



Contribution à l'étude du vieillissement thermique des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB et polycristallins FeCoV

Atef Lekdim

► To cite this version:

Atef Lekdim. Contribution à l'étude du vieillissement thermique des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB et polycristallins FeCoV. Energie électrique. Université de Lyon, 2017. Français. NNT : 2017LYSE1058 . tel-03680702

HAL Id: tel-03680702

<https://theses.hal.science/tel-03680702>

Submitted on 29 May 2022

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

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



N°d'ordre NNT :2016LYSE1058

THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON

opérée au sein de
l'Université Claude Bernard Lyon 1

Ecole Doctorale N° accréditation : ED160
**ECOLE DOCTORALE ELECTRONIQUE, ELECTROTECHNIQUE,
AUTOMATIQUE DE LYON**

Spécialité de doctorat :
Génie Electrique

Soutenue le 23/03/2017, par :
Atef LEKDIM

Contribution à l'étude du vieillissement thermique des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB et polycristallins FeCoV

Devant le jury composé de :

M. IDIR Nadir, Professeur des universités, Université Lille1

Président du jury

Mme. KEDOUS-LEBOUC Afef, Directrice de recherche CNRS, G2Elab

Rapporteur

M. DANIEL Laurent, Professeur des universités, CentraleSupélec

Rapporteur

M. WAECKERLE Thierry, Ingénieur de recherche, Aperam Alloys Imphy

Examineur

Mme. RAULET Marie-Ange, Maître de conférences, UCBL

Directrice de thèse

M. MOREL Laurent, Maître de conférences, UCBL

Co-directeur de thèse

M. FABREGUE Damien, Professeur des universités, INSA Lyon

Invité

M. BEL François, Ingénieur, THALES

Invité

UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON 1

Président de l'Université

Président du Conseil Académique

Vice-président du Conseil d'Administration

Vice-président du Conseil Formation et Vie Universitaire

Vice-président de la Commission Recherche

Directrice Générale des Services

M. le Professeur Frédéric FLEURY

M. le Professeur Hamda BEN HADID

M. le Professeur Didier REVEL

M. le Professeur Philippe CHEVALIER

M. Fabrice VALLÉE

Mme Dominique MARCHAND

COMPOSANTES SANTE

Faculté de Médecine Lyon Est – Claude Bernard

Directeur : M. le Professeur G.RODE

Faculté de Médecine et de Maïeutique Lyon Sud – Charles Mérieux

Directeur : Mme la Professeure C. BURILLON

Faculté d'Odontologie

Directeur : M. le Professeur D. BOURGEOIS

Institut des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques

Directeur : Mme la Professeure C. VINCIGUERRA

Institut des Sciences et Techniques de la Réadaptation

Directeur : M. X. PERROT

Département de formation et Centre de Recherche en Biologie Humaine

Directeur : Mme la Professeure A-M. SCHOTT

COMPOSANTES ET DEPARTEMENTS DE SCIENCES ET TECHNOLOGIE

Faculté des Sciences et Technologies

Directeur : M. F. DE MARCHI

Département Biologie

Directeur : M. le Professeur F. THEVENARD

Département Chimie Biochimie

Directeur : Mme C. FELIX

Département GEP

Directeur : M. Hassan HAMMOURI

Département Informatique

Directeur : M. le Professeur S. AKKOUCHE

Département Mathématiques

Directeur : M. le Professeur G. TOMANOV

Département Mécanique

Directeur : M. le Professeur H. BEN HADID

Département Physique

Directeur : M. le Professeur J-C PLENET

UFR Sciences et Techniques des Activités Physiques et Sportives

Directeur : M. Y.VANPOULLE

Observatoire des Sciences de l'Univers de Lyon

Directeur : M. B. GUIDERDONI

Polytech Lyon

Directeur : M. le Professeur E.PERRIN

Ecole Supérieure de Chimie Physique Electronique

Directeur : M. G. PIGNAULT

Institut Universitaire de Technologie de Lyon 1

Directeur : M. le Professeur C. VITON

Ecole Supérieure du Professorat et de l'Education

Directeur : M. le Professeur A. MOUGNIOTTE

Institut de Science Financière et d'Assurances

Directeur : M. N. LEBOISNE

Titre

Contribution à l'étude du vieillissement thermique des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB et polycristallins FeCoV.

Résumé

La thèse s'inscrit dans le cadre du projet GENOME « Gestion Optimisée de l'Energie » dont l'enjeu majeur est la conception d'un avion plus électrique. L'augmentation de l'efficacité énergétique et de la compacité des systèmes électriques de ces avions entraînent de fortes sollicitations en température. Ces sollicitations sont liées à la compacité des systèmes (réduction de masse et de volume) ainsi qu'à leur localisation par rapport aux sources chaudes (réacteur d'avion par exemple). De ce fait, les matériaux magnétiques des nouveaux convertisseurs électriques doivent pouvoir fonctionner sous des conditions de hautes températures, supérieures à 200°C. Il s'agit du polycristallin FeCoV dédié à la fabrication des tôles du stator et du rotor des génératrices rapides (situées à proximité des réacteurs) et le nanocristallin FeCuNbSiB dédié à la conception des inductances et transformateurs des convertisseurs statiques.

Ce manuscrit s'intéresse à l'étude du vieillissement thermique de ces deux familles de matériaux magnétiques. Ces matériaux, fournis par la société APERAM, se déclinent sous plusieurs nuances et finitions. L'étude du vieillissement consiste en l'application de plusieurs essais de vieillissement continus sous différentes températures (jusqu'à 300 °C pour les FeCoV et 240 °C pour les nanocristallins). Plusieurs grandeurs macroscopiques magnétiques, électriques et mécaniques (pour les FeCoV) sont mesurées à chaque intervalle de vieillissement. Grâce à ces mesures macroscopiques et à des mesures complémentaires effectuées à l'échelle microscopique, des analyses sont faites et des hypothèses sont proposées afin d'expliquer les mécanismes de vieillissement de ces deux familles de matériaux et dans le but de proposer des modèles phénoménologiques fiables.

Mots-clés

Ferromagnétisme ; Alliages nanocristallins FeCuNbSiB ; Alliages polycristallins FeCoV ; Recuits alliages magnétiques ; Vieillissement thermique ; Caractérisations macroscopiques et microscopiques ; Energies d'anisotropie ; Recristallisation partielle ; Mise en ordre.

Title

Thermal ageing study contribution of the FeCuNbSiB nanocrystalline alloys and the FeCoV polycrystalline alloys.

Abstract

The thesis takes part of the project GENOME “Gestion Optimisée de l’Energie” whose major issue is the design of the more electrical aircraft. The increase in the energy efficiency and the compactness of the electrical systems of these aircrafts lead to high temperature stresses. These thermal stresses are related to the compactness of the systems (reduction of mass and volume) as well as their location with respect to the hot sources (aircraft engine for example). Thus, the magnetic materials of the new electrical converters must be able to operate under conditions of high temperatures, above 200 °C. Typically, the FeCoV polycrystalline materials are dedicated to the fabrication of the stator and rotor sheets of the fast generators (located near the aircraft engine) and the FeCuNbSiB nanocrystalline materials are dedicated to the design of inductors and transformers of the static converters.

This manuscript concerns the thermal ageing study of these two magnetic material families. These materials, supplied by the company APERAM, are available in several shades. The ageing study consists on applying several continuous ageing treatments at different temperatures (up to 300 °C for FeCoV and 240 °C for FeCuNbSiB). At each ageing step, several macroscopic properties namely: magnetic, electrical and mechanical (for the FeCoV materials) properties are measured. Using these macroscopic properties and complementary measurements carried out on a microscopic scale, analyses are made and hypotheses are proposed in order to explain the ageing mechanisms of these magnetic material families. The understanding of the magnetic ageing mechanisms is necessary towards establishing of phenomenological ageing models.

Keywords

Ferromagnetism; FeCuNbSiB nanocrystalline alloys; FeCoV polycrystalline alloys; Magnetic alloys annealing; Thermal ageing; Macroscopic and microscopic characterizations; Anisotropy energies; Partial recrystallization; Ordering.

Sommaire

Introduction générale.....	6
I. Chapitre I : Etat de l'art sur les matériaux magnétiques et leur vieillissement.....	8
I.1 Introduction	8
I.2 Définition des propriétés physiques et magnétiques	8
I.2.1 Domaines magnétiques et processus d'aimantation.....	8
I.2.2 Les énergies magnétiques.....	10
I.2.3 Grandeurs magnétiques macroscopiques de base	16
I.3 Alliage Fer-Cobalt	19
I.3.1 Propriétés physiques et magnétiques de base.....	19
I.3.2 Addition du Vanadium au Permendur (FeCo à égales proportions)	23
I.3.3 Relations empiriques magnéto-mécaniques des FeCo de base	24
I.3.4 L'alliage industriel AFK502 d'Aperam Alloys Imphy	25
I.4 Alliages nanocristallins.....	27
I.4.1 Bref aperçu sur les alliages amorphes	27
I.4.2 Elaboration des alliages nanocristallins	29
I.4.3 Propriétés physiques et magnétiques de base.....	31
I.4.4 Les différents recuits de nanocristallisation : les énergies d'anisotropies.....	33
I.5 Vieillissement des matériaux magnétiques.....	38
I.5.1 Vieillissement des matériaux polycristallins.....	38
I.5.2 Vieillissement des matériaux nanocristallins FeCuNbSiB.....	42
I.6 Conclusion	44
I.7 Références	45
II. Chapitre II : Outils d'expérimentation	49
II.1 Introduction	49
II.2 Recensement et préparation des échantillons	50
II.2.1 Recensement des échantillons	50
II.2.2 Préparation des échantillons.....	53
II.3 Brève présentation des techniques expérimentales pour l'étude du vieillissement... 55	
II.3.1 Caractérisations magnétiques	56
II.3.2 Caractérisation électrique	59
II.3.3 Mesure du coefficient de magnétostriction à saturation λ_s	61

