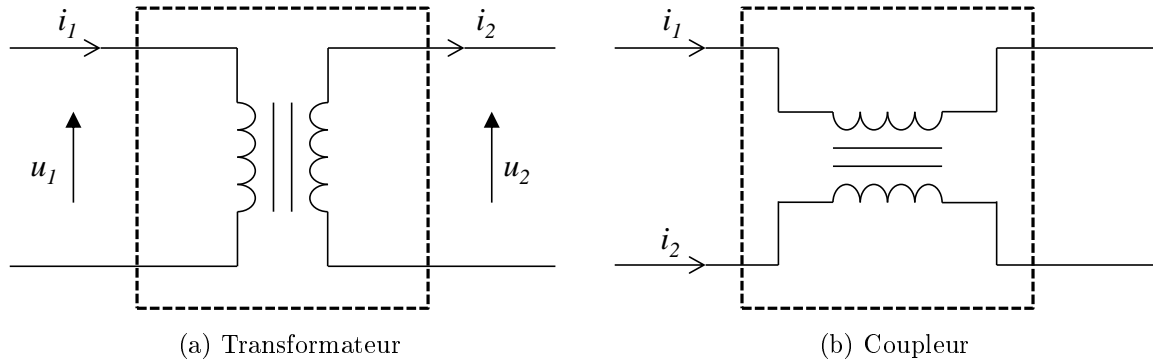


FIGURE 9.1 – Deux branchements menant à deux modes d'utilisation différents pour un même composant.

9.2 La structure : le VRM entrelacé couplé

Le choix s'est porté sur un convertisseur continu-continu de type hacheur série entrelacé couplé par TICs, pour une application VRM. L'acronyme VRM signifie Voltage Regulator Module, et l'application a donné son nom à ce type de convertisseur. C'est une structure de convertisseur abaisseur, et qui se retrouve notamment dans les blocs d'alimentation des microprocesseurs des cartes mères des ordinateurs. L'adjectif entrelacé implique qu'il existe plusieurs cellules de commutation au sein de l'alimentation, et que les lois de commande des cellules sont déphasées entre elles. Par exemple, nous allons mettre en place une structure à trois phases, et donc les commandes des interrupteurs des cellules sont déphasées de $\frac{T}{3}$ l'une par rapport à l'autre. Chaque sortie de cellule de commutation est couplée par des TICs, qui est l'acronyme de Transformateurs InterCellules, autrement dit par des coupleurs.

Nous nous sommes limités à une structure à 3 bras d'ondulateur, car le but est ici d'illustrer les performances des coupleurs plutôt que d'inventer une nouvelle structure. Le schéma électrique est le suivant :

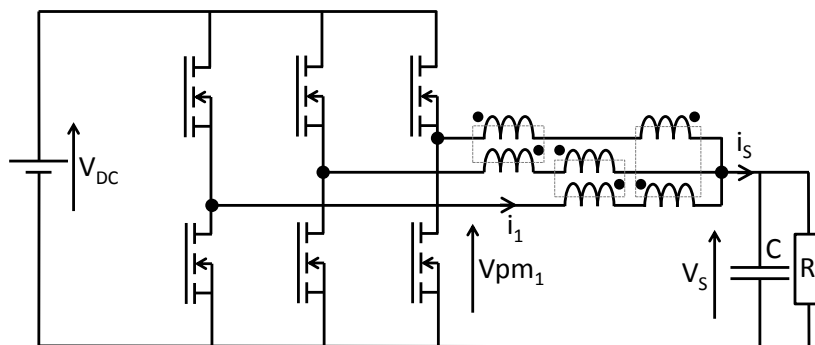


FIGURE 9.2 – Schéma électrique de la structure VRM entrelacée couplée étudiée.

Le principal intérêt de cette structure est de diminuer l'ondulation de courant de sortie i_s . En effet, si la fréquence de découpage des interrupteurs est à f , la fréquence du premier harmonique du courant de sortie est aussi égale à f , mais du fait du couplage, l'harmonique ayant l'amplitude la plus grande est à $3f$, ce qui permet de diminuer l'ondulation. Ce

résultat se retrouve aussi dans les sorties de cellules de commutation, où l'harmonique de plus grande amplitude des courants i_1 , i_2 et i_3 se trouve à une fréquence de $3f$.

La relation entrée-sortie est similaire à celle d'un hacheur abaisseur, et on a idéalement :

$$\boxed{V_S = \alpha \cdot V_{DC}} \quad (9.1)$$

avec α le rapport cyclique de la commande des interrupteurs.

9.3 Simulations des formes d'ondes

Deux articles présentent de manière analytique cette structure de convertisseur. Le premier décrit les équations régissant le fonctionnement des grandeurs électriques [PK97], et le second introduit des éléments de dimensionnement [FLMS09]. Les équations décrivant le fonctionnement de la structure VRM entrelacée couplée sont complexes, principalement à cause du couplage entre les branches issues des cellules de commutation. Nous avons donc eu recours à la simulation pour prédire le comportement des grandeurs physiques, notamment des courants dans chaque phase et la tension dans la charge.

Cette simulation a été réalisée sous Matlab Simulink en boucle ouverte, c'est-à-dire sans régulation de la tension de sortie. On choisit alors les valeurs des composants, de la tension d'entrée et du rapport cyclique pour ensuite observer la tension de sortie ainsi que les formes d'ondes des courants. Le but a été, en outre, de prédire l'ordre de grandeur de la fréquence f pour avoir un point de fonctionnement satisfaisant.

On rappelle que les inductances propres et mutuelles des coupleurs sont celles des transformateurs fabriqués précédemment, et les valeurs sont en moyenne :

TABLE 9.1 – Valeurs moyennes des mesures des inductances.

Inductance	Valeur en μH
L_1	1,6
M	1,4

On utilise ici les valeurs moyennes des inductances plutôt que les valeurs mesurées de chaque composant dans le but de simplifier la simulation, et aussi d'obtenir des formes équilibrées.

Pour le choix des valeurs des autres composants, il est intéressant d'obtenir une résistance de charge, une capacité de filtrage, ainsi qu'une fréquence de découpage les plus faibles possibles, tout en préservant le bon fonctionnement de l'alimentation.

La résistance de charge peut simuler ici l'impédance d'entrée d'une carte mère. Ces cartes électroniques sont de plus en plus gourmandes en puissance au fur et à mesure que les technologies progressent. On imagine alors une carte nécessitant 100 W et alimentée sous 12 V, ce qui se traduit par une résistance d'entrée de 1,44 Ω . La capacité doit être la plus faible possible car nous restons dans une optique d'intégration de puissance, et il est nécessaire de réduire au mieux le volume des composants passifs. Enfin, une faible fréquence de découpage est souvent synonyme de faibles pertes par commutation, et limite l'apparition de problèmes liés à la compatibilité électromagnétique. Empiriquement, des formes d'ondes intéressantes ont été obtenues avec les valeurs suivantes :

TABLE 9.2 – Valeurs des grandeurs électriques déterminées empiriquement.

Grandeur	Valeur
résistance	2Ω
capacité	$1 \mu\text{F}$
fréquence de découpage	2 MHz
tension d'entrée	24 V
tension de sortie	12 V
rapport cyclique	0,5

La fréquence est de 2 MHz, alors que les mesures du chapitre précédent sont effectuées à 1 MHz, ce qui est du même ordre de grandeur. Avec ces valeurs, les courbes issues des simulations sont les suivantes :

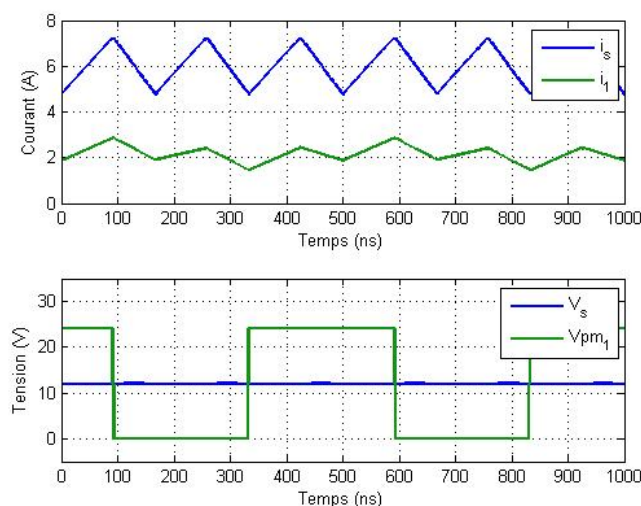


FIGURE 9.3 – Formes d'ondes simulées.

La nomenclature correspond à celle de la figure 9.2 : i_S est le courant de sortie, i_1 est le courant sortant d'une des cellules de commutation, V_S est la tension de sortie, et V_{pm1} est la tension du point milieu, c'est-à-dire celle de la sortie d'une des cellules de commutation. Comme attendu, la fréquence apparente du courant de sortie est de 6 MHz (3×2 MHz). Toujours sur les simulations, on note que l'ondulation du courant est de 2,5 A, ce qui correspond à 42 % de la valeur moyenne du courant, qui est de 6 A. Ceci est principalement lié aux faibles valeurs d'inductances des coupleurs. La tension de sortie est bien de 12 V, et on devine au pixel près une légère ondulation de tension, ce qui est dû au fait que la valeur de la capacité est dimensionnée au plus juste. Cette ondulation est de 50 mV.

9.4 La réalisation du prototype

Afin de valider les résultats obtenus, nous avons mis en œuvre une structure VRM couplée à trois phases. Le principal soucis technique est de choisir correctement des transistors de puissance pouvant fonctionner à la fréquence de 2 MHz.

Les cellules de commutation sont réalisées à partir de composants GaN commercialisés par Texas Instruments² (LMG5200). Il s'agit de composants 80 V, 10 A. La particularité de ce composant est que les drivers (de type bootstrap) sont directement intégrés dans le même boîtier facilitant ainsi la mise en œuvre. Une gestion des temps mort est cependant nécessaire. Une photographie d'un bras est représentée sur la figure suivante :

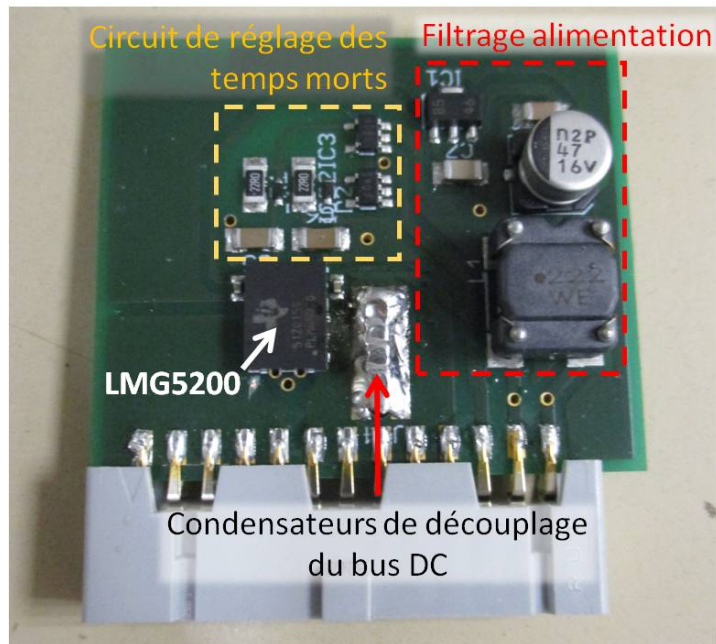


FIGURE 9.4 – Cellule de commutation avec driver.

Sur la figure 9.4, on peut voir les composants GaN et leur driver intégré (LMG5200), le circuit de réglage des temps morts et le circuit de filtrage de l'alimentation du driver. Les condensateurs de découplage du bus DC sont des composants CMS montés en traversant afin de minimiser au maximum l'inductance de la maille de commutation. Ces cellules de commutation sont branchées sur une carte fond de panier, ce qui permet de de connecter les autres éléments du montage.

2. Texas Instruments, Dallas, Texas 75243, États-Unis.

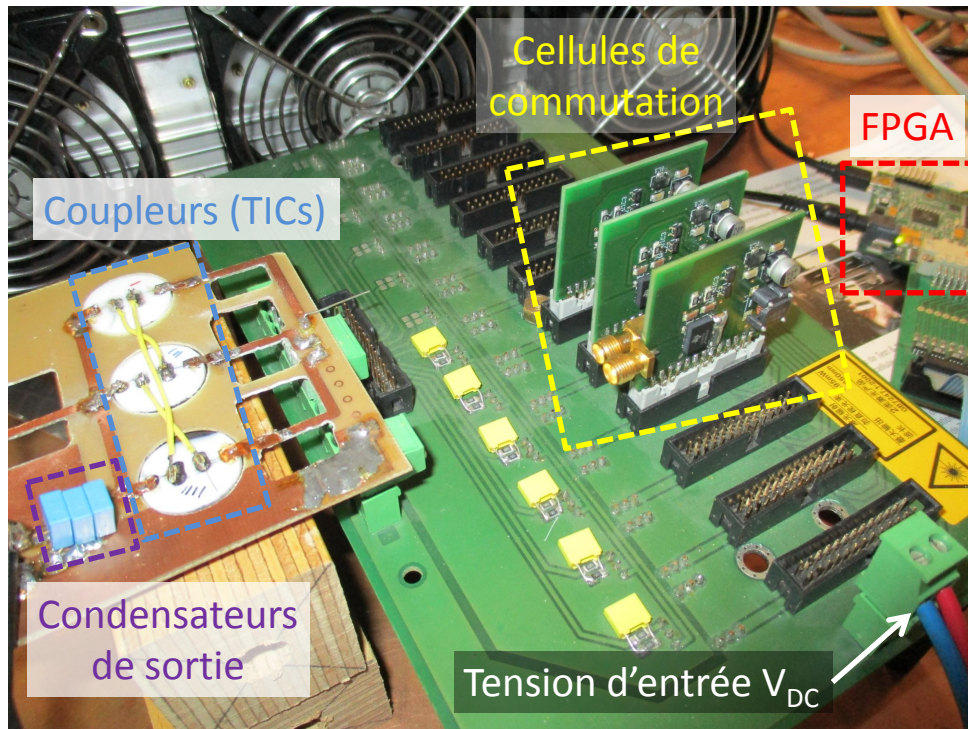


FIGURE 9.5 – Prototype du convertisseur VRM entrelacé couplé réalisé.

Sur la figure 9.5, la photographie montre le prototype. Bien qu'un des objectifs soit l'intégration de puissance, la structure est ici volontairement éclatée afin d'avoir accès à différents points de mesures. On retrouve les trois cellules de commutation ainsi que les trois coupleurs (numérotés 1, 3, et 4 dans le chapitre précédent). On repère le condensateur de sortie de $1 \mu\text{F}$ ($3 \times 330 \text{ nF}$). La résistance de charge de 2Ω se situe derrière les ventilateurs. La tension d'entrée V_{DC} provient d'une alimentation stabilisée. Enfin, un DSP TMS320F28335 permet de programmer à souhait la commande des interrupteurs.

Il convient d'éclaircir quelque peu la commande. Le module DSP permet de réaliser une commande par MLI (modulation de largeur d'impulsion). La fréquence interne est de 150 MHz , et si on souhaite obtenir une fréquence de découpage de 2 MHz , il suffit de réaliser un compteur qui compte jusqu'à 75. Pour régler le rapport cyclique à $\alpha = 0,5$, il faut donc modifier le signal de commande des transistors lorsque le compteur atteint la valeur de 37.

9.5 Performances de la structure

Par la suite, nous avons mesuré tensions et courants dans le but de les comparer avec la simulation dans les mêmes conditions ($V_{DC} = 24 \text{ V}$, $\alpha = 0,5$, $f_d = 2 \text{ MHz}$). On précise qu'il est difficile d'accéder au plus près du potentiel de sortie de la cellule de commutation, et que la mesure est inévitablement dégradée par les inductances parasites liées au point d'insertion de la sonde. L'oscilloscope permettant de visualiser les signaux est un LeCroy³ de la série des WaveRunner, modèle HRO 66Zi, ayant une bande passante de 600 MHz , une fréquence d'échantillonnage de 2 GS/s , pour une résolution de 12 bit. Les sondes de tensions utilisées sont celles de l'oscilloscope, donc des sondes passives 10 :1 avec une bande

3. Teledyne LeCroy, 700 Chestnut Ridge, New York 10977, USA.

passante de 500 MHz. Les sondes de courants proviennent aussi de l'entreprise LeCroy, modèle CP031 et sont spécifiées 30 A et 100 MHz.

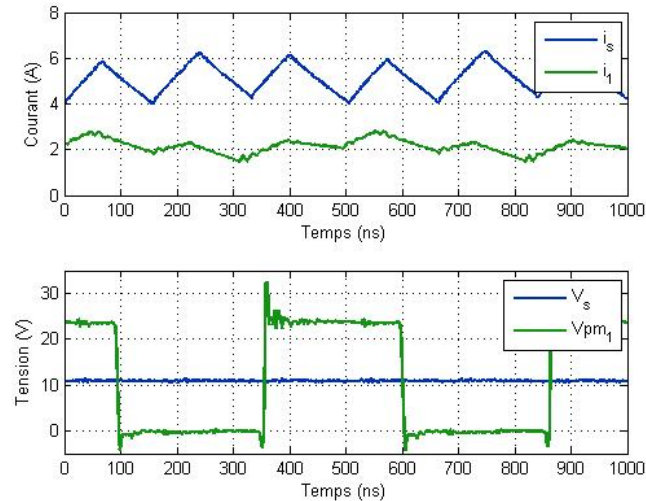


FIGURE 9.6 – Formes d'ondes mesurées.

Cette figure 9.6 représentant les mesures est à comparer avec la figure 9.3 représentant les simulations, et nous observons une bonne concordance entre les allures.

TABLE 9.3 – Comparaison des valeurs.

	Simulation	Mesure
$\langle V_S \rangle$	12 V	10,9 V
ΔV_S	50 mV	1,15 V
$\langle i_S \rangle$	6 A	5,1 A
Δi_S	2,5 A	2,42 A

La tension moyenne de sortie et le courant moyen de sortie sont cependant plus faibles que prévus. En effet, la simulation étant idéalisée elle n'intègre pas les pertes dans les différents composants qui entraînent ces modifications sur le point de fonctionnement. De même, on remarque que le rapport $\frac{\langle V_S \rangle}{\langle i_S \rangle} \approx 2,14$, ce qui est légèrement supérieur à la valeur de la charge de 2Ω initialement prévue. On pense alors à la tolérance des résistances. On relève aussi les courants dans les trois bras.

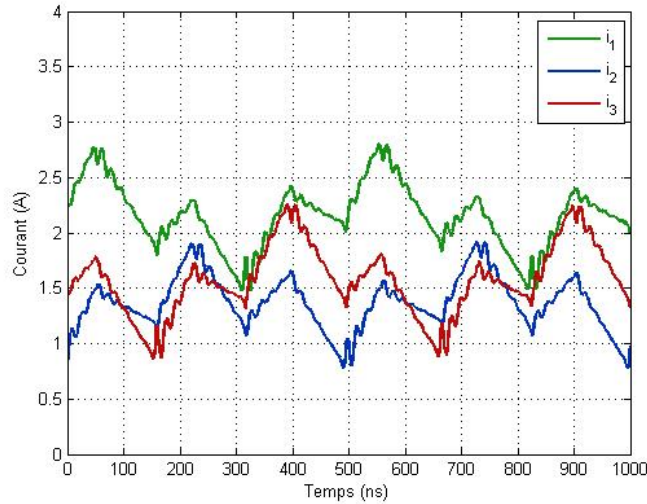


FIGURE 9.7 – Visualisation du déséquilibre dans les phases.

Sur la figure 9.7, il est nécessaire de noter que les courants sont quelque peu déséquilibrés. Ceci est dû au fait que les coupleurs ne sont pas rigoureusement identiques à cause de la dispersion liée à la fabrication. Cette dispersion se fait notamment sentir sur les valeurs des inductances propres et mutuelles des coupleurs, ce qui explique que les formes d’ondes des courants ne sont pas rigoureusement identiques. On précise que les courants i_1 des figures 9.6 et 9.7 sont issus de la même mesure. Pour rappel :

TABLE 9.4 – Valeurs des inductances des coupleurs à 1 MHz.

Phase	Échantillon	L_1 en μH	M en μH
1	1	1,56	1,38
2	3	1,84	1,69
3	4	1,63	1,47

Nous avons donc tenté un équilibrage en adaptant le rapport cyclique de chaque cellule de commutation. Cependant, cela n’a pas été possible, car la fréquence interne du DSP n’est que de 150 MHz, et les graduations issues du compteur ne permettent pas une assez bonne précision. Par exemple, si l’on souhaite diminuer la valeur moyenne du courant i_1 , il faut diminuer la valeur du rapport cyclique de la première cellule de commutation. La valeur correspondante au résultat de la figure 9.7 est de $\alpha = \frac{37}{75} = 0,4933$. Si on diminue d’une graduation cette valeur, on obtient $\alpha = \frac{36}{75} \approx 0,48$. Malheureusement ce rapport cyclique devient trop faible, et cela déséquilibre encore plus les courants. Pour effectuer correctement l’équilibrage, il faudrait dans des travaux futurs utiliser un DSP ayant une fréquence interne plus élevée afin d’obtenir une meilleure résolution sur le compteur. De plus, il serait intéressant de réaliser cet équilibrage non pas à la main, mais de faire un équilibrage actif. Pour cela, il est nécessaire d’avoir des capteurs de courant pour pouvoir ajuster en temps réel le rapport cyclique de chaque cellule de commutation. Cependant, afin d’adapter correctement ce rapport cyclique, les sondes de courant doivent posséder une grande bande passante, ce qui rend la mise en œuvre trop onéreuse, raison pour laquelle nous ne l’avons pas fait.

D’autres mesures ont été réalisées pour caractériser l’alimentation. Les courants et

tensions d'entrée et de sortie ont été mesurés par des multimètres de marque Metreix⁴. Nous avons notamment mesurer le rendement total en fonction du rapport cyclique, et cela pour des tensions d'entrées de 12 V et 24 V, et pour des fréquences de découpages de 1 et 2 MHz.