II.3.4	Mesures de microstructure	63
II.4	Protocole de caractérisations magnétiques et électriques	65
II.4.1	Intervalles de mesures	66
II.4.2	Caractérisations complètes par échantillon	67
II.5	Conclusion	68
II.6	Références	69
III.	Chapitre III : Comportement magnétique des nanocristallins haute et moyenne perméabilités en fonction du vieillissement thermique	70
III.1	Introduction	70
III.2	Résultats de vieillissement	71
III.2.1	Vieillissement des échantillons $\mu 500000$ nus sans et avec désaimantation	71
III.2.2	Vieillissement des échantillons $\mu 30000$ nus	77
III.3	Interprétation des résultats de vieillissement	83
III.3.1	Les énergies d'anisotropies	83
III.3.2	Evolution des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement	86
III.3.3	Impact de l'évolution des énergies d'anisotropie sur l'évolution des propriétés macroscopiques	99
III.3.4	Comparaison des comportements en vieillissement entre $\mu 500000$ et $\mu 30000$	102
III.4	Interprétation des mesures de microstructure	105
III.4.1	Changement de phase des deux nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$	105
III.4.2	Suspections de la diffusion du Silicium dans les nano-grains	108
III.4.3	Conclusion	110
III.5	Conclusion	111
III.6	Références	112
IV.	Chapitre IV : Influence de l'enrobage sur le vieillissement thermique des nanocristallins moyenne et basse perméabilités.	114
IV.1	Introduction	114
IV.2	Résultats de vieillissement	114
IV.2.1	Mesures initiales (avant vieillissement)	115
IV.2.2	Vieillissement des échantillons nanocristallins $\mu 30000$ nus et enrobés	116
IV.2.3	Vieillissement des échantillons nanocristallins $\mu 200$ nus et enrobés	121
IV.2.4	Effet de l'enrobage sur les propriétés magnétiques	124
IV.3	Interprétation des résultats de vieillissement	125
IV.3.1	Echantillons $\mu 30000$ nus et enrobés	125

IV.3.2	Echantillons $\mu 200$ nus et enrobés.....	130
IV.4	Conclusion	139
IV.5	Références	141
V.	Chapitre V : Comportement magnétique, mécanique des polycristallins FeCoV en fonction du vieillissement thermique.	143
V.1	Introduction	143
V.2	Résultats de vieillissement.....	144
V.2.1	Mesures initiales.....	144
V.2.2	Caractérisations magnétiques quasi-statiques	146
V.2.3	Caractérisations magnétiques dynamiques.....	151
V.2.4	Mesures de traction mécanique	155
V.3	Interprétation des résultats de vieillissement.....	158
V.3.1	Changement de microstructure des AFK502 en fonction du vieillissement	158
V.3.2	Recristallisation partielle des $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$	160
V.3.3	Influence du degré d'ordre sur la limite élastique des AFK502.....	161
V.3.4	Quantification du LRO en fonction du vieillissement	165
V.3.5	Nucléation des grains en fonction du vieillissement.....	167
V.4	Conclusion	169
V.5	Références	171
	Conclusion générale et perspectives.....	172

Introduction générale

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du projet GENOME, « Gestion Optimisée de l'Energie » piloté par Airbus dans un contexte d'un avion plus électrique. Un des enjeux majeurs de ce projet est d'augmenter l'efficacité énergétique. C'est dans cette optique que les industriels s'intéressent au développement des convertisseurs électriques plus performants avec le maximum de réduction en masse et en volume. Cela concerne entre autre les génératrices de bord, les inductances et transformateurs pour les convertisseurs statiques. L'augmentation de la vitesse de fonctionnement des génératrices a permis d'accroître significativement leur puissance massique de 30 à 50 %. Elles sont destinées à fonctionner à grande vitesse et à haute température (jusqu'à 250 °C) vu la haute compacité (densité de puissance importante). Quant aux inductances et/ou transformateurs, l'objectif est de réduire d'un facteur 2 à 4 leur masse volumique pour un fonctionnement à la température de 200 °C avec des points chauds à 250 °C. Les matériaux magnétiques qui constituent une partie intégrante de ces systèmes sont ainsi amenés à travailler dans des environnements sévères de hautes températures, de forts niveaux de contraintes mécaniques (machines rapides) et de fréquences élevées (réduction de volume). Dans ce sens, il est nécessaire de caractériser ces matériaux magnétiques sous ces différentes conditions de fonctionnement et de conduire des essais de vieillissement afin de connaître/prédire leurs comportements à long terme.

Le vieillissement des matériaux magnétiques constitue l'axe de recherche principal de cette thèse. Il est essentiel de l'étudier en fonction de la température, cette dernière présente de fortes conséquences sur les caractéristiques magnétiques mais aussi mécaniques des matériaux magnétiques. Toute étude de vieillissement a pour objectif principal d'établir des modèles phénoménologiques qui permettent de prédire les variations des caractéristiques des matériaux pour une température de fonctionnement donnée. Cependant, l'établissement de tels modèles passe inéluctablement par l'étape liée à la compréhension des mécanismes physiques ou physico-chimiques qui engendrent le vieillissement. Cette étape qui constitue le cœur de cette thèse, représente un verrou scientifique car peu de littérature existe sur la stabilité dans le temps des matériaux magnétiques. Ainsi, l'objectif principal de notre étude est de proposer des hypothèses et des explications fondées sur l'origine du vieillissement magnétique en fonction de la température.

La thèse s'intéresse plus exactement, à l'étude de la stabilité et du vieillissement thermique de deux types de matériaux magnétiques qui sont complètement différents en termes de microstructures. Il s'agit du matériau polycristallin Fer-Cobalt (Standard et HLE (Haute Limite Elastique)) dédié à la fabrication des tôles magnétiques du stator et du rotor des génératrices rapides et, du matériau nanocristallin base Fer-Silicium dédié à la conception des inductances et transformateurs des différents convertisseurs statiques. Ces deux types de matériaux sont fournis sous plusieurs nuances par la société Apéram Alloys Imphy avec qui nous avons étroitement collaboré. Il est à noter que plus de 50 collaborateurs adhèrent au projet GENOME dont Thales qui est chargé du dimensionnement et de la conception des génératrices de bord et des convertisseurs statiques.

Un travail conséquent de caractérisations magnétiques et électriques est effectué selon des protocoles de suivi de vieillissement prédéfinis. De plus, pour aider à la compréhension des mécanismes de vieillissement des matériaux magnétiques, d'autres essais de nature microscopique ont été nécessaires. Cela a ouvert la voie à une nouvelle collaboration avec le laboratoire MATEIS qui est spécialiste des caractérisations de microstructures. Egalement, pour une mesure particulière de magnétostriction, un séjour d'une semaine a été effectué au sein du laboratoire SATIE.

Ce manuscrit s'articule autour de cinq chapitres.

Le chapitre I est consacré dans un premier temps à l'état de l'art sur les propriétés physiques et magnétiques des matériaux magnétiques en général puis plus spécifiquement des matériaux Fer-Cobalt et nanocristallins base Fer-Silicium. Dans un second temps, le chapitre I est dédié à l'état de l'art sur les travaux antérieurs faits sur le vieillissement des matériaux magnétiques.

Le chapitre II présente le travail expérimental effectué dans cette thèse. Il recense en détail les échantillons Fer-Cobalt et nanocristallins utilisés lors des essais de vieillissement. Il présente aussi, les dispositifs qui permettent les mesures des propriétés macro/microscopiques des matériaux ainsi que le protocole de caractérisations magnétiques et électriques des échantillons.

Les chapitres III à V, dédiés à l'étude de vieillissement des matériaux nanocristallins et polycristallins FeCo, reposent sur deux principales parties que sont les présentations des résultats de vieillissement macroscopiques et de leurs interprétations.

Les chapitres III et IV étudient le comportement magnétique des échantillons nanocristallins en fonction du vieillissement. L'interprétation de l'évolution de leurs propriétés magnétiques macroscopiques est faite grâce à l'étude de l'évolution de leurs énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement. Cette étude est appuyée par des mesures de microstructures notamment de DRX et aussi par des mesures de magnétostriction. Ainsi, des hypothèses expliquant les mécanismes de vieillissement magnétique sont proposées. Le chapitre III s'intéresse au cas des nanocristallins à haute et moyenne perméabilités tandis que le chapitre IV se focalise sur l'effet de l'enrobage sur les matériaux de moyenne et basse perméabilités.

Le chapitre V étudie le comportement magnétique des échantillons Fer-Cobalt en fonction du vieillissement. Les évolutions des propriétés magnétiques macroscopiques en fonction du vieillissement sont interprétées, dans un premiers temps, grâce aux variations des propriétés mécaniques macroscopiques. Dans un deuxième temps, elles sont interprétées grâce à l'étude de variation du degré d'ordre et de recristallisation de ces matériaux en fonction du vieillissement. Egalement, ces études sont appuyées par les mesures de microstructures.

Enfin, une conclusion générale ainsi que des perspectives viennent clore ce manuscrit.

I. Chapitre I : Etat de l'art sur les matériaux magnétiques et leur vieillissement.

I.1 Introduction

Afin de situer dans un contexte très général la problématique de vieillissement des matériaux magnétiques, ce chapitre s'intéresse principalement à l'état de l'art des matériaux magnétiques que nous avons étudiés : les polycristallins FeCo et les nanocristallins FeCuNbSiB. Pour chacun de ces deux matériaux, un bref aperçu de leur historique, les méthodes de leur élaboration ainsi que leurs principales propriétés d'usage (magnétiques/mécaniques et microscopiques/macrosopiques) sont présentés. Ce chapitre dresse également un bref état de l'art sur le vieillissement des matériaux magnétiques.

I.2 Définition des propriétés physiques et magnétiques

I.2.1 Domaines magnétiques et processus d'aimantation

Plusieurs phénomènes magnétiques (première aimantation, hystérésis magnétique) peuvent être décrits grâce à la théorie des domaines magnétiques. Cette théorie qui suppose que les matériaux ferromagnétiques se subdivisent en plusieurs régions aimantées à saturation dans des directions aléatoires a été proposée pour la première fois par Pierre-Ernest Weiss en 1907 (physicien français 1865-1940) [1]–[3]. La description donnée à l'époque est toujours d'actualité mais avec quelques modifications. Cette structure en domaines a été mise en évidence expérimentalement quelques années plus tard en 1931 par Bitter. La technique employée consiste à mettre en suspension colloïdale une poudre de Fer déposée sur la surface du matériau magnétique [4]. Actuellement plusieurs techniques qui mettent en évidence cette structure en domaines existent, la plus répandue est la technique magnéto-optique de Kerr. La figure I-1 présente un exemple de la représentation en domaines magnétiques avec cette technique.