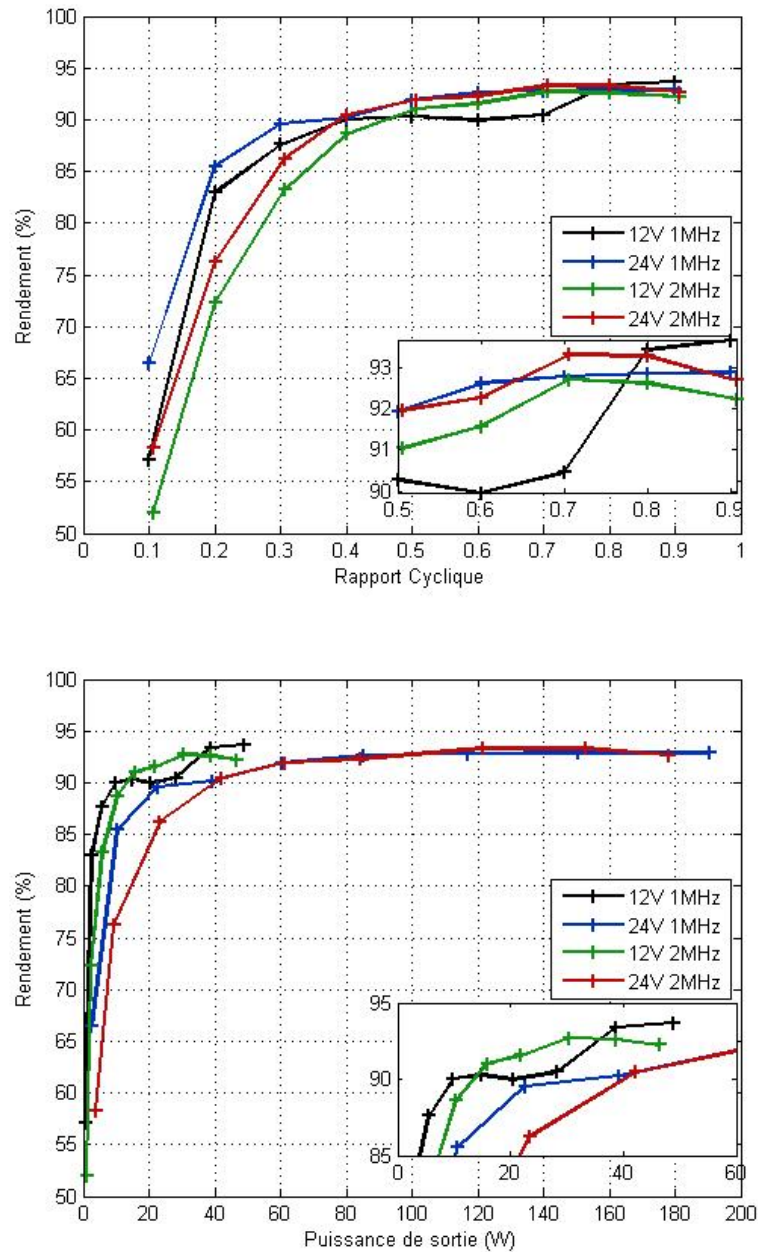


FIGURE 9.8 – Rendement total de la structure.

Sur les graphes de la figure 9.8, chaque courbe est constituée de neuf points qui sont fonction du rapport cyclique, car $\alpha \in \{0, 1, \dots, 0, 9\}$.

Classiquement pour ce type de convertisseur hacheur abaisseur, le rendement augmente avec le rapport cyclique. Ceci provient principalement des pertes par commutation qui sont fixes quelque soit la valeur de α ainsi que les pertes par hystérésis du ferrite des

4. Chauvin Arnoux / Metreix, 190 rue Championnet, 75876 Paris.

coupleurs, et qui deviennent faibles par rapport à la puissance transmise au fur et à mesure que le rapport cyclique augmente.

On remarque que quelque soit la configuration ($V_{DC}=12$ V ou $V_{DC}=24$ V, $f_d=1$ MHz ou $f_d=2$ MHz), les rendements atteignent une valeur comprise entre 90 et 95 %, ce qui est un résultat très encourageant pour un premier prototype non intégré. Le rendement prend la valeur maximale de 93,7 % pour une tension de 12 V et une fréquence de découpage de 1 MHz.

Ensuite, nous avons mesuré les pertes totales pour plusieurs fréquences pour un rapport cyclique fixé à 0,75 et une tension d'entrée maintenue à 12 V. Cette mesure permet d'obtenir une première estimation des pertes statiques (pertes DC + pertes par conduction dans les transistors) en extrapolant linéairement les pertes jusqu'à une fréquence nulle.

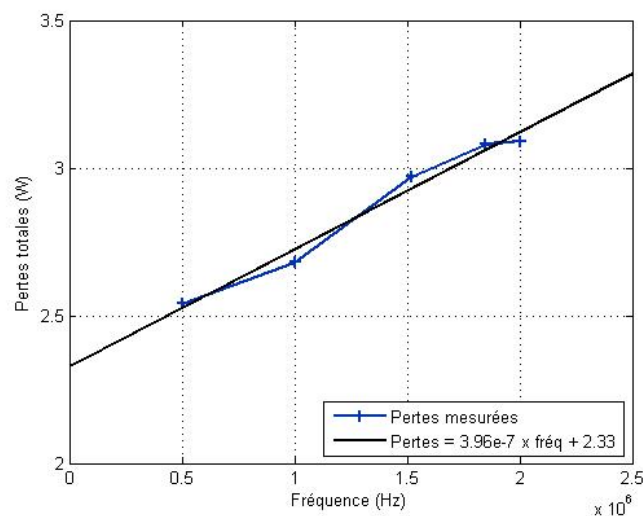


FIGURE 9.9 – Pertes en fonction de la fréquence.

Un point mérite d'être éclairci. Sur la figure 9.9, on remarque bien que les pertes augmentent avec la fréquence. Cependant, les valeurs des courbes de rendements de la figure 9.8 sont très proches pour les courbes à une fréquence de découpage de 1 ou 2 MHz. Si le rendement reste identique alors que la fréquence a doublé, on peut penser que les pertes sont invariantes avec la fréquence, alors que la figure 9.9 montre le contraire. Cela est dû aux valeurs de pertes qui sont très faibles, et qui ne jouent finalement que très peu sur le rendement.

Pour une tension d'entrée de 12 V et un rapport cyclique réglé à $\alpha = 0,75$, la figure 9.9 montre que les pertes statiques sont ici estimées à 2,33 W. Avec ces réglages, il faut donc comparer ces pertes DC avec la puissance de sortie, qui est d'environ 31 W (cette valeur varie légèrement avec la fréquence de découpage).

Nous avons aussi tenté de localiser les pertes. En effet, les pertes sont-elles plutôt concentrées dans les composants de puissance, dans les matériaux magnétiques des coupleurs, dans les matériaux diélectriques des condensateurs, ou bien sont-elles réparties ? Pour le point de fonctionnement délivrant le plus de puissance ($V_{DC} = 24$ V, $f_d = 1$ MHz, $\alpha = 0,5$), la puissance d'entrée est de $24 \times 8,56 = 205$ W et la puissance de sortie est de $20 \times 9,54 = 191$ W. La différence est donc de 14 W. Le premier réflexe est d'utiliser la caméra thermique pour visualiser l'échauffement des composants. Cependant, il se trouve

que la température des composants ne varie pas d'un iota⁵. Des relevés de courant et de tension à l'oscilloscope s'imposent, mais malheureusement, avec une fréquence de découpage de l'ordre du mégahertz, les sondes utilisées ne possèdent pas une assez grande bande passante. En effet, si l'on souhaite mesurer les pertes dans les transistors, la commutation s'effectuant sur quelques nanosecondes, il est nécessaire d'avoir des sondes ayant des bandes passantes de quelques gigahertz pour effectuer une mesure précise. A ces fréquences, il faut aussi contrôler la longueur des câbles, car le temps de propagation ne peut plus être négligé. Un phénomène ayant un temps caractéristique d'une nanoseconde est associé à une longueur d'onde de 20 centimètres. De même, pour parcourir un mètre dans un câble, l'information met 5 nanosecondes, ce qui est du même ordre de grandeur que le temps de commutation. On en conclut que si l'on veut mesurer correctement courant et tension pour avoir les pertes par commutation, il est indispensable d'avoir du matériel de précision.

Toutefois, il nous est possible par un petit calcul permet d'estimer les pertes se situant dans le cuivre des pistes des cartes électroniques. On imagine alors que les pertes joules s'écrivent approximativement :

$$P_J = R_1 i_{1eff}^2 + R_2 i_{2eff}^2 + R_3 i_{3eff}^2 \quad (9.2)$$

avec R et i_{eff} la résistance d'une piste et le courant qui y circule. Cependant, à cause de l'effet de peau, la résistance n'est pas la même pour la composante continue que pour la composante alternative, car la composante alternative du courant ne circule qu'en périphérie. Il faut donc distinguer trois zones sur les pistes, comme indiqué sur la figure suivante :

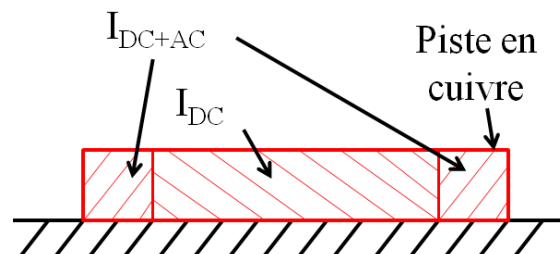


FIGURE 9.10 – Vue en coupe des courants dans une piste à cause de l'effet de peau.

Il y a donc une zone au milieu où ne circule que le courant continu, et deux zones aux extrémités où circule une partie du courant continu ainsi que le courant alternatif. Chaque piste étant quasiment identique, on suppose alors que $R_1 = R_2 = R_3 = R$. On dissocie par la même occasion une résistance R_{DC} pour la composante continue et une résistance R_{AC} pour la composante alternative. Chaque piste a une longueur d'environ 50 cm, une largeur d'environ 1 mm, et une épaisseur $35 \mu\text{m}$. A température ambiante, la conductivité du cuivre est $60 \times 10^6 \text{ S.m}^{-1}$, et l'épaisseur⁶ de peau est de $66 \mu\text{m}$, les résistances se calculent donc comme suit :

5. iota (en grec : ι) : plus petite lettre de l'alphabet grec, utilisée pour désigner une petite quantité négligeable. L'expression ne pas bouger d'un iota vient de l'évangile selon Matthieu : « Amen, je vous le dis : Avant que le ciel et la terre disparaissent, pas un seul iota, pas un seul trait ne disparaîtra de la Loi jusqu'à ce que tout se réalise »

6. Afin d'éviter de calculer l'épaisseur de peau pour tous les harmoniques de la forme triangulaire des courants, on approxime en posant que l'épaisseur de peau est identique pour tous les harmoniques et vaut $66 \mu\text{m}$ à 1 MHz dans le cuivre.

$$R_{DC} = \frac{1}{\sigma} \cdot \frac{l}{S} = \frac{1}{60 \cdot 10^6} \cdot \frac{50 \cdot 10^{-2}}{1 \cdot 10^{-3} \times 35 \cdot 10^{-6}} = 0,238 \quad \Omega \quad (9.3)$$

$$R_{AC} = \frac{1}{\sigma} \cdot \frac{l}{S} = \frac{1}{60 \cdot 10^6} \cdot \frac{50 \cdot 10^{-2}}{2 \times 66 \cdot 10^{-6} \times 35 \cdot 10^{-6}} = 1,80 \quad \Omega \quad (9.4)$$