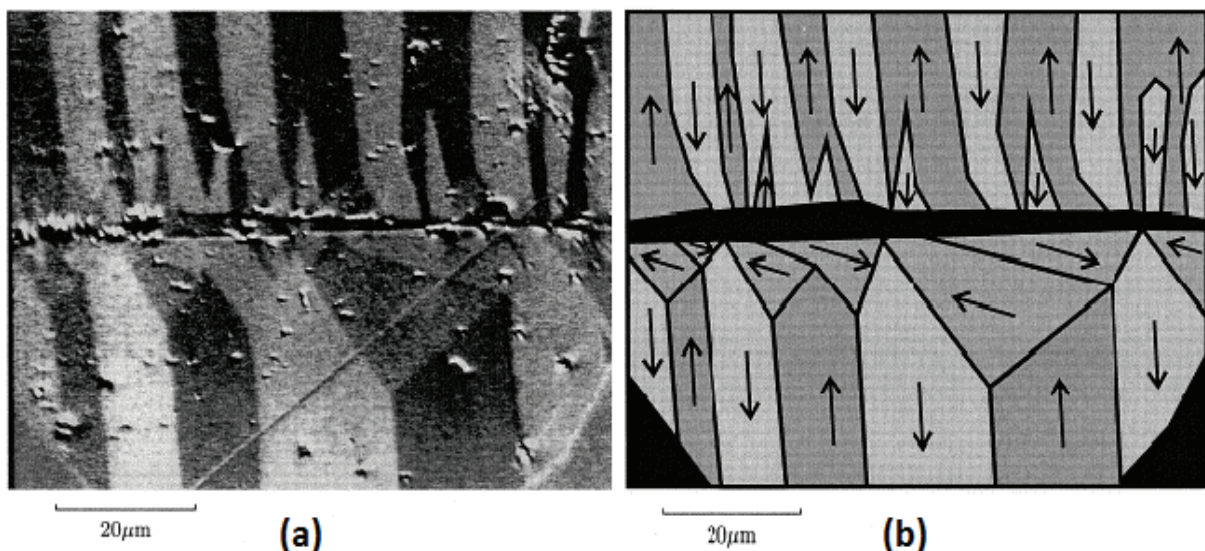


Figure I-1(a) présente la structure en domaines magnétiques d'une magnétite monocristalline multi-domaines (Fe₃O₄) par l'effet magnéto-optique de Kerr. (b) présente un modèle de directions d'aimantation de chaque domaine magnétique [5].

Sans l'application d'un champ extérieur, les directions dans lesquelles les domaines de Weiss se situent sont de telle sorte que l'aimantation résultante est nulle. Avec l'application d'un champ extérieur, les directions aléatoires des domaines magnétiques changent selon la direction du champ appliqué pour donner naissance à l'aimantation globale du matériau magnétique. Les domaines sont séparés par des zones de transition où l'aimantation locale tourne graduellement d'une direction vers une autre, ce sont les parois de Bloch. Ces parois jouent un rôle crucial dans le processus d'aimantation du matériau magnétique.

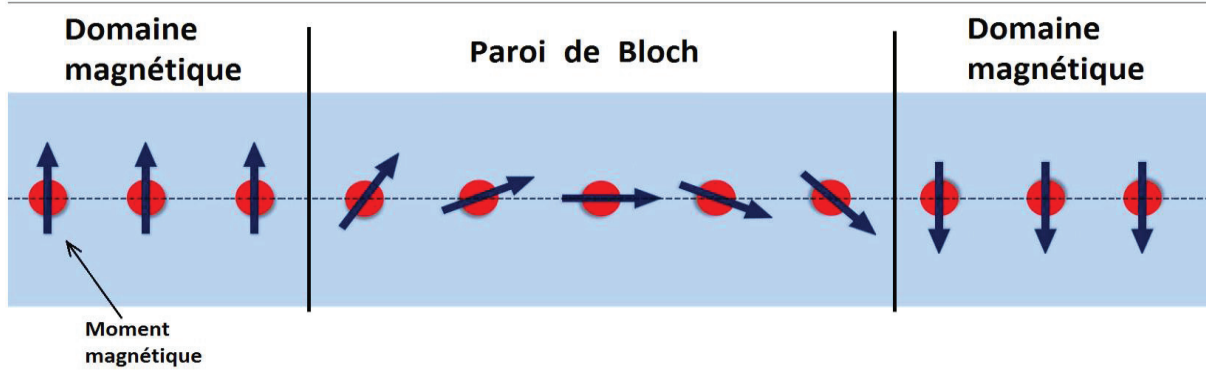


Figure I-2 Illustration de la structure de la paroi de Bloch.

Le moment magnétique d'un domaine donné est spécifié par l'amplitude et la direction de son aimantation et aussi par son volume. Weiss suppose que l'aimantation locale (au niveau du domaine) est toujours à l'état saturé mais cela est valable à température ambiante. En effet, les changements en température affectent l'amplitude de l'aimantation locale [6]. A température constante (ambiante par exemple) le processus d'aimantation du matériau ferromagnétique s'opère grâce à deux mécanismes :

- Changement de volume des domaines magnétiques : c'est le déplacement des parois de Bloch.
- Changement de direction d'aimantation des domaines magnétiques : c'est la rotation.

La figure I-3 présente le processus d'aimantation expliqué par les deux mécanismes précédents.

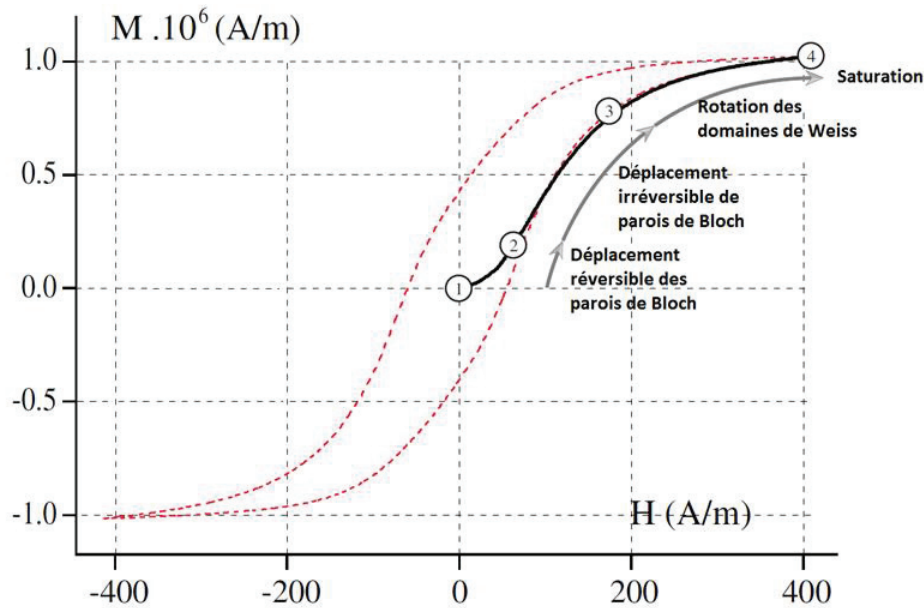


Figure I-3 Courbe de première aimantation illustrant le processus d'aimantation [3].

Ainsi, la courbe de première aimantation est subdivisée en quatre parties identifiées par les processus suivants :

- 1-Déplacement réversible des parois de Bloch
- 2-Déplacement irréversible des parois de Bloch
- 3-Rotation réversible des domaines magnétiques.
- 4-Saturation (orientation de tous les domaines dans le sens du champ excitateur).

Le processus d'aimantation se confronte principalement à deux types de contraintes. La première contrainte est liée aux différents défauts physiques que la structure cristalline contient à savoir : les joints de grains, les dislocations, la divergence magnétique à chaque joint de grain du fait des différences d'orientation cristallographique de part et d'autre, l'interaction avec les défauts de surface, avec de gros atomes interstitiels, avec des précipités intermétalliques ou autres (oxydes, nitrures, sulfures....). La deuxième contrainte est associée aux différentes énergies d'anisotropies qui prédominent sur les directions d'aimantation.

I.2.2 Les énergies magnétiques

Plusieurs types d'énergies magnétiques existent. Cependant, nous présentons seulement celles utilisées pour mener notre étude sur le vieillissement.

I.2.2.1 Energie d'échange [2], [3]

Un matériau est dit ferromagnétique si les interactions entre moments magnétiques sont fortes et que ces derniers peuvent s'ordonner et s'aligner suivant une direction donnée. Dans ce cas, la composition chimique de tels matériaux doit contenir une quantité majoritaire d'éléments chimiques porteurs de moments magnétiques à savoir : le Fer, le Cobalt ou le Nickel. Pierre-Ernest-Weiss, suppose qu'un important champ moléculaire interne est à la base de cet alignement des moments magnétiques [7]. Plus tard, cette hypothèse est expliquée par Heisenberg [3] en termes de forces d'interactions qui tendent à garder les moments

magnétiques voisins alignés. C'est ce qu'on appelle l'énergie d'échange E_{ech} . Il est important de savoir que la contribution de l'énergie d'échange à l'aimantation est purement locale et n'agit que sur de petites régions. Autrement dit, c'est grâce à cette énergie que les domaines de Weiss sont naturellement formés. Sans l'application de champ extérieur, les domaines adjacents sont orientés différemment. Cependant, la direction de l'angle d'aimantation spontanée φ varie d'une manière spatiale (dans tous les sens) ; $\varphi = \varphi(x, y, z)$.

Pour simplifier, supposons que la direction des moments magnétiques varie seulement selon l'axe x , dans ce cas E_{ech} par unité de volume se trouve être proportionnelle au carré du gradient de $\varphi(x)$:

$$E_{ech} = A \cdot \left(\frac{d\varphi}{dx} \right)^2 \quad (I.1)$$

Où A représente la constante d'échange du matériau. Elle est positive dans le cas des matériaux ferromagnétiques. Pour une aimantation homogène ($\varphi = \text{constante}$), $d\varphi/dx = 0$ donc l'énergie d'échange s'évanouit, par contre, pour une aimantation non-homogène l'énergie d'échange augmente.

La constante A est proportionnelle à la température de Curie T_C selon l'équation suivante :

$$A = c \cdot T_C \quad (I.2)$$

Avec $c \approx 1.2 \times 10^{-14}$ J/m, T_C est donnée en Kelvin. En général, pour les ferromagnétiques polycristallins, la constante d'échange A montre une dépendance faible pour les basses températures ($T < T_C/2$), mais A décroît considérablement lorsque la température s'approche de T_C . La dépendance de A à la température peut être approximée à partir de la dépendance de la polarisation à saturation J_s à la température selon l'équation suivante [2]:

$$\frac{A(T)}{A(0\text{ K})} = \left[\frac{J_s(T)}{J_s(0\text{ K})} \right]^2 \quad (I.3)$$

I.2.2.2 Les énergies d'anisotropie

I.2.2.2.1 Energie d'anisotropie magnétocristalline [2], [3], [6], [8], [9]

L'entité de base d'un matériau magnétique est le cristal caractérisé par ses orientations cristallographiques ($\langle hkl \rangle$), sa forme (bcc, cfc, etc.) et sa taille (longueur du paramètre de maille par exemple). Le fait d'avoir plusieurs directions cristallographiques rend le réseau cristallin auquel ces directions appartiennent anisotrope et rend aussi généralement anisotrope un bon nombre des propriétés physiques notamment les propriétés magnétiques. L'aimantation ne se propage pas avec la même facilité selon les différentes orientations cristallographiques. Chaque type de cristal présente une/plusieurs direction(s) de facile aimantation et une/plusieurs direction(s) de difficile aimantation. Dévier l'aimantation de la direction de facile aimantation nécessite, pour le matériau, une énergie magnétique additionnelle, dite énergie d'anisotropie magnétocristalline.

Selon le type du matériau magnétique (le cristal de base), une ou plusieurs directions de facile aimantation peuvent exister. On parle d'anisotropie uniaxiale lorsqu'une seule direction de l'espace contrôle l'anisotropie. Cela concerne tout métal présentant des cristaux hexagonaux

ou tétraonaux. Par conséquent, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline par unité de volume s'écrit comme suit :

$$E_{K1} = K_1 \cdot \sin^2 \varphi \quad (I.4)$$

Avec φ : l'angle entre l'aimantation spontanée et l'axe de facile aimantation. K_1 : est la constante d'anisotropie magnétocristalline. Si $\varphi = 0^\circ$ ou 180° , l'aimantation déploie un minimum d'énergie pour atteindre la saturation (les moments magnétiques sont alignés selon l'axe préférentiel). Si $\varphi = 90^\circ$, l'aimantation déploie K_1 comme énergie pour saturer le matériau selon un axe de difficile aimantation.

On parle aussi d'anisotropie multiaxiale, comme le cas de l'anisotropie cubique où trois directions orthogonales de facile aimantation existent et sont définies par les cosinus directeurs α comme suit :

$$E_{K1} = K_1 \cdot (\alpha_1^2 \cdot \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \cdot \alpha_3^2 + \alpha_2^2 \cdot \alpha_3^2) \quad (I.5)$$

Le signe de K_1 définit les axes de facile aimantation. Dans le Fer (Fe) K_1 est positive et les axes de facile aimantation sont les arêtes de la maille : $\langle 100 \rangle$, $\langle 001 \rangle$, $\langle 010 \rangle$ (voir figure I-4). Dans le Nickel (Ni), K_1 est négative et les axes de facile aimantation sont les diagonales de la maille : $\langle 101 \rangle$, $\langle 011 \rangle$, $\langle 111 \rangle$. La figure I-4 présente la distribution de la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline dans les cas uniaxial et cubique (la représentation cubique concerne celle du Fer).

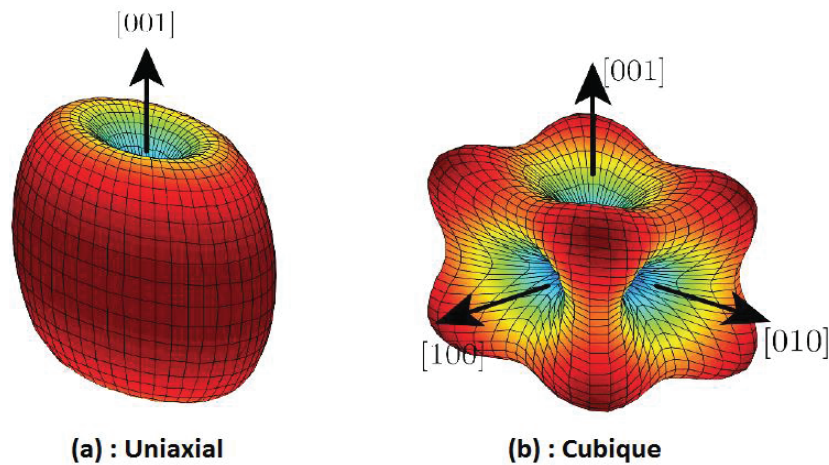


Figure I-4 Distribution de la densité d'énergie d'anisotropie magnétocristalline. (a) : Uniaxial, (b) : Cubique [3].

L'amplitude de K_1 détermine la nature du matériau magnétique : dur ou doux. En effet, la constante d'anisotropie K_1 des matériaux durs (les terres rares) peut atteindre 10^8 J/m^3 . Par contre, la constante d'anisotropie K_1 est beaucoup moins importante pour les matériaux doux (10^3 à 10^5 J/m^3 pour les éléments de transitions : Fe, Ni, Co etc.). Dans les amorphes et les nanocrystallins, la constante K_1 s'évanouit (proche de zéro) car il n'y a pas une structure cristalline à grande distance. En effet, K_1 dépend essentiellement de la composition chimique mais aussi du degré d'ordre à courte distance (ce point est détaillé à la section I.4.4). De plus, l'anisotropie K_1 dépend de la température : elle décroît lorsque la température augmente et s'annule au voisinage de T_C .

I.2.2.2.2 Energie d'anisotropie magnétoélastique [2], [3], [6], [8], [9]

Les matériaux magnétiques présentent généralement un couplage magnéto-mécanique. En effet, aimanter un matériau magnétique est généralement accompagné d'un changement de la forme du matériau. Ce phénomène est appelé la magnétostriction directe. Cette déformation est proportionnelle à la constante de magnétostriction à saturation notée λ_s et à la contrainte interne notée σ_i . La constante λ_s dépend de la composition chimique et des conditions de recuit du matériau et peut être positive ou négative. La contrainte interne σ_i est le résultat de la déformation commune des grains (équilibre mécanique intergranulaire). En effet, du fait des orientations cristallographiques préférentielles, au passage de l'aimantation, chaque cristal essaie de se déformer différemment de son voisin mais il en sera incapable vu la cohésion mécanique intergranulaire qui oblige tous les cristaux à s'orienter dans une direction commune. L'exemple classique qui met en évidence la magnétostriction directe est le son audible que les transformateurs émettent lors du fonctionnement en hautes fréquences. En effet, à cause de constante λ_s élevée des tôles magnétiques, ces dernières se déforment et se frottent entre elles. Plus la fréquence augmente plus la vitesse des frottements augmente.

Dans le sens inverse, si le matériau est soumis à une contrainte mécanique, une anisotropie magnétique s'engendre et dégrade les propriétés magnétiques. C'est ce qu'on appelle l'énergie d'anisotropie magnétoélastique (ou anisotropie de magnétostriction indirecte). Par unité de volume, elle est donnée comme suit :

$$E_{\lambda\sigma} = K_{\lambda\sigma} \cdot \sin^2 \varphi \quad (I.6)$$

Avec φ l'angle entre la direction de l'aimantation et l'axe de l'application de la contrainte. La constante $K_{\lambda\sigma}$ est proportionnelle à la contrainte appliquée σ et à la constante de magnétostriction à saturation λ_s comme suit :

$$K_{\lambda\sigma} = -\frac{3}{2} \cdot \lambda_s \cdot \sigma \quad (I.7)$$

Les équations (I.6) et (I.7) sont aussi valables dans le cas de la magnétostriction directe mais en tenant compte que de la contrainte interne σ_i ¹ (changer σ par σ_i).

La figure I-5 présente l'influence de la contrainte sur la courbe de première aimantation : (a) et sur la variation de la magnétostriction en fonction de l'aimantation : (b).

¹ Dans la majorité des publications sur l'anisotropie magnétoélastique dans les matériaux nanocristallins, les contraintes internes sont considérées comme scalaires. Cette approche scalaire est adoptée dans ce manuscrit, alors qu'en réalité, ces contraintes ont un caractère plutôt tensoriel (multidirectionnel).

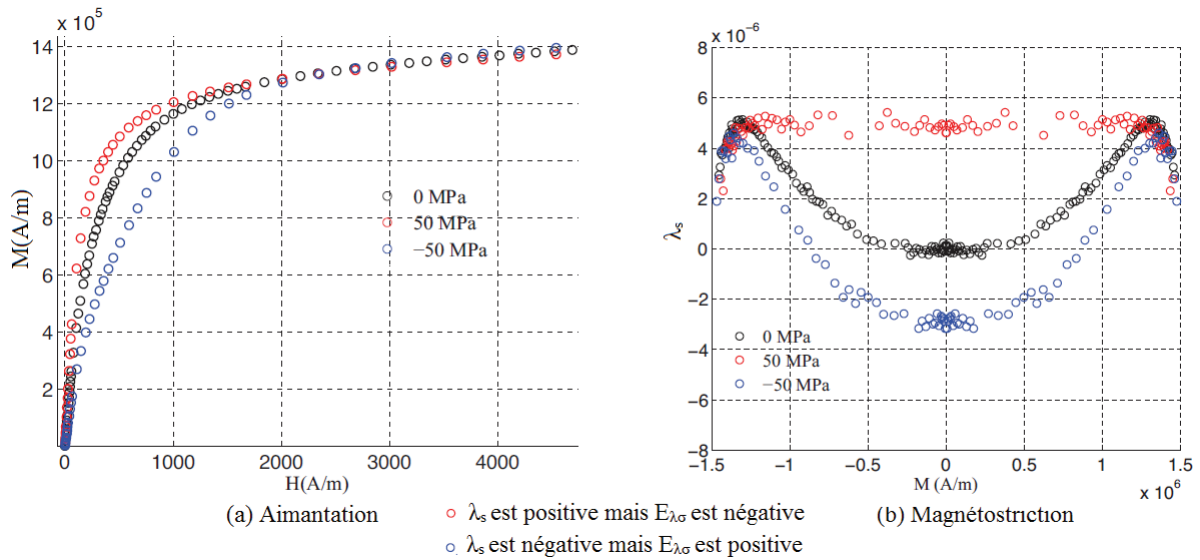


Figure I-5 Influence de la contrainte sur la courbe de première aimantation : (a) et sur la variation de la magnétostriction en fonction de l'aimantation : (b) [3].