Il est aussi possible de dissocier le courant. On pose alors i_{DC} la valeur efficace de la composante continue du courant (qui est aussi par définition la valeur moyenne), et i_{AC} la valeur efficace de la composante alternative du courant. Les pertes joules dans chaque piste peuvent être réécrites de la manière suivante :

$$P_J = Ri_{eff}^2 = R_{DC}i_{DC}^2 + R_{AC}i_{AC}^2 \quad (9.5)$$

L'expression de i_{DC} se calcule comme suit :

$$i_{DC}^2 = \frac{(i_{max} + i_{min})^2}{4} = (i_{moy})^2 \quad (9.6)$$

En supposant que la partie alternative des courants est triangulaire, l'expression de i_{AC} se calcule comme suit :

$$i_{AC}^2 = \frac{(i_{max} - i_{min})^2}{12} = \frac{(\Delta i)^2}{12} \quad (9.7)$$

On dresse alors le tableau de valeurs suivant pour chacun des trois courants de la figure 9.7 :

TABLE 9.5 – Calcul de i_{DC}^2 et i_{AC}^2 .

	i_{max}	i_{min}	i_{DC}^2	i_{AC}^2
i_1	2,75	1,5	4,52	0,130
i_2	1,9	0,8	1,82	0,101
i_3	2,25	0,9	2,48	0,152

On estime finalement les pertes cuivre par :

$$P_J = R_{DC}(i_{1DC}^2 + i_{2DC}^2 + i_{3DC}^2) + R_{AC}(i_{1AC}^2 + i_{2AC}^2 + i_{3AC}^2) = 2,79 \text{ W} \quad (9.8)$$

Sur les 14 W de pertes, une première approximation montre qu'environ 2,79 W se situent dans les pistes, ce qui représentent tout de même 20 % des pertes. Il aurait évidemment été souhaitable de les comparer aux pertes dans les composants, mais malheureusement seules les pertes cuivre nous ont été calculables.

Pour conclure sur les pertes de l'alimentation, on peut affirmer qu'elles sont difficiles à localiser, et qu'elles sont probablement assez bien réparties. Cependant, il est sûr qu'une partie se situe dans les pistes, et comme un des objectifs ultérieurs est de réaliser une alimentation intégrée, et les pertes ohmiques devraient s'en trouver réduites, permettant alors d'augmenter le rendement global de la structure.

Enfin, un dernier résultat mais qui n'est pas des moindres, concerne la densité de puissance. Pour la calculer, nous avons conservé la plus forte valeur de puissance de sortie mesurée qui est de 191 W, puis deux mesures de volumes sont réalisées. La première mesure prend en compte l'encombrement total des composants, où on considère que chaque partie de l'alimentation est encapsulée dans un parallélépipède rectangle. Par exemple, pour les

cartes contenant les cellules de commutation, l'encombrement correspond au produit de la largeur de la carte par la longueur de la carte par la hauteur du plus grand composant. Ceci a pour but de donner un ordre de grandeur pour une alimentation réelle. La deuxième mesure du volume se limite à la somme des volumes des composants (avec leur volume de PCB associé). Ceci a pour but de donner un ordre de grandeur d'une alimentation idéale, où chaque espace serait occupé.

TABLE 9.6 – Densités de puissance.

	Filtrage alimentation circuit de commande	Composants de puissance	Coupleurs magnétiques	Condensateurs de sortie	Densité de puissance (kW/litre)
Volume réel (cm ³)	2,6	4,5	4,8	0,7	15,2
Volume idéal (cm ³)	1,2	1,5	3	0,7	29,8

Il est à noter que ces densités de puissance peuvent être ici améliorées. En effet, les transistors GaN sont spécifiés pour 80 V / 10 A, et nous nous sommes limités dans cette étude à une tension de 24 V et un courant maximal par cellule de 2,85 A. Il est donc envisageable d'augmenter ces grandeurs pour augmenter la densité de puissance.

Ces densités de puissance sont tout de même relativement élevées pour une alimentation faite maison. Elles restent tout de même modeste face à des procédés industriels. A titre de comparaison, l'entreprise Vicor⁷ présente sur son site internet des alimentations DC-DC non isolée. Un modèle intéressant a les caractéristiques suivantes : une tension d'entrée de 24 V (même cas de figure que notre VRM), une tension de sortie régulée à 15 V pour un courant de sortie maximum de 8 A, avec un boîtier ayant les dimensions 10 × 14 × 2,56 mm. On calcule alors la densité de puissance maximum associée, qui est de 335 kW/litre. Cependant, cette valeur est à amoindrir car les aspects thermiques ne sont pas précisés et il semble qu'un dissipateur soit nécessaire. De plus, la note d'application précise que le filtre de sortie n'est pas câblé et qu'il faut l'ajouter en dehors du boîtier. Un autre exemple concernant une densité de puissance est le projet Google nommé Little Box Challenge où il est question de réaliser un onduleur avec les spécification suivantes : 95 % de rendement, une puissance apparente de sortie de 2 kVA, le tout contenu dans un boîtier de 40 in³ (≈0,655 litres). Les lauréats du concours ont obtenu une densité de puissance de 143 W/in³, soit 8,73 kW/litre. Un autre exemple, tiré du monde universitaire cette fois-ci, vient d'un article de 2013 [VMB⁺13] présentant un hacheur abaisseur 5-phases en utilisant des composants GaN. Les auteurs indiquent que la carte d'électronique de puissance fait 110 mm de longueur, 62 mm de largeur, sans pour autant préciser la hauteur. D'après les photographies de l'article, on peut estimer qu'en moyenne la hauteur des composant est de 10 mm. La puissance maximale de sortie est de 1800 W, ce qui revient à obtenir une densité de puissance de 26,4 kW/litre.

Encore une fois, on précise que notre objectif premier dans ce chapitre n'est pas de battre des records, ou de faire mieux que des produits déjà optimisés, mais il est question de démontrer que les coupleurs fabriqués par le procédé de frittage PECS sont fonctionnels,

7. Vicor Corporation, Corporate Headquarters, 25 Frontage Road, Andover, Massachusetts, 01810-5413 USA.

ce qui est le cas.

9.6 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, nous avons mis en œuvre une structure de convertisseur dans laquelle les composants fabriqués par le procédé PECS sont exploitables. Bien que le projet initial de thèse prévoyait réaliser des transformateurs monolithiques, mais les composants se sont finalement avérés efficaces en tant que coupleurs.

La structure réalisée est un VRM entrelacé couplé à trois cellules. Afin d'obtenir des performances intéressantes, des simulations ont montrés qu'une fréquence de découpage de 2 MHz était préférable. Bien heureusement pour notre étude, les récents composants de puissance GaN ont permis d'atteindre une telle fréquence. La commande de ces transistors est effectuée grâce à un DSP. Les caractérisations du prototype montrent des résultats encourageant, tant sur le rendement global qui est supérieur à 90 % que pour l'intégration avec une densité de puissance comprise entre 15 et 30 kW/litre.

Chapitre 10

Conclusions générales et perspectives

10.1 Conclusions

Au regard des différences expériences menées durant cette thèse, plusieurs conclusions peuvent être tirées.

10.1.1 Conclusions de la première partie

La première partie contient les chapitres 2, 3 et 4. Ils permettent de délimiter la thèse, et abordent les prémisses des travaux qui s'en suivent.

Le chapitre 2 intitulé "Introduction et état de l'art", commence en abordant le contexte des travaux de thèses. On rappelle qu'il est question ici de mettre au point un protocole de fabrication de transformateur monolithique pour une application en électronique de puissance, typiquement une alimentation de type alimentation à découpage ayant une fréquence de découpage de l'ordre du mégahertz. Il s'ensuit alors un état de l'art bref car très centré sur les inductances et transformateurs qui sont réalisés par cofrittage. On perçoit alors le potentiel de ces composants, qui est essentiellement volumique, et qui s'insère donc dans les problématiques usuelles des applications embarquées.

Le chapitre 3 "Les grandeurs magnétiques" est une présentation très générale des notions utilisées durant ces travaux de thèses. Il est évoqué en premier lieu les champs vectoriels en rapport avec le magnétisme qui sont l'excitation magnétique, l'induction, l'aimantation et la polarisation, ainsi que les liens entre ces grandeurs. Une attention particulière est portée sur la dangerosité de l'emploi de la notion de perméabilité. En effet, la perméabilité permet de relier le champ et l'induction par la relation $\vec{B} = \mu \vec{H}$. Écrite sous cette forme simple, cela laisse penser qu'il n'y a question que de proportionnalité entre le champ et l'induction. Ceci est corroboré par le fait qu'il est courant de trouver des valeurs de perméabilité dans les documentations techniques sous forme de constante ; par exemple pour un ferrite, on pourrait lire $\mu_r = 100$. Cependant, il ne faut pas perdre de vue qu'en règle générale la perméabilité n'est pas un scalaire mais une matrice reliant les composantes spatiales du champ à celles de l'induction. Il est alors primordial de garder en tête que la valeur de la perméabilité n'est pas constante et qu'elle dépend de plusieurs autres grandeurs physiques : la température, les contraintes mécaniques, ou encore le champ magnétique (phénomène de saturation, d'hystérésis, de polarisation ...). Néanmoins, cette notion de perméabilité est très utile, et reste largement employée. En deuxième lieu, cette notion permet de faire une description des différents types de comportement magnétique des matériaux, et on passe alors en revue le diamagnétisme, le ferromagnétisme, la para-

magnétisme ainsi que le ferrimagnétisme. Ce dernier décrit le magnétisme concernant les ferrites, qui sont les matériaux étudiés dans cette thèse, et cette partie est illustrée par quelques courbes issues de la littérature afin d'expliquer au mieux les nuances entre ferro et ferrimagnétisme.

Le chapitre 4 “La fabrication des ferrites” s’attarde spécifiquement sur ces matériaux, et cela selon l’angle du génie électrique. Ces matériaux sont de bons candidats pour des applications hautes fréquences car leur résistivité est suffisamment élevée pour que les pertes par courant de Foucault restent faibles. Les caractéristiques magnétiques de ces matériaux sont principalement régies par la composition chimique d’une part et le procédé de fabrication d’autre part. La composition chimique permet des nuances de ferrite quasiment infinie. Depuis le début des recherches sur ce sujet, la littérature fourmille d’articles scientifiques présentant des matériaux avec une très grande diversité de formule brute. Chaque article vend les mérites de chaque nouvelle composition, en expliquant alors que la valeur ajoutée se porte sur une meilleure perméabilité statique, ou alors un meilleur comportement fréquentiel, ou alors une modification de la température de Curie, ou encore une diminution des pertes magnétiques. Ces mêmes critères sont également repris dans les articles scientifiques présentant des innovations dans les protocoles de fabrication. Usuellement, des modifications des températures de frittage ou bien des durées de frittages influencent sensiblement la taille des cristallites ainsi que la densité, ce qui se répercute sur les propriétés magnétiques. On présente donc dans ce chapitre le procédé conventionnel de fabrication, ainsi que le moyen utilisé dans cette thèse : le frittage PECS¹. Cette technologie permet de fritter à plus basse température (typiquement 800 °C), et sur une durée très courte (typiquement 10 min). L’avantage qui en découle pour notre étude est de pouvoir cofritter une poudre de ferrite autour d’un conducteur de cuivre. En effet, dans la littérature, les premières tentatives de cofrittage s’effectuaient à une température proche des 1100 °C, alors que le cuivre a une température de fusion de 1080 °C. De même, la courte durée de frittage permet de limiter la diffusion du cuivre dans le ferrite. Cette technique a donc permis l’apparition de nouveaux composants monolithiques, et elle sera donc au cœur de la mise au point d’un protocole de fabrication de transformateur.