Pour les matériaux polycristallins la constante de magnétostriction λ_s dépend de plusieurs directions cristallographiques. Par exemple pour les systèmes cubiques tel que le Fer, le couplage magnéto-mécanique est représenté par deux constantes de magnétostriction λ_{100} et λ_{111} mesurées le long de l'arrête $\langle 100 \rangle$ et la diagonale $\langle 111 \rangle$ respectivement. En général pour les matériaux polycristallins base-Fer, λ_s est calculée en fonction de λ_{100} et λ_{111} selon l'équation suivante : $E_{\lambda\sigma}$

$$\lambda_s = \frac{1}{5}(2.\lambda_{100} + 3.\lambda_{111}) \quad (I.8)$$

Pour les matériaux amorphes et nanocristallins la magnétostriction est isotrope et définie par une seule constante λ_s . Pour la plupart de ces alliages, λ_s varie entre 1 et 100 ppm (10^{-6} - 10^{-4}) et pour certaines de leurs compositions λ_s peut même changer de signe autour de zéro (on dit que la magnétostriction s'évanouit). Cet évanouissement de λ_s est souvent contrôlé par le recuit de ces matériaux.

Cette caractéristique de magnétostriction inverse (indirecte) est exploitée d'une manière contrôlée pour induire une anisotropie magnétoélastique uniforme via le recuit sous contraintes. Cette technique est particulièrement utilisée dans les alliages amorphes et nanocristallins pour baisser leurs perméabilités (pour plus de détails voir section I.4.4.2).

I.2.2.2.3 Energie d'anisotropie induite uniforme sous champ magnétique [2], [6], [9]

Créer cette anisotropie induite uniforme n'est pas possible dans tous les alliages ferromagnétiques. Cela est possible dans les matériaux où les énergies d'anisotropie magnétocristalline et magnétoélastique sont faibles : caractéristique que les amorphes, les nanocristallins et certains alliages Fer-Nickel possèdent. L'énergie d'anisotropie induite uniforme est notée E_{Ku} . La technique consiste à appliquer un recuit sous champ magnétique à une température en dessous de la température de Curie, cela induit E_{Ku} avec un axe de facile aimantation qui est la direction du champ magnétique durant le recuit. Par unité de volume, cette énergie d'anisotropie est donnée comme suit :

$$E_{Ku} = K_u \cdot \sin^2 \varphi \quad (I.9)$$

Où φ est l'angle entre l'aimantation et la direction du champ magnétique appliqué durant le recuit. L'énergie d'anisotropie induite uniforme E_{Ku} tire son origine de l'alignement des moments magnétiques, figée grâce au refroidissement rapide de la température de recuit à la température ambiante. En effet, un tel refroidissement arrête brusquement la diffusion atomique et ne laisse pas le temps aux moments magnétiques de retrouver leurs directions aléatoires. Cette énergie E_{Ku} dépend fortement de la composition chimique du matériau et de la température de Curie T_C . Elle se développe uniquement à des températures de recuit inférieures à T_C . Plus T_C est élevée plus E_{Ku} sera importante. La cinétique de sa formation dépend aussi de la composition chimique et de la température de recuit du matériau et elle atteint son équilibre après un temps théorique de recuit de valeur infinie. Le champ extérieur lors du recuit sert seulement à l'alignement de l'aimantation locale [10], [11].

Le tableau I-1 présente les valeurs des constantes d'anisotropie K_1 , λ_{100} , λ_{111} et λ_s pour les principaux matériaux magnétiques doux.

Matériaux ; alliages	K_1 (J/m ³)	λ_{100} (ppm)	λ_{111} (ppm)	λ_s mesurée en ppm (entre parenthèses selon l'équation (I.8))	Possibilité d'un K_u efficace (J/m ³)	Gamme de H_c accessible (A/m)
Fer doux	45000	24	-23	11 (-4.2)	NON	60-80
Fe-3%Si-N.O	36000	27	-5	1 (7.8)	NON	40-80
Fe-6.5%Si	21000	1.9	3	1.5 (2.6)	NON	30-40
Fe-9.9%Si-5.5%Al	-0.5			0	?	1.5-4
Fe-27%Co	38000	90	8	35 (41)	NON	70-100
Fe-49%Co-2%V ; * : mesure sur Fe-49%Co	0 +/-200	135-160*	34-40*	65 (74-88)	OUI, faible	40-100
Nickel pur	-4000	-46	-29	(-36)	NON	80-120
Fe-36%Ni (Invar)	700	-6	20	(9.6)	NON	15-55
Fe-48%Ni (Supra50)	3400	7	27	(19)	OUI, faible	2-8
Fe-55%Ni	200-1000	25	25	(25)	0-350	1-2
Fe-80%Ni-5%Mo	0 +/-3	4	0	(1.6)	0-140	0.3-2
Fe-81%Ni-6%Mo	0 +/-3	1.5	-1	0 (0)	0-140	0.3-2
Amorphe base Fe	0	-	-	30	OUI, faible	3-6
Amorphe base Co	0	-	-	0 +/-0.3	OUI, fort	0.2-1
Nanocristallin FeCuNbSiB	$<K_1>\approx 1-2$	-	-	0 +/-2	OUI, fort	0.3-1

Tableau I-1 Constantes d'anisotropie des principaux matériaux magnétiques doux [8].

I.2.2.2.4 Energie d'anisotropie totale

Lors du déplacement de l'aimantation locale dans le matériau magnétique sous l'application d'un champ extérieur, cette dernière ne voit pas distinctivement ces différentes énergies. En réalité, l'aimantation locale se confronte à une énergie d'anisotropie qui est la résultante de toutes les différentes énergies d'anisotropie présentées précédemment, appelée énergie d'anisotropie totale et notée E_K [2]. Cette énergie d'anisotropie est calculée grâce à la courbe de première aimantation [2]:

$$W \left(\frac{J}{m^3} \right) = \int_0^{J_s} H dJ \approx E_K = E_{K_1} + E_{K_u} + E_{\lambda\sigma} \quad (I.10)$$

Où, J_s est la polarisation à saturation.

I.2.3 Grandeurs magnétiques macroscopiques de base

Malgré la diversité que présentent les matériaux ferromagnétiques doux au niveau de la forme structurale (cristallins, amorphes, hybride entre cristallins et amorphes, ferrites etc.), ils se caractérisent tous par les mêmes grandeurs magnétiques macroscopiques de base dont leur détermination est faite à partir des cycles d'hystérésis. Ces grandeurs sont le champ coercitif H_c , l'induction rémanente B_r , la perméabilité relative μ_r , l'induction à l'approche de la saturation B_s et les pertes magnétiques. La figure I-6 présente un cycle d'hystérésis avec ces différentes grandeurs.

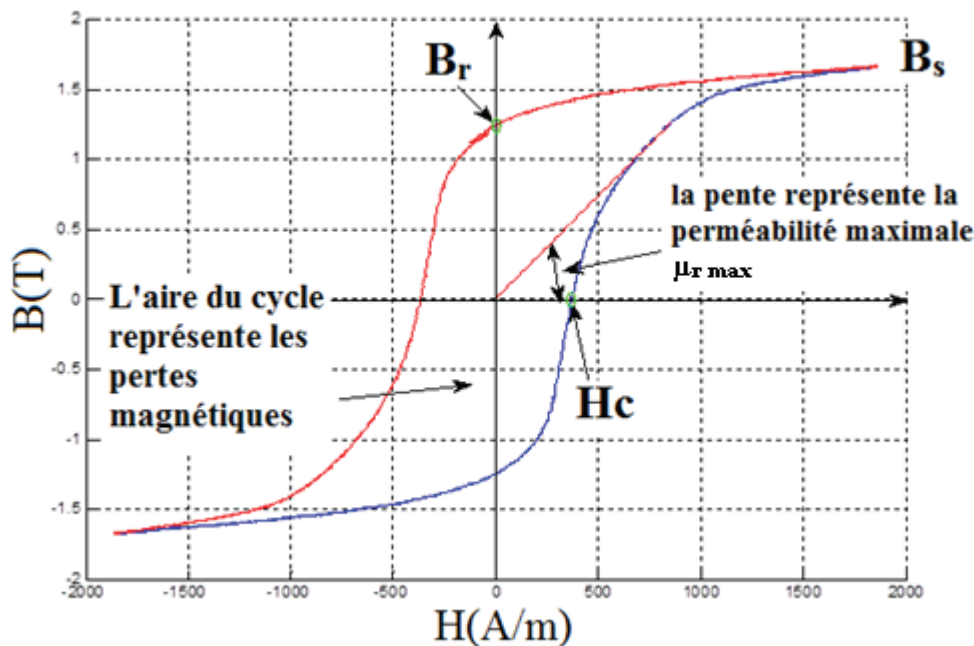


Figure I-6 Cycles d'hystérésis statique avec indication des grandeurs magnétiques

- **Champ coercitif H_c et induction rémanente B_r**

Le champ coercitif traduit la difficulté que les domaines magnétiques trouvent pour se former pendant les processus d'aimantation à très faible fréquence. C'est aussi le champ magnétique nécessaire pour annuler l'induction rémanente B_r qui subsiste malgré l'annulation du champ magnétique extérieur H .

- **Induction à saturation B_s**

Quand le champ magnétique H augmente indéfiniment dans un matériau ferromagnétique, l'intensité d'aimantation (ou bien la polarisation des moments magnétiques) s'approche d'une limite finie. Cette limite est communément appelée l'induction à saturation B_s .

- **Perméabilité relative μ_r**

La non-linéarité des cycles d'hystérésis plus précisément des courbes de première aimantation a pour effet que μ_r n'est pas une constante mais une fonction du champ magnétique. On indique souvent la perméabilité relative initiale μ_i et la perméabilité relative maximale μ_{max} . La perméabilité μ_i est une valeur théorique, inaccessible directement par la mesure puisqu'elle correspond à un champ nul. En pratique, elle est mesurée pour des champs magnétiques très faibles. La perméabilité μ_{max} est déterminée dans la région des champs moyens (au coude du cycle d'hystérésis).

- **Pertes magnétiques**

Dès lors que le matériau magnétique est électriquement conducteur, des pertes classiques (ou pertes par courants de Foucault) apparaissent si l'on applique au matériau un champ magnétique variable dans le temps. En effet, l'application d'un champ magnétique variable provoque l'apparition d'une force électromotrice (loi de Faraday) déphasée de $\pi/2$ par rapport à ce dernier. Cette f.e.m engendre à son tour dans le matériau conducteur des courants électriques dits « induit globaux ou de Foucault ». Ces derniers créent un champ magnétique déphasé encore une fois de $\pi/2$ par rapport à la f.e.m donc de π par rapport au champ magnétique exciteur. Ainsi, l'apparition des courants induits globaux s'oppose à la variation temporelle du champ magnétique exciteur. Les pertes classiques sont fonction des paramètres liés à la résistivité électrique du matériau ainsi qu'à son épaisseur, à la fréquence du champ magnétique exciteur sinusoïdal et à la valeur crête de l'induction par l'équation suivante :

$$P_{class}(\frac{W}{m^3}) = \frac{\pi^2 \cdot f^2 \cdot B^2 \cdot e^2}{6 \cdot \rho} \quad (I.11)$$

Avec f : fréquence pour un champ magnétique sinusoïdal, e : épaisseur du matériau, B : induction crête, ρ : résistivité.

Dans un contexte d'intégration de puissance, les seuls paramètres sur lesquels on peut jouer pour minimiser ces pertes classiques sont la résistivité et l'épaisseur du matériau. A l'heure actuelle et malgré les progrès technologiques de fabrication des matériaux magnétiques (tôles, rubans etc.), la diminution des pertes classiques est devenue assez délicate à cause des compromis rencontrés par les métallurgistes vis-à-vis de l'accroissement de la résistivité et la diminution de l'épaisseur du matériau magnétique. En effet, il y a un compromis entre l'accroissement de ρ tout en limitant les dégradations sur les grandeurs magnétiques en particulier B_{sat} et aussi un compromis entre la réduction de e sans pour autant changer la microstructure du matériau magnétique.

Définir les pertes magnétiques seulement par les pertes classiques serait très loin de la réalité. Pour donner une définition exacte, il faut passer de l'échelle macroscopique à l'échelle

microscopique c'est-à-dire au niveau des domaines magnétiques. Selon la théorie des domaines magnétiques posée par Weiss et Bloch [1], [2], le processus d'aimantation s'effectue par un phénomène de déplacement de parois de Bloch (formation des gros domaines) et par la rotation des domaines magnétiques à l'approche de la saturation. Dans des cas particuliers d'une anisotropie macroscopique uniforme imposée dans le matériau, ce processus d'aimantation procède seulement par rotation des domaines magnétiques [12], [13]. Si on considère seulement le cas général de cette théorie, deux mécanismes permettent de compléter la définition des pertes magnétiques [14].

- Le premier mécanisme est par essence le même que celui qui est sous-jacent des pertes classiques mais à l'échelle microscopique. La variation du flux magnétique dans le matériau est due au déplacement de la paroi de Bloch au travers des domaines magnétiques qui sont constitués d'un ou de plusieurs grains dans le cas des matériaux polycristallins (on verra plus loin que cela n'est plus le cas pour les matériaux nanocristallins : Modèle RAM). En fait, le passage de la paroi au travers des domaines magnétiques crée à l'intérieur des grains des courants induits locaux qui créent à leur tour des champs magnétiques locaux qui s'opposent au mouvement de la paroi de Bloch.
- Le deuxième mécanisme concerne le piégeage des parois de Bloch par les différents défauts qui peuvent exister dans la microstructure du matériau magnétique (joints de grains, dislocations, précipités, gros atomes interstitiels, microfissures, rugosité de la surface du matériau etc.). Plus ces défauts sont importants en nombre et/ou en taille, plus l'accrochage des parois par ces défauts sera efficace. Ceci provoque une augmentation de la pression magnétique jusqu'à décrochage de ces dernières qui se déplaceront avec une vitesse bien supérieure à celle du champ magnétique principal (fréquence du fondamental). Donc, localement, les parois ont fait apparaître des courants induits supplémentaires avec des fréquences harmoniques. C'est ce phénomène qui est à l'origine des pertes dites en excès ou excédentaires. A présent, si la fréquence du champ excitateur est suffisamment faible pour qu'il n'y ait pas de courants induits locaux supplémentaires, le piégeage des parois de Bloch par les défauts existerait toujours et cela est à la base des pertes statiques ou dites par hystérésis.

Le principe de décomposition des pertes magnétiques selon des pertes classiques, par hystérésis et excédentaires (ou supplémentaires) [15] est généralement admis. La figure I-7 présente un exemple de décomposition des pertes pour un matériau donné.

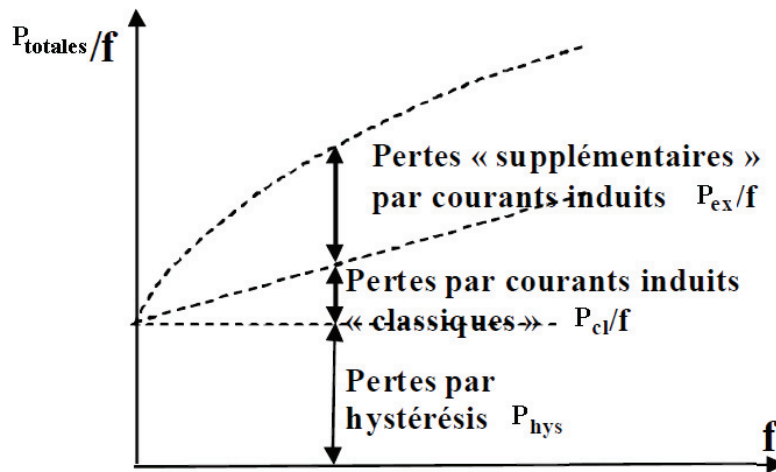


Figure I-7 Décomposition des pertes totales normalisées par rapport à la fréquence f .

I.3 Alliage Fer-Cobalt

L'alliage Fer-Cobalt est un matériau ferromagnétique qui présente des caractéristiques magnétiques fort intéressantes. Pour une composition à 35 % de Cobalt, il atteint une induction à saturation $B_s=2.43$ T ce qui représente plus de 20 % celle du FeSi et plus de 13 % celle du Fer pur [1], [16]. L'alliage de FeCo contenant 50 % de chaque élément, donne pratiquement les mêmes propriétés que celles de l'alliage contenant 35 % de Co, avec une perméabilité plus élevée et une induction légèrement inférieure. « Permendur », est le nom qui a été donné à cet alliage par Elmen suite à son invention quelques années avant 1927. Pour des raisons de fabrication industrielle (laminage à froid), un petit pourcentage du vanadium a été ajouté pour le rendre plus ductile. Cet ajout a fait l'objet d'un dépôt de brevet par White et Whal en 1932 [1], [17].

Au début de son utilisation le FeCo était réduit à des applications pointues. Aujourd'hui, et malgré son coût élevé, il est utilisé dans diverses applications à savoir : les génératrices de bord pour les avions, transformateurs et actionneurs spéciaux ou injecteurs pour automobile [14], [18].

I.3.1 Propriétés physiques et magnétiques de base

Les propriétés magnétiques d'un matériau dépendent entre autres de sa composition chimique, de sa fabrication et de la température de fonctionnement. En exemple, le degré de cobalt combiné à du fer à un pourcentage donné, donne un alliage qui peut présenter des propriétés magnétiques très différentes concernant la perméabilité, le champ coercitif et les pertes par hystérésis alors que l'induction à saturation change peu. Le diagramme de phase est l'un des outils utilisé par les métallurgistes pour pouvoir contrôler les changements de ces propriétés lors de la fabrication ou bien lors du traitement thermique. La figure I-8 présente le diagramme de phase de l'alliage Fer-Cobalt.

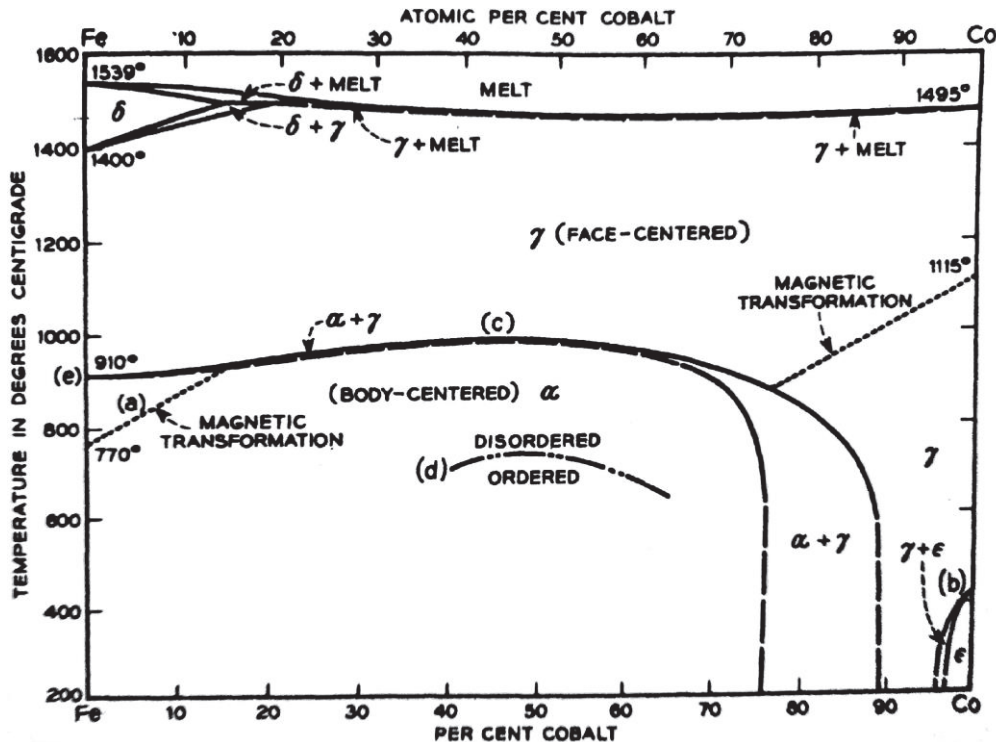


Figure I-8 Diagramme de phase de l'alliage binaire FeCo [1], [14], [16], [17].