10.1.2 Conclusions de la deuxième partie

Cette deuxième partie constitue l’essence même de ces travaux de thèse, notamment d’un point de vue expérimental. Elle regroupe trois chapitres également, dont deux sont consacrés à l’optimisation du matériau magnétique en modifiant sa composition chimique, et un est consacré à la mise au point d’un protocole de fabrication de transformateurs monolithiques.

Le chapitre 5 “La compensation de la constante d’anisotropie magnétocristalline” commence par introduire de manière théorique ce qu’est cette constante. Un large développement mathématique est présenté pour établir l’équation de l’énergie magnétocristalline $U_K = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2)$. Bien que cette équation se retrouve dans la majorité des ouvrages, il est quasiment impossible d’en trouver une démonstration², et c’est cette raison qui nous a poussé à expliquer en détail ce qui se cache derrière les constantes d’anisotropie. Une tentative de compensation de la première constante d’ani-

1. On rappelle une dernière fois que PECS est l’acronyme de Pulsed Electric Current Sintering. Cette technologie de frittage peut aussi se trouver sous la dénomination SPS pour Spark Plasma Sintering ou encore sous le nom de frittage flash.

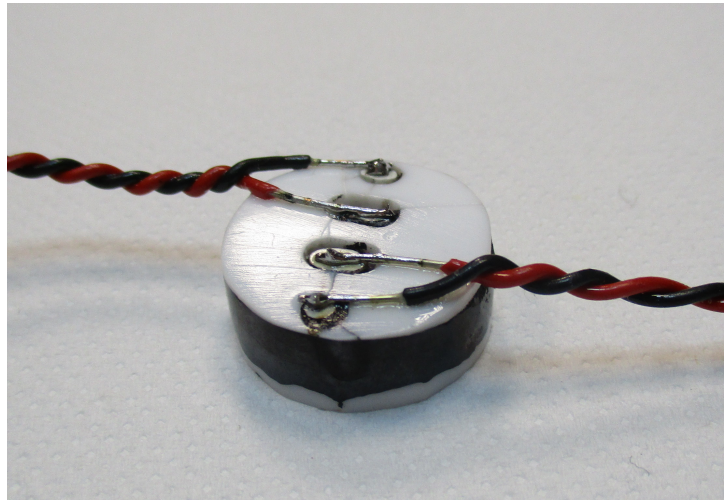
2. Seul le livre de Soshin Chikazumi présente de solides éléments de calcul.

sotropie a été amorcée afin de maximiser la perméabilité, et cela en jouant sur le taux de cobalt des ferrites produits par le frittage PECS. Malheureusement, les moyens employés au laboratoire n’ont pas permis de déterminer les valeurs de K_1 , principalement car nous n’étions pas en possession de balance de torsion, ni de monocristaux. Bien que cette tentative se soit soldée par un échec, nous avons tout de même mis en évidence que pour une structure cubique, le champ correspondant à la singularité $H_{\text{singularité}}$ de la méthode du point singulier n’est pas identique au champ d’anisotropie H^A .

Le chapitre 6 “L’optimisation de la composition chimique du ferrite” reprend dans un premier temps l’idée de jouer sur le taux de cobalt, puis dans un second temps une étude sur le défaut de fer est présentée. La volonté de modifier le taux cobalt fait écho au chapitre précédent, où une substitution au cobalt devrait modifier la perméabilité du ferrite. Malheureusement, aucune tendance sur la perméabilité n’a pu être dégagée des mesures magnétiques des ferrites synthétisés et frittés par le procédé PECS. Plusieurs expériences ont alors été faites sur les matériaux afin de comprendre les effets d’un tel frittage. Première, une analyse par diffraction de rayons X a permis de montrer que la phase des matériaux n’était pas uniquement spinelle, mais qu’il restait une phase secondaire correspondant aux oxydes simples n’ayant pas réagi durant le pallier de réaction. Un second test basé sur l’analyse dispersive en énergie permet de réaliser une cartographie chimique de la surface des matériaux. Elle montre des défauts : certaines zones sont très concentrées en nickel et peu concentrées en fer. Ceci permet de conclure quant à la phase secondaire : l’oxyde de nickel ne réagit pas totalement avec les autres oxydes pour donner la phase spinelle. Par ailleurs, d’autres mesures ont montré que la résistivité des ferrites était bien moindre que la résistivité attendue. Cela provient du procédé PECS, où le frittage s’effectue dans un moule en carbone d’une part, ce qui est réducteur, et sous une atmosphère d’argon d’autre part, ce qui est aussi une source de réduction. Ces réductions chimiques modifient la teneur en oxygène des ferrites, et il peut alors apparaître un couple rédox $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ qui est la source de la conductivité des matériaux. Bien que nous ayons procédé à un défaut de fer, les plus hautes résistivités restent comprises entre 10^3 et $10^4 \Omega\cdot\text{m}$, alors que des mesures de la littérature présentes de valeurs pouvant atteindre $10^8 \Omega\cdot\text{m}$. L’écart est donc de quatre ordres de grandeurs. Cependant, le ferrite 4F1 commercialisé par l’entreprise Ferroxcube a une résistivité DC de $10^4 \Omega\cdot\text{m}$. La comparaison avec le ferrite 4F1 est justifié par le fait qu’il appartient à la famille des ferrite Ni-Zn, et que la documentation technique indique qu’il est optimisé pour des fréquences de l’ordre du mégahertz. Ceci signifie qu’il n’est pas toujours nécessaire d’obtenir les plus hautes résistivités possibles pour avoir des matériaux performants, ce qui sera justifié par la suite, où on observera très peu de pertes magnétiques dans les transformateurs utilisés dans un convertisseur. L’ensemble des résultats de ce chapitre a fait l’objet d’une publication dans une conférence internationale [MCP⁺15].

Le chapitre 7 “La fabrication des transformateurs monolithiques” est sans conteste l’apport majeur de cette thèse. Il relate l’établissement d’un protocole permettant la fabrication des transformateurs monolithiques en utilisant le procédé PECS. Ce chapitre est volontairement très illustré afin de transmettre le maximum de détails concernant cette réalisation. Une première étape a été de pouvoir usiner correctement les spirales de cuivre utilisées en tant qu’enroulement des transformateurs. Après plusieurs essais, il semblerait que la technologie adéquate pour usiner de si petites pièces soit l’électro-érosion, appelée aussi découpe fil. Afin d’éviter les contacts électriques entre les spirales, il est nécessaire de les séparer avec un diélectrique. Le candidat retenu se présente sous une feuille de mica, découpée en rondelle. L’aspect de feuille permet d’avoir une certaine élasticité,

et de se déformer légèrement lorsque les contraintes mécaniques sont appliquées durant l'opération de frittage. Cependant, lors des différents essais, nous nous sommes aperçus que le ferrite n'était pas aussi résistif que nous le pensions. La conséquence immédiate est que des courants électriques peuvent s'établir entre les deux enroulements par le matériau magnétique. Sachant qu'il n'est pas simple dans notre cas de modifier la résistivité de ces matériaux, il a fallu trouver une solution annexe. Nous avons fait le choix d'enduire les conducteurs de peinture à base de céramique, afin qu'il y ait une couche isolante entre le cuivre et le ferrite. Enfin, dans le but limiter la réduction du ferrite lors du frittage, deux disques en alumine viennent se positionner sur les surfaces planes des transformateurs. Ces deux disques permettent par la même occasion d'assurer une meilleure tenue mécanique. L'élaboration de ce protocole a permis une publication dans une revue internationale [MZC⁺16].



10.1.3 Conclusions de la troisième partie

Cette troisième et dernière partie est plus courte que les deux précédentes, et ne contient que deux chapitres.

Le chapitre 8 “Caractéristiques mesurées et simulées des transformateurs” présente les mesures pertinentes afin de caractériser les transformateurs fabriqués. Deux modèles sont utilisés ici, celui du transformateur et celui des bobines couplées. Nous nous sommes bien gardés de les compléter par des éléments parasites qui apparaissent aux hautes fréquences, car à la fréquence visée pour une application, 1 ou 2 MHz, des modèles simples nous ont déjà permis de dégager des résultats intéressants. Rapidement, un problème émerge parmi les différents défauts : l'inductance de fuite est trop grande par rapport à l'inductance mutuelle. En effet, elles prennent respectivement en moyenne les valeurs de $0,2 \mu\text{H}$ et de $1,4 \mu\text{H}$. On calcule alors que l'inductance de fuite représente alors près de 15% de l'inductance mutuelle. Cela se traduit par la difficulté de transmettre de la puissance à la charge, et confirme que les transformateurs sont mal dimensionnés. Fort heureusement, d'autres mesures montrent que les pertes cuivres et les pertes fers sont quant à elles très faibles, et permettent l'utilisation de ces composants non plus comme transformateur, mais comme coupleur.

Le chapitre 9 “Application : la réalisation d'un convertisseur statique DC-DC” rapporte la réalisation d'un convertisseur DC-DC utilisant une fréquence de découpage de 1 ou 2 MHz. Cette réalisation est construite en fonction des caractéristiques des cou-

pleurs, et la structure retenue est un VRM³ entrelacé couplé. Cela a été rendu possible grâce aux récentes commercialisations de transistors de puissance au GaN, qui permettent des fréquences de découpage de l'ordre du mégahertz quasiment sans perte par commutation. Sur le prototype, il a été possible de relever simplement les valeurs moyennes des courants-tensions afin de calculer le rendement global de la structure. Dans les meilleures configurations, il a été possible d'atteindre un rendement de 93,7 % et une puissance de sortie de 191 W avec une charge de 2 Ω . Il faut garder en tête que ces valeurs peuvent être encore améliorées, car tout le potentiel des composants n'a pas été utilisé. En effet, ce sont les transistors qui sont limitant dans cette application, et ils sont spécifiés 80 V, 10 A, alors qu'il n'ont été exploités que pour 24 V et 6 A. Enfin, un dernier résultat très prometteur est celui de la densité de puissance. Le prototype développé atteint la valeur de 15 kW/litre, et une meilleure optimisation de l'agencement des composants laisse supposer qu'il est possible d'atteindre les 30 kW/litre. De plus, les faibles pertes permettent de ne pas prendre en compte les problèmes liés à gestion de la thermique, ce qui est un excellent point pour l'intégration. Cette réalisation de prototype a fait l'objet d'une publication dans une conférence nationale [MAL⁺16].

10.2 Perspectives

Parmi toutes les perspectives possibles, cinq nous paraissent essentielles, qui font suite aux travaux les plus approfondis de cette thèse.

La première perspective concerne l'anisotropie magnétocristalline. Ce sujet reste relativement complexe de part la difficulté de mesurer des constantes d'anisotropie. De nombreuses astuces sont publiées dans la littérature pour éviter l'utilisation de monocristaux ou de la balance de torsion, mais ces réalisations manquent de résultats pertinents. Nous avons aussi tenté de mesurer ces constantes, et cela par deux méthodes : la détection de point singulier en utilisant la dérivée deuxième de la courbe d'aimantation d'une part et la mesure de la tension du deuxième harmonique d'autre part. Malheureusement, les mesures obtenues laissent penser qu'il n'y a pas de correspondances entre les pics détectés et ce que nous avons appelé le champ $H_{singularité}$, sans toutefois le démontrer clairement. Il reste donc un travail d'investigation à faire de ce côté. Pouvoir mesurer la première constante d'anisotropie pour ensuite la compenser dans un ferrite mixte serait un atout majeur dans l'élaboration des ferrites, car plusieurs publications montrent qu'un minimum d'anisotropie correspond à un maximum de perméabilité.