Ce diagramme présente potentiellement 3 phases :

- la phase α : structure cristalline cubique centrée,
- la phase γ : structure cristalline cubique à faces centrées,
- la phase δ : même structure que la phase α .

Lors du traitement thermique du Fer pur, sa structure de phase α ne change pas jusqu'à 900 °C où il rentre dans la phase γ qui est une structure cubique à faces centrées puis à 1400 °C se transforme en phase δ et à 1539 °C il fond (Melt). Le Fer Pur ne présente pas une transformation d'ordre/désordre qui est importante pour que l'alliage ait une utilité magnétique. La ligne (d) montre que la phase α devient ordonnée avec le refroidissement, autrement dit, les atomes du Fer et du Cobalt tendent à se distribuer d'une manière régulière dans toutes les directions pour que tout atome (exp. Atome de Fer) soit entouré par les atomes de l'autre genre (exp. Atome de Cobalt).

Généralement la fabrication des tôles de ces alliages se fait à froid, on parle de laminage, estampage, découpage etc. donc il est très important que cet alliage soit ductile. Pour garantir cette ductilité, le traitement thermique de l'alliage doit se faire à une température supérieure à celle de la transformation ordre/désordre donc dans la phase de désordre. Cela garantit la ductilité pour la fabrication et l'état ordonné de l'alliage pour qu'il ait les propriétés magnétiques souhaitées. Plus la température de la transformation ordre/désordre est haute plus la ductilité et les propriétés magnétiques sont améliorées [1]. Le diagramme de phase montre clairement que pour 50 % de Cobalt, on a le maximum de température de transformation ordre/désordre qui est de 720-730°C [1], [16], [17].

I.3.1.1 Point de Curie

La ligne (c) du diagramme de phase donne la température de Curie selon les différents pourcentages du Cobalt dans le Fer. Elle délimite le changement de comportement magnétique de l'alliage, en dépassant la température de Curie l'alliage devient non magnétique. Cette température croît si l'on augmente le taux de Cobalt dans le Fer (770 °C pour le Fer pur et 1115 °C pour le Cobalt pur). Pour la composition qui nous intéresse, 50 %Co « Permendur », elle est aux alentours de 990 °C.

La figure I-9.a montre l'évolution de l'induction en fonction de la température pour le Permendur. L'induction diminue normalement avec l'augmentation de la température jusqu'à la température de Curie 990 °C mais s'annule brusquement au-delà. Ce changement rapide de l'aimantation s'explique par le fait qu'il n'y a pas de changement de phase ($\alpha+\gamma$) à cette température (la phase ($\alpha+\gamma$) est très mince d'après le diagramme de phase : voir la figure I-8).

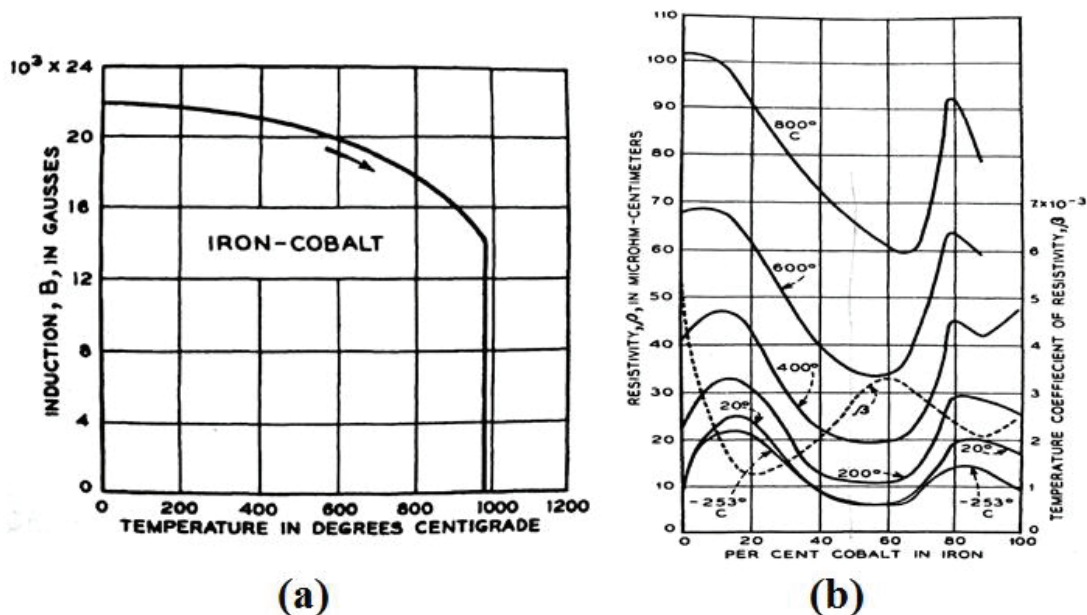


Figure I-9 (a) : La température de Curie du FeCo à 50% du Cobalt. (b) : Résistivité électrique en fonction du taux de Cobalt dans le Fer [1].

I.3.1.2 Résistivité électrique

La figure I-9.b trace l'évolution de la résistivité pour plusieurs niveaux de températures en fonction du taux de Cobalt contenu dans l'alliage FeCo. Le minimum de résistivité est observé pour les basses températures et pour les différentes températures pour la composition de 50 % de Cobalt. On peut attribuer ce minimum de résistivité pour 50 % de Co au fait qu'à cette proportion de Cobalt on a un maximum de degré d'ordre dans l'alliage. D'un point de vue des pertes classiques, le Permendur est la composition la moins favorable.

I.3.1.3 Aimantation

Le maximum de saturation magnétique de 2.46 T (24600 G) a été observé pour 35 % de Cobalt à la température ambiante mais à un champ magnétique très important 1.36×10^6 A/m

(17000 Oe), c'est d'ailleurs le maximum de saturation magnétique qui a été observé dans les matériaux magnétiques doux jusqu'à présent.

La figure I-10.a montre l'évolution de l'induction en fonction du taux de Cobalt à la température ambiante pour différents niveaux de champ magnétique H .

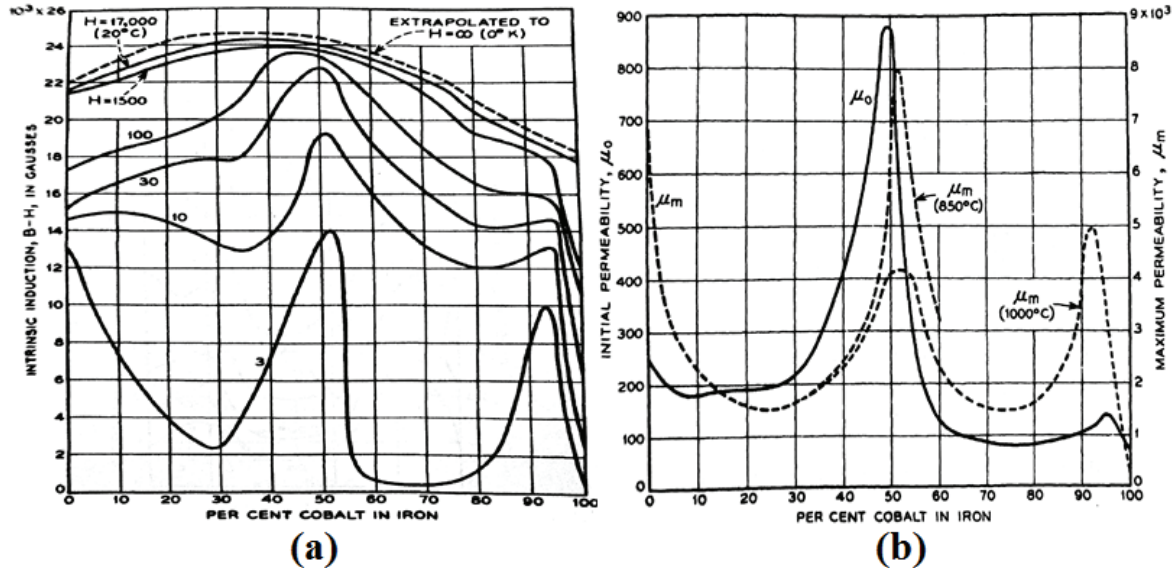


Figure I-10 (a) : Induction en fonction du taux de Cobalt pour plusieurs niveaux du champ magnétique. (b) : Perméabilité magnétique en fonction du taux de Cobalt [1].

On voit clairement, jusqu'à une valeur assez importante de champ magnétique H de 7960 A/m (100 Oe), que l'induction est à chaque fois maximale pour 50 % de Co. La figure montre aussi l'extrapolation de la saturation au zéro absolu (0 K) qui atteint, logiquement, la plus haute valeur (supérieur de 2.5 T) pour 35 % de Co.

I.3.1.4 Perméabilité

L'expérience des métallurgistes a montré la forte dépendance de la perméabilité maximale à la température de recuit pour le Permendur (50 % de Co). La figure I-10.b montre l'évolution de la perméabilité initiale et maximale en fonction du taux de Co pour deux températures de recuit 850°C et 1000°C.

L'alliage binaire² FeCo, présente une perméabilité initiale supérieure à celle du Fer pur, cette perméabilité a été mesurée la première fois par Elmen [1], [17]. La perméabilité initiale du Permendur est 3 fois supérieure à celle du Fer pur, d'après la figure I-10.b. Le Permendur présente le maximum de perméabilité maximale pour les deux températures de recuit 850 °C et 1000 °C, mais elle est d'autant plus importante pour 850 °C que pour 1000 °C, il y a un facteur 2.