La deuxième perspective se concentre sur la fabrication des ferrites par le procédé PECS. Une des images les plus marquantes est sûrement celle de l'imagerie EDS, où l'oxyde de nickel se présente sous forme d'agglomérat. La question qui persiste est : à quelle étape de la fabrication l'oxyde de nickel s'agglomère ? Est-ce durant le broyage ou bien durant le frittage ? Nous n'avons pas fait de tests spécifiques pour pouvoir se positionner avec exactitude sur la question, mais il est possible d'avoir quelques intuitions. En effet, c'est le broyage qui est certainement l'étape la plus chaotique, ou du moins la plus hasardeuse. Trop de paramètres de réglages interviennent, et il devient difficile de tous les optimiser. Par ailleurs, nous avons suivi le protocole établi durant les travaux de thèse de Karim Zehani. Cependant, il y a eu un changement de matériel : le modèle pulverisette 7 présent sur le site CNRS de Thiais est laissé de côté au profit du modèle pulverisette 6 sur le site de l'ENS Cachan. Le diamètre du plateau tournant étant légèrement différent, ainsi

3. VRM est l'acronyme de Voltage Regulator Module.

que le rapport de transmission disque planétaire/jarre de broyage. La conséquence est que le mouvement de la jarre est différent, de même que le mouvement des billes servant à broyer. Il serait judicieux de faire une étude sur la vitesse de rotation, afin de s'assurer que le broyage se fait de manière homogène sur l'ensemble de la poudre, et de s'assurer qu'il n'y a pas d'agglomérats d'oxyde de nickel dans les poudres en sortie de broyage. Par ailleurs, le procédé PECS étant réducteur pour les ferrites, il serait intéressant d'ajouter une étape en fin de fabrication pour les réoxyder. On rappelle que le recuit est à proscrire, car les différences de coefficient de dilatation thermique amènent à une rupture du noyau magnétique des transformateurs si la température dépasse 500 °C. On peut alors imaginer un semblant de recuit mais à une température bien plus faible, par exemple 200 °C, mais sous oxygène exclusivement. Il restera alors à déterminer si cette réoxydation s'est faite aussi bien au cœur du matériau qu'en surface.

La troisième perspective concerne la fabrication des transformateurs ou coupleurs monolithiques par le cofrittage PECS. Le protocole établi durant le chapitre 7 possède un certain nombre d'étapes manuelles, notamment le collage des spirales de cuivre avec les rondelles de mica, l'application de la peinture, ainsi que le positionnement de cet assemblage dans le moule en graphite nécessaire au frittage. Ces étapes ont une influence notable sur les performances des composants ; par exemple un mauvais centrage ou une mauvaise inclinaison des enroulements va modifier la répartition des lignes de champs, et il risque d'apparaître des zones dans le circuit magnétique où l'aimantation sature. Il devient alors difficile d'envisager une industrialisation tant que ces points ne sont pas améliorés.

La quatrième perspective se centre autour du convertisseur DC-DC présenté dans le chapitre 9. Les mesures faites sur le prototype montrent que les coupleurs sont de bons candidats pour ce type d'application, et il est urgent de fabriquer une alimentation intégrée afin de connaître précisément les performances du produit fini. On pense alors à la densité de puissance qui devrait être satisfaisante avec l'emploi de ces nouveaux coupleurs, tout en gardant en tête l'avantage suivant : la thermique ne nécessite pas une gestion particulière car le niveau de perte reste faible.

Enfin, la cinquième et dernière perspective concerne un sujet qui n'a pas été traité durant ces travaux de thèse, notamment par manque de temps⁴. Il s'agit des pertes magnétiques dans les ferrites fabriqués par le procédé PECS. Bien que les mesures sur le convertisseur indique des faibles pertes dans les coupleurs, il serait intéressant de pouvoir les déterminer. En effet, les pertes magnétiques dans les matériaux dépendent essentiellement de la résistivité et de la taille des cristallites ; or, il est possible de contrôler cette taille par le procédé PECS en jouant sur la température et la durée du frittage. Il serait donc profitable d'envisager une étude entièrement consacrée aux pertes en hautes fréquences pour les comparer à celles des ferrites déjà commercialisés. De plus, la perméabilité des ferrites fabriqués durant cette thèse est quasiment constante jusqu'à 20 MHz. Si les pertes sont maîtrisées jusqu'à cette fréquence, alors il serait déjà possible de concevoir des composants magnétiques pour l'électronique de puissance déjà performants et prêts à l'emploi en attendant la nouvelle génération de transistor.

4. Une année supplémentaire serait la bienvenue!

Bibliographie

- [AB85] G. Asti and F. Bolzoni. Singular point detection of discontinuous magnetization processes. *Journal of Applied Physics Physics*, 58, 1985.
- [ABB⁺11] Philippe Artillan, Magali Brunet, David Bourrier, Jean-Pierre Laur, Nicolas Mauran, Laurent Bary, Monique Dilhan, Bruno Estibals, Corinne Alonso, and J. L. Sanchez. Integrated LC filter on silicon for DC-DC converter applications. *IEEE Transactions on Power Electronics*, 26, 2011.
- [ABC93] G. Asti, F. Bolzoni, and R. Cabassi. Singular point detection in multidomain samples. *Journal of Applied Physics*, 73, 1993.
- [Age99] Jerome Ageron. *Ferrites NiZnCu à basse température de frittage pour composants H-VHF intégrés*. PhD thesis, 1999.
- [All10] Desire Allassem. *Contribution à la réalisation d'une micro-inductance plane*. PhD thesis, 2010.
- [AMC⁺16] Behzad Ahmadi, Frederic Mazaleyrat, Gerard Chaplier, Vincent Loyau, and Martino Lobue. Enhancement of Medium Frequency Hysteresis Loop Measurements Over a Wide Temperature Range. 52, 2016.
- [Amm07] Mehdi Ammar. *Etude du magnétisme de composites métal-oxyde et métal-diélectrique nanostructurés pour composants passifs intégrés*. PhD thesis, 2007.
- [AR72] G. Asti and S. Rinaldi. Nonanalyticity of the Magnetization Curve : Application to the Measurement of Anisotropy in Polycrystalline Samples. *Physical Review Letters*, 28, 1972.
- [AR74] G. Asti and S. Rinaldi. Singular points in the magnetization curve of a polycrystalline ferromagnet. *Journal of Applied Physics*, 45, 1974.
- [ASG05] G. Asti, M. Solzi, and M. Ghidini. Influence of domain walls on the singular point detection of energy losses in hard magnetic materials. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 290-291, 2005.
- [Ast94] G. Asti. Singularities in the Magnetization Processes of High Anisotropy Materials. *IEEE Transactions on Magnetism*, 30, 1994.
- [BAB05a] Didier Bernache-Assollant and Jean-Pierre Bonnet. Frittage : aspects physico-chimiques - Partie 1 : frittage en phase solide. *Techniques de l'Ingénieur*, AF6620, 2005.
- [BAB05b] Didier Bernache-Assollant and Jean-Pierre Bonnet. Frittage : aspects physico-chimiques - Partie 2 : frittage en phase liquide. *Techniques de l'Ingénieur*, AF6621, 2005.
- [BBHK99] Tae Young Byun, Soon Cheon Byeon, Kug Sun Hong, and Chang Kyung Kim. Factors affecting initial permeability of co-substituted Ni-Zn-Cu ferrites. *IEEE Transactions on Magnetism*, 35, 1999.

- [Bea11] Quentin Beaudouin. Etude de composants électromagnétiques réalisés par Spark Plasma Sintering. Technical report, 2011.
- [Bec51] R. Becker. La dynamique de la paroi de Bloch et la perméabilité en haute fréquence. *Le Journal de Physique et le Radium*, 12, 1951.
- [Ber98] Giorgio Bertotti. Hysteresis in Magnetism : For Physicists, Materials Scientists, and Engineers, 1998.
- [BHL⁺09] Seok Bae, Yang Ki Hong, Jae Jin Lee, Jeevan Jalli, Gavin S. Abo, Andrew Lyle, Byoung C. Choi, and Gregory W. Donohoe. High Q Ni-Zn-Cu Ferrite inductor for on-chip power module. *IEEE Transactions on Magnetics*, 45, 2009.
- [BLL14] Edouard Brun, Richard Lebourgeois, and Eric Laboure. Low Permeability Ferrite with Low Losses at High Frequency. *Journal of Japanese Society Powder Metallurgy*, 61, 2014.
- [BOB⁺02] Magali Brunet, Terence O'donnell, Laurent Baud, Ningning Wang, Joe O'brien, Paul McCloskey, and Sean C. O'mathuna. Electrical performance of microtransformers for DC-DC converter applications. *IEEE Transactions on Magnetics*, 38, 2002.
- [Bri27] Leon Brillouin. Les moments de rotation et le magnétisme dans la mécanique ondulatoire. *Le Journal de Physique et le Radium*, 1927.
- [Bri74] Pierre Brissonneau. Les domaines magnétiques. *Revue de Physique Appliquée*, 9, 1974.
- [Bri97] Pierre Brissonneau. *Magnétisme et matériaux magnétiques pour l'électronique*. 1997.
- [Bru14] Edouard Brun. *Etude et mise au point de composants magnétiques multicouches pour intégration en électronique de puissance*. PhD thesis, 2014.
- [BTW55] Richard M. Bozorth, Elizabeth F. Tilden, and Albert J. Williams. Anisotropy and magnetostriction of some ferrites. *Physical Review*, 99, 1955.
- [Chi97] Soshin Chikazumi. *Physics of Ferromagnetism*. 1997.
- [Coe10] John Michael David Coey. *Magnetism and Magnetic Materials*. 2010.
- [Cos07] Valentin Costan. *Convertisseurs parallèles entrelacés : Etude des pertes fer dans les transformateurs inter-cellules*. PhD thesis, 2007.
- [Cou10] Bernardo Cougo Franca. *Design and Optimization of InterCell Transformers for Parallel MultiCell Converters*. PhD thesis, 2010.
- [CPS01] Du Xing Chen, Enric Pardo, and Alvaro Sanchez. Radial Magnetometric Demagnetizing Factor of Thin Disks. *IEEE Transactions on Magnetics*, 37, 2001.
- [CPS06] Du Xing Chen, Enric Pardo, and Alvaro Sanchez. Fluxmetric and magnetometric demagnetizing factors for cylinders. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 306, 2006.
- [Cra95] Derek Craik. *Magnetism - Principles and Applications*. 1995.
- [Dag13] Yaya Dagal Dari. *Conception, réalisation et caractérisation d'inductances planaires à couches magnétiques*. PhD thesis, 2013.
- [dL99] Etienne de Lacheisserie. *Magnétisme*. Edp Sciences, 1999.

- [Dug07] Sonia Duguey. *Etude du cofrittage de matériaux diélectriques et magnétiques pour composants passifs intégrés*. PhD thesis, 2007.
- [FAC⁺91] Henri Foch, Raphael Arches, Yvon Cheron, Bernard Escaut, Pierre Marty, and Michel Metz. Alimentations à découpage - Le transformateur. *Techniques de l'Ingénieur*, D3164, 1991.
- [FBB⁺06] Fausto Fiorillo, Cinzia Beatrice, Oriano Bottauscio, Alessandra Manzin, and Mario Chiampi. Approach to magnetic losses and their frequency dependence in Mn-Zn ferrites. *Applied Physics Letters*, 89, 2006.
- [FLMS09] Francois Forest, Eric Laboure, Thierry Meynard, and Vanessa Smet. Design and Comparison of Inductors and Intercell Transformers for Filtering of PWM Inverter Output. *IEEE Transactions on Power Electronics*, 24, 2009.
- [FM31] Robert Forrer and J. Martak. Le champ démagnétisant structural des ferromagnétiques et sa détermination expérimentale. *Le Journal de Physique et le Radium*, 2, 1931.
- [Fon59] Simon Foner. Versatile and Sensitive Vibrating-Sample Magnetometer. *Review of Scientific Instruments*, 30, 1959.
- [GABH92] A. Garcia-Arribas, J. M. Barandiaran, and G. Herzer. Anisotropy field distribution in amorphous ferromagnetic alloys from second harmonic response. *Journal of Applied Physics*, 71, 1992.
- [GD66] Anatol Globus and Paul Duplex. Separation of susceptibility mechanisms for ferrites of low anisotropy. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2, 1966.
- [GD68] Anatol Globus and Paul Duplex. Initial Susceptibility and Topography of Domain Walls in Polycrystalline Materials. page 1968, 1968.
- [GDG71] Anatol Globus, Paul Duplex, and Marcel Guyot. Determination of initial magnetization curve from crystallites size and effective anisotropy field. *IEEE Transactions on Magnetics*, 1971.
- [GGJD⁺14] Olivier Guillon, Jesus Gonzalez-Julian, Benjamin Dargatz, Tobias Kessel, Gabi Schierning, Jan Räthel, and Mathias Herrmann. Field-assisted sintering technology/spark plasma sintering : Mechanisms, materials, and technology developments. *Advanced Engineering Materials*, 16, 2014.
- [Glo77] Anatol Globus. Magnetization Mechanisms : some Physical Considerations About the Domain Wall Size Theory of Magnetization Mechanisms. *Le Journal de Physique Colloques*, 38(C1) :C1-1-C1-15, 1977.
- [GNL61] Aaron P. Grefler, Yoshinao Nakada, and Howard Lessofe. Preparation and Properties of Low-Loss Ferrites. *Journal of Applied Physics*, 32, 1961.
- [GS53] E. W. Gorter and J. A. Schulkers. Reversal of spontaneous magnetization as a function of temperature in LiFeCr spinels. *Physical Review*, 90, 1953.
- [GZ00] Joanna R. Groza and Antonios Zavaliangos. Sintering activation by external electrical field. *Materials Science and Engineering*, 287, 2000.
- [Ham15] Oussama Hamrit. *Etude des pertes magnétiques dans les matériaux magnétiques destinés aux applications de transport en haute fréquence et sous champ bidirectionnel*. PhD thesis, 2015.
- [Hei28] Werner Heisenberg. Zur Theorie des Ferromagnetismus. *Zeitschrift für Physik*, 49, 1928.

- [HKC95] Jen-yan Hsu, Wen-song Ko, and Chi-jen Chen. The Effect of V₂O₅ on the Sintering of NiCuZn Ferrite. *IEEE Transactions on Magnetism*, 31, 1995.
- [HLSC97] Jen-Yan Hsu, Hon-Chin Lin, Hon-Dar Shen, and Chi-Jen Chen. High frequency multilayer chip inductors. *IEEE Transactions on Magnetism*, 33, 1997.
- [HRK⁺05] Marcel Hagymási, Andreas Roosen, Roman Karmazin, Oliver Dernovsek, and Werner Haas. Constrained sintering of dielectric and ferrite LTCC tape composites. *Journal of the European Ceramic Society*, 25, 2005.
- [HTYY00] Ken Hirota, Yoshihiko Takano, Masaru Yoshinaka, and Osamu Yamaguchi. A new composite material with high saturation magnetization density and high electrical resistivity. *Materials Research Bulletin*, 35, 2000.
- [JDG79] G. C. Jain, Bijoy K. Das, and N. C. Goel. Effect of MoO₃ Addition on the Grain Growth Kinetics of a Manganese Zinc Ferrite. *Journal of the American Ceramic Society*, 62, 1979.
- [Kai10] M. Kaiser. Influence of V₂O₅ ion addition on the conductivity and grain growth of Ni-Zn-Cu ferrites. *Current Applied Physics*, 10, 2010.
- [Kra34] Hans Kramers. L'interaction Entre les Atomes Magnétogènes dans un Cristal Paramagnétique. 1934.
- [KSKK09] R. C. Kambale, P. A. Shaikh, S. S. Kamble, and Y. D. Kolekar. Effect of cobalt substitution on structural, magnetic and electric properties of nickel ferrite. *Journal of Alloys and Compounds*, 478, 2009.
- [Kul73] J. Kulikowski. Sintering of Ni-Zn ferrites in the presence of V₂O₅. *Soviet Powder Metallurgy and Metal Ceramics*, 12, 1973.
- [LDGH07] Richard Lebourgeois, Sonia Duguey, Jean-Pierre Ganne, and Jean-Marc Heintz. Influence of V₂O₅ on the magnetic properties of nickel-zinc-copper ferrites. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 312, 2007.
- [LDY⁺08] Binghai Liu, Jun Ding, Jiabao Yi, Jianhua Yin, and Zhili Dong. Magnetic anisotropies in cobalt-nickel ferrites (Ni_xCo_{1-x}Fe₂O₄). *Journal of the Korean Physical Society*, 52, 2008.
- [Leb00] Richard Lebourgeois. Ferrites faibles pertes pour applications fréquentielles. *Techniques de l'Ingénieur*, E1760, 2000.
- [Leb05] Richard Lebourgeois. Ferrites doux pour l'électronique de puissance. *Techniques de l'Ingénieur*, D2160, 2005.
- [LLM10] Vincent Loyau, Martino Lobue, and Frederic Mazaleyrat. Comparison of losses measurement in a ferrite with two calorimetric methods. *IEEE Transactions on Magnetism*, 46, 2010.
- [LLM11] Martino LoBue, Vincent Loyau, and Frederic Mazaleyrat. Analysis of volume distribution of power loss in ferrite cores. *Journal of Applied Physics*, 109, 2011.
- [LLML10] Anthony Lucas, Richard Lebourgeois, Frederic Mazaleyrat, and Eric Laboure. Temperature dependence of core loss in cobalt substituted NiZnCu ferrites. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 323, 2010.
- [LR94] Francois Leprince-Ringuet. Matériaux ferromagnétiques usuels. *Techniques de l'Ingénieur*, 1994.

- [Luc10] Anthony Lucas. *Etude et mise au point de transformateurs large bande radiofréquence*. PhD thesis, 2010.
- [LWLM12] Vincent Loyau, G. Y. Wang, Martino Lobue, and Frederic Mazaleyrat. An analysis of Mn-Zn ferrite microstructure by impedance spectroscopy, scanning transmission electron microscopy and energy dispersion spectrometry characterizations. *Journal of Applied Physics*, 111, 2012.
- [Mag86] L. F. Magana. Calculation of the shape of the magnetic domain wall. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 60, 1986.
- [MAL⁺16] Adrien Mercier, Fabien Adam, Denis Labrousse, Bertand Revol, Alexandre Pasko, and Frederic Mazaleyrat. Convertisseur DC-DC à transistors GaN entrelacé couplé par TICs monolithiques frittés par SPS. *Symposium de Génie Electrique*, 2, 2016.
- [MATO06] Zuhair A. Munir, U. Anselmi-Tamburini, and Manshi Ohyanagi. The effect of electric field and pressure on the synthesis and consolidation of materials : A review of the spark plasma sintering method. *Journal of Materials Science*, 41, 2006.
- [MC88] I. J. McColm and N. J. Clark. *Forming, Shaping and Working of High Performance Ceramics*. 1988.
- [McK37] L. W. McKeehan. Ferromagnetic Anisotropy in Nickel-Cobalt-Iron Crystals at Various Temperatures. *Physical Review*, 51, 1937.
- [MCP⁺15] Adrien Mercier, Gerard Chaplier, Alexandre Pasko, Vincent Loyau, and Frederic Mazaleyrat. Cobalt Doping Effect on Ni-Zn-Cu Ferrites Produced by Reactive Sintering. *Physics Procedia*, 75 :1306–1313, 2015.
- [MITN01] Y. Matsuo, M. Inagaki, T. Tomozawa, and F. Nakao. High performance NiZn ferrite. *IEEE Transactions on Magnetics*, 37, 2001.
- [MLA⁺07] N. Millot, Sophie Le Gallet, D. Aymes, Frederic Bernard, and Yuri Grin. Spark plasma sintering of cobalt ferrite nanopowders prepared by coprecipitation and hydrothermal synthesis. *Journal of the European Ceramic Society*, 27, 2007.
- [MLCT15] Jean Luc Mattei, Emmanuel Le Guen, Alexis Chevalier, and Anne Claude Tarrow. Experimental determination of magnetocrystalline anisotropy constants and saturation magnetostriction constants of NiZn and NiZnCo ferrites intended to be used for antennas miniaturization. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 374, 2015.
- [MNSN92] H. Momoi, A. Nakano, T. Susuki, and T. Nomura. Nano-structure control of NiCuZn ferrites for multilayer chip components. In *Proceedings of International Conference on Ferrites 6*, 1992.
- [MQO11] Zuhair A. Munir, Dat V. Quach, and Manshi Ohyanagi. Electric current activation of sintering : A review of the pulsed electric current sintering process. *Journal of the American Ceramic Society*, 94, 2011.
- [MZC⁺16] Adrien Mercier, Karim Zehani, Gerard Chaplier, Alexandre Pasko, Vincent Loyau, and Frederic Mazaleyrat. Spark Plasma Sintering Co-Sintered Monolithic Transformers for Power Electronics. *IEEE Transactions on Magnetics*, 52(5) :3–6, 2016.

- [Nak97] T. Nakamura. Low-temperature sintering of Ni-Zn-Cu ferrite and its permeability spectra. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 168, 1997.
- [Née48] Louis Néel. Propriétés magnétiques des ferrites : Ferrimagnétisme et Antiferromagnétisme. *Annales de Physique*, 3, 1948.
- [Ngu14] Thi Yen Mai Nguyen. *Ferrite-based micro-inductors for Power Systems on Chip : from material elaboration to inductor optimisation*. PhD thesis, 2014.
- [NHSO83] Y. Nagata, T. Hoshi, H. Saji, and Keizo Ohta. The second order magnetocrystalline anisotropy constants of the MnZnFe ternary ferrite system. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 31-34, 1983.
- [NMN92] A. Nakano, H. Momoi, and T. Nomura. Effect of Ag on the microstructure of the low temperature sintered NiCuZn ferrites. In *Proceedings of International Conference on Ferrites 6*, 1992.
- [NN92] T. Nomura and A. Nakano. New evolution of ferrite for multilayer chip components. In *Proceedings of International Conference on Ferrites 6*, 1992.
- [Nom92] T. Nomura. Micro- and nano-structure-property relationships in soft ferrites. In *Proceedings of International Conference on Ferrites 6*, 1992.
- [NOSH99] Tatsuya Nakamura, Yoji Okano, Norio Sugita, and K. Hatakeyama. Ferrite powders for chip inductor device. In *Electromagnetic Compatibility*, Tokyo, 1999.
- [Oht63] Keizo Ohta. Magnetocrystalline Anisotropy and Magnetic Permeability of Mn-Zn-Fe Ferrites. *Journal of the Physical Society of Japan*, 18, 1963.
- [OLL⁺09] Roberto Orru, Roberta Licheri, Antonio Mario Locci, Alberto Cincotti, and Giacomo Cao. Consolidation/synthesis of materials by electric current activated/assisted sintering. *Materials Science and Engineering R : Reports*, 63, 2009.
- [OMK92] A. Ono, T. Maruno, and N. Kaihara. The technology of electrode for multilayer chip inductor. In *Proceedings of International Conference on Ferrites 6*, 1992.
- [ON83] Hugh St. C. O'Neill and Alexandra Navrotsky. Simple spinels : crystallographic parameters, cation radii, lattice energies, and cation distribution. *American Mineralogist*, 68, 1983.
- [Orl07] Bastien Orlando. *Conception, Réalisation et Analyse de Micro-Inductances Intégrées avec Matériaux Ferromagnétiques Doux. Applications aux Inductances pour la Conversion de Puissance Continue-Continue et aux Inductances Variables MEMS pour Circuits Micro-Ondes Reconfigurab*. PhD thesis, 2007.
- [Osb45] J. A. Osborn. Demagnetizing Factors of the General Ellipsoid. *Physical Review*, 67, 1945.
- [OYH⁺99] S. Otobe, Y. Yachi, T. Hashimoto, T. Tanimori, T. Shigenaga, H. Takei, and K. Hontani. Development of Low Loss Mn-Zn Ferrites Having the Fine Microstructure. *IEEE Transactions on Magnetics*, 35, 1999.
- [OYO⁺91] E. Otsuki, S. Yamada, T. Otsuka, K. Shoji, and T. Sato. Microstructure and physical properties of Mn-Zn ferrites for high-frequency power supplies. *Journal of Applied Physics*, 69, 1991.

- [PK97] In Gyu Park and Seon Ik Kim. Modeling and Analysis of Multi-Interphase Transformers for Connecting Power Converters in Parallel. In *PESC Record - IEEE Annual Power Electronics Specialists Conference*, volume 2, 1997.
- [PKK07] B. Parvatheeswara Rao, Chong-Oh Kim, and CheolGi Kim. Influence of V₂O₅ additions on the permeability and power loss characteristics of Ni-Zn ferrites. *Materials Letters*, 61, 2007.
- [Pon07] Yu. F. Ponomarev. On the Rayleigh Law of Magnetization : A New Mathematical Model of Hysteresis Loops. *The Physics of Metals and Metallography*, 104, 2007.
- [Ros07a] Waseem A. Roshen. High-frequency tunneling magnetic loss in soft ferrites. *IEEE Transactions on Magnetics*, 43, 2007.
- [Ros07b] Waseem A. Roshen. Magnetic loss in soft ferrites. *Journal of Applied Physics*, 101, 2007.
- [Ros07c] Waseem A. Roshen. Non-linear tunneling charge transport in soft ferrites. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 312, 2007.
- [SB80] D. Stoppels and P. G. T. Boonen. The influence of the second-order magnetocrystalline anisotropy on the initial magnetic permeability of MnZn ferrous ferrite. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 19, 1980.
- [SC57] Hiroshi Sato and B. S. Chandrasekhar. Determination of the Magnetic Anisotropy K₂ of Cubic Ferromagnetic Substances. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 1, 1957.
- [Sch99] Ambroise Schellmanns. *Circuits équivalents pour transformateurs multi-enroulements : Application à la CEM conduite d'un convertisseur*. PhD thesis, 1999.
- [SLSQ02] Jingjing Sun, Jianbao Li, Geliang Sun, and Weiguo Qu. Synthesis of dense NiZn ferrites by spark plasma sintering. *Ceramics International*, 28, 2002.
- [Sno48] J. L. Snoek. Dispersion and absorption in magnetic ferrites at frequencies above one Mc/s. *Physica*, 14(4) :207–217, 1948.
- [Sno49] J. L. Snoek. *New Developments in Ferromagnetic Materials*. 1949.
- [SPR⁺07] K. Stephan, P. Pittet, L. Renaud, P. Kleimann, P. Morin, N. Ouaini, and R. Ferrigno. Fast prototyping using a dry film photoresist : microfabrication of soft-lithography masters for microfluidic structures. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 17, 2007.
- [SS95] Charles R. Sullivan and Seth R. Sanders. Microfabrication process for high-frequency power-conversion transformers. *Proc. IEEE Power Electronics Specialists Conf.*, 1995.
- [SSN79] C. M. Srivastava, G. Srinivasan, and N. G. Nanadikar. Exchange constants in spinel ferrites. *Physical Review*, 19, 1979.
- [STZ⁺13] Hua Su, Xiaoli Tang, Huaiwu Zhang, Yulan Jing, Feiming Bai, and Zhiyong Zhong. Low-loss NiCuZn ferrite with matching permeability and permittivity by two-step sintering process. *Journal of Applied Physics*, 113, 2013.
- [SW48] Edmund Clifton Stoner and Erich Peter Wohlfarth. A Mechanism of Magnetic Hysteresis in Heterogeneous Alloys. *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 240, 1948.

- [SW59] Jan Smit and Henricus Petrus Johannes Wijn. *Ferrites*. 1959.
- [SZTJ08] Hua Su, Huaiwu Zhang, Xiaoli Tang, and Yulan Jing. Influence of microstructure on permeability dispersion and power loss of NiZn ferrite. *Journal of Applied Physics*, 103, 2008.
- [SZTX04] Hua Su, Huaiwu Zhang, Xiaoli Tang, and Xinyuan Xiang. High-permeability and high-Curie temperature NiCuZn ferrite. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 283, 2004.
- [Tan12] Wenhua Tan. *Modeling and Design of Passive Planar Components for EMI Filters*. PhD thesis, 2012.
- [TOI65] Eiji Tatsumoto, Tetsuhiko Okamoto, and Nobuo Iwata. Temperature Dependence of the Magnetocrystalline Anisotropy Constants K_1 and K_2 of Nickel. *J. Phys. Soc. Japan*, 20, 1965.
- [Val94] Raul Valenzuela. *Magnetic ceramics*. 1994.
- [Van51] John Hasbrouck Van Vleck. Recent developments in the theory of antiferromagnetism. *Le Journal de Physique et le Radium*, 12, 1951.
- [Van55] L. G. Van Uitert. DC Resistivity in the Nickel and Nickel Zinc Ferrite System. *The Journal of Chemical Physics*, 23, 1955.
- [Van56] L. G. Van Uitert. High-Resistivity Nickel Ferrites - the Effect of Minor Additions of Manganese or Cobalt. *The Journal of Chemical Physics*, 24, 1956.
- [VGA16] Raul Valenzuela, Thomas Gaudisson, and Souad Ammar. Severe reduction of Ni-Zn ferrites during consolidation by Spark Plasma Sintering (SPS). *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 400, 2016.
- [VMB⁺13] Nicolas Videau, Thierry Meynard, V. Bley, D. Flumian, E. Sarraute, G. Fontes, and J. Brandelero. 5-Phase Interleaved Buck Converter With Gallium Nitride Transistors. *1st IEEE Workshop on Wide Bandgap Power Devices and Applications, WiPDA 2013 - Proceedings*, 2013.
- [WSK50] H. J. Williams, W. Shockley, and C. Kittel. Studies of the Propagation Velocity of a Ferromagnetic Domain Boundary. *Physical Review*, 80, 1950.
- [YHT⁺01] Setsuo Yamamoto, Shinji Horie, Nobutsugu Tanamachi, Hiroki Kurisu, and Mitsuru Matsuura. Fabrication of high-permeability ferrite by spark-plasma-sintering method. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 235, 2001.
- [YK52] Y. Yafet and C. Kittel. Antiferromagnetic Arrangements in Ferrites. *Physical Review*, 87, 1952.
- [ZAL⁺14] Karim Zehani, Behzad Ahmadi, Vincent Loyau, Yannick Champion, Lotfi Bessais, Martino Lobue, Eric Laboure, and Frederic Mazaleyrat. Structural, Dielectric, and Magnetic Properties of NiZnCu Ferrites Synthesized by Reactive Spark Plasma Sintering Process. *IEEE Transactions on Magnetics*, 50, 2014.
- [Zeh11] Karim Zehani. *Etude du ferrite NiZnCu nanostructuré produit par SPS : des propriétés physiques à la réalisation de composants monolithiques intégrés*. PhD thesis, 2011.
- [ZMLL11] Karim Zehani, Frederic Mazaleyrat, Vincent Loyau, and Eric Laboure. Effect of temperature and time on properties of spark plasma sintered NiCuZn : Co ferrite. *Journal of Applied Physics*, 109, 2011.

Titre : Contributions à l'étude et la réalisation de composants magnétiques monolithiques réalisés par PECS/SPS et à leurs applications en électronique de puissance

Mots clés : Transformateur, Coupleur, Ferrite, Frittage PECS/SPS, VRM

Résumé : Dans le cadre de l'intégration de puissance, il est nécessaire de réduire la taille des composants magnétiques. Deux stratégies peuvent alors être adoptées : la première consiste à augmenter la fréquence de travail et donc à développer des matériaux fonctionnant à plus haute fréquence, la seconde consiste à modifier la conception des composants en changeant la répartition des enroulements par rapport au circuit magnétique. Sur la base de ces deux stratégies, des ferrites sont optimisés via leur composition chimique et fabriqués grâce au procédé de frittage PECS/SPS (Pulsed Electric Current Sintering / Spark Plasma Sintering). Ce procédé permet de diminuer suffisamment la température de frittage pour pouvoir placer du cuivre massif dans le ferrite pendant le frittage. Ceci a permis la réalisation de transformateurs et de coupleurs monolithiques qui sont des composants idéaux pour l'intégration de puissance car le volume qu'ils occupent est entièrement utilisé. Enfin, un prototype d'alimentation VRM 2 MHz utilisant ces composants est réalisé, permettant d'atteindre une densité de puissance de 15 kW/l pour une puissance de sortie de 200 W.

Title : Contributions to the study and realization of monolithic magnetic components made by PECS / SPS and their applications in power electronics

Keywords : Transformer, Coupler, Ferrite, PECS/SPS Sintering, VRM

Abstract : In the context of power integration, it is necessary to reduce the size of the magnetic components. Two strategies can be adopted : the first is to increase the switching frequency and thus to develop materials operating at higher frequency ; the second consists in modifying the design of the components by changing the winding distribution with respect to the magnetic circuit. With these two strategies, ferrites are optimized by their chemical composition and manufactured using the PECS/SPS (Pulsed Electric Current Sintering / Spark Plasma Sintering) sintering process. This method allows to reduce the sintering temperature sufficiently to be able to place solid copper in the ferrite during sintering. This also allowed the realization of monolithic transformers and couplers which are ideal components for power integration because the volume they occupy is fully used. Finally, a 2 MHz VRM power supply prototype using these components is produced, achieving a power density of 15 kW/l with an output power of 200 W.