I.3.1.5 Anisotropie magnétocristalline et magnétostriction du Permendur

L'une des particularités des alliages Fe-Co est leur décroissance significative de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline E_{K1} avec l'augmentation du pourcentage du Co dans le Fe [14], [17]. Combiner cela avec un bon contrôle du degré d'ordre dans le matériau permet

² : Alliage contenant deux éléments chimiques.

d'atteindre une énergie d'anisotropie E_{K1} quasi-nulle aux alentours de 50% de Co (en imposant par exemple une vitesse de refroidissement de 250 °C/h pour un alliage $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$ [19]). Ainsi les propriétés magnétiques d'un tel alliage deviennent dépendantes de la magnétostriction qui atteint, par contre, son maximum pour cet alliage. Malgré cette magnétostriction élevée, l'alliage équiatomique FeCo présente des propriétés magnétiques douces. La figure I-11 présente les évolutions de l'anisotropie magnétocristalline et de la magnétostriction ainsi que de la saturation magnétique en fonction du pourcentage de Co.

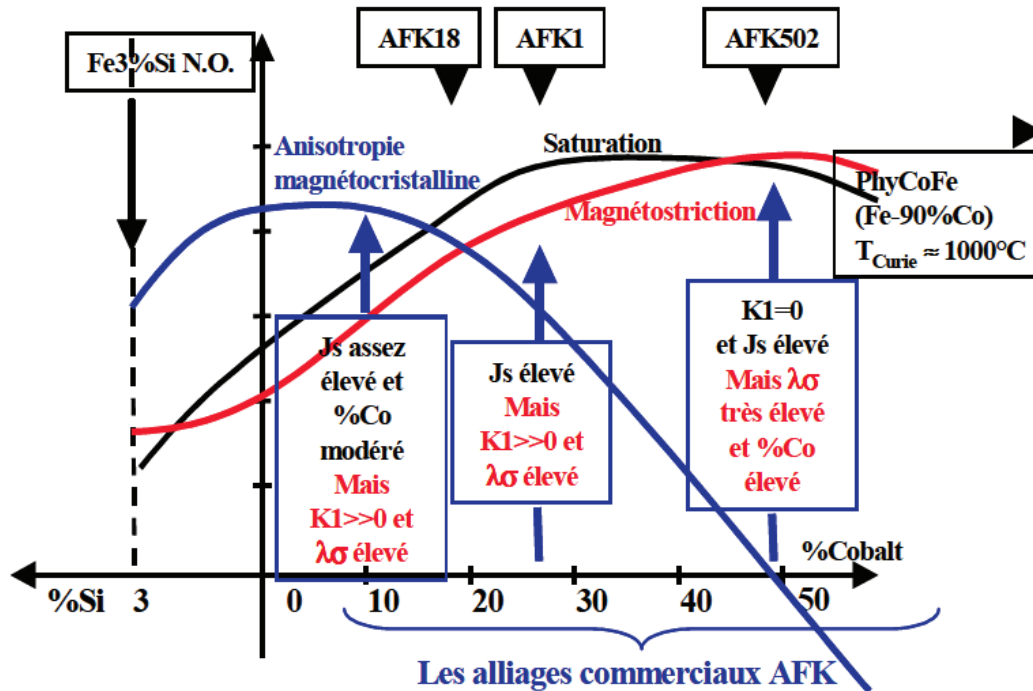


Figure I-11 Evolutions de l'anisotropie magnétocristalline et de la magnétostriction et de la saturation de plusieurs alliages FeCo commercialisés ainsi que le Fe-3% Si à grains non-orientés. L'AFK18 contient : 18 %Co et 0.5 %Si ; L'AFK1 contient : 27 %Co et 0.5 %Cr ; L'AFK502 contient : 49 %Co et 2 %V [14].

I.3.2 Addition du Vanadium au Permendur (FeCo à égales proportions)

L'addition de 2 % de Vanadium au FeCo à proportions égales ($\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$) détériore sensiblement les propriétés magnétiques suivantes : l'induction à saturation, la perméabilité, le champ coercitif. Par ailleurs, l'addition de 2 %V diminue les pertes magnétiques (accroissement de la résistivité électrique vers 40 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ → diminution des pertes classiques). De plus, cette addition n'agit pas (ou agit très peu) sur les énergies d'anisotropie de l'alliage : E_{K1} et $E_{\lambda\sigma}$.

Le facteur le plus important concernant l'addition de Vanadium est que celui-ci, pendant le refroidissement, retarde la mise en ordre fragilisante dans l'alliage [16]. Cela, permet d'améliorer la ductilité de l'alliage pour la facilité de fabrication et d'utilisation par les industriels (laminage à froid découpe en pièces avant recuit final par exemple). Malgré les détériorations observées sur certaines propriétés magnétiques, cet alliage reste le plus intéressant des alliages ternaires³ du point de vue magnétique [20].

³ : Alliage contenant trois éléments chimiques

Plusieurs additions d'éléments chimiques ont été testées dans le passé (Cr, Ni, Mn, W, Nb, Si, Al etc.) mais l'addition de 2% de Vanadium dans l'alliage est de loin le plus favorable [16]. En effet, l'alliage $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$, connu sous « 2V Permendur », offre le meilleur compromis entre la dégradation des propriétés magnétiques, la facilité de fabrication et l'amélioration des propriétés mécaniques [1].

I.3.3 Relations empiriques magnéto-mécaniques des FeCo de base

Le processus d'aimantation des alliages ternaires $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$ obéit comme la plupart des matériaux polycristallins à la théorie de Weiss-Bloch c'est à dire au déplacement des parois de Bloch à 180 °C à l'approche de la saturation et à la rotation des domaines magnétiques (comme expliqué dans la section I.2.1). Les énergies d'anisotropie gênent l'instauration d'une structure en domaines simple, mobile qui demanderait de faibles champs magnétiques pour se mouvoir et atteindre facilement l'aimantation à saturation. Or, le processus d'aimantation est principalement contrôlé par ces énergies d'anisotropie. Dans les alliages ternaires $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$ seulement l'anisotropie de magnétostriction gouverne le processus d'aimantation car elle prédomine toutes les autres énergies d'anisotropie magnétiques. De ce fait, la perméabilité peut être phénoménologiquement reliée à l'anisotropie de magnétostriction comme suit :

$$\mu \approx \frac{p \cdot J_s}{\sqrt{\frac{3}{2} \lambda_s \cdot \sigma}} \quad (\text{I.12})$$

Avec p : constante ; μ : perméabilité ; J_s : polarisation à saturation ; le terme $3/2 \cdot \lambda_s \cdot \sigma$ correspond à l'anisotropie de magnétostriction où λ_s est proche à la valeur moyenne des coefficients λ_{100} et λ_{111} (équation (8.I)) et σ est la contrainte interne et/ou externe.

Il est connu et vérifié à plusieurs reprises [2], [16], [18], [21] qu'empiriquement le champ coercitif H_c est inversement proportionnel à la taille moyenne des grains. Il dépend aussi de la perméabilité et de la densité des précipités dans le matériau.

$$H_c \approx \frac{\alpha}{\mu} + \frac{b}{D} + c \cdot N \quad (\text{I.13})$$

Avec : α , b et c des constantes ; D la taille moyenne des grains et N la densité volumique de précipités ayant un diamètre distant de moins d'un ordre de grandeur vis-à-vis de l'épaisseur de la paroi de Bloch. La figure I-12.a présente l'évolution du champ coercitif en fonction de l'inverse de la taille moyenne des grains de l'alliage $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$.

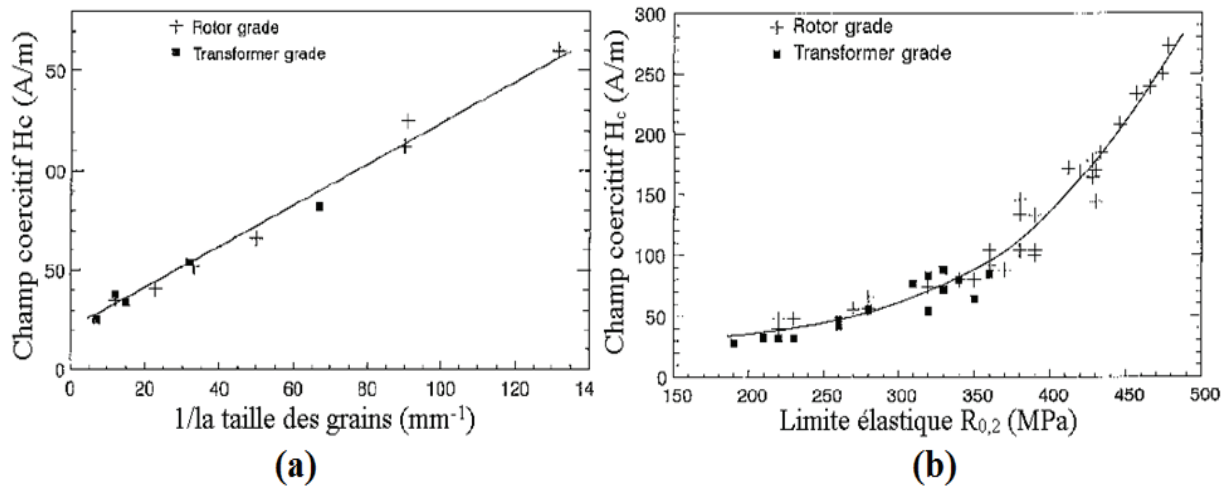


Figure I-12 (a) : Evolution du champ coercitif H_c en fonction de l'inverse de la taille des grains D . (b) : Evolution du champ coercitif H_c en fonction de la limite élastique $R_{0,2}$ [18], [21].

De la même façon la loi empirique Hall-Petch relie la limite élastique $R_{0,2}$ à la taille moyenne des grains comme suit :

$$R_{0,2} \approx \sigma_0 + \frac{k}{\sqrt{D}} \quad (\text{I.14})$$

Avec σ_0 : la contrainte de friction qui correspond à la résistance interne au mouvement de dislocations ; k : constante.

A partir des équations (I.13) et (I.14) on obtient une loi parabolique qui lie H_c et $R_{0,2}$ comme suit :

$$H_c - \left(c \cdot N + \frac{\alpha}{\mu}\right) \approx \frac{b}{k^2} \cdot (R_{0,2} - \sigma_0)^2 \quad (\text{I.15})$$

Cette loi est assez bien vérifiée par les matériaux magnétiques polycristallins notamment l'alliage $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$. La figure I-12.b présente la variation du champ coercitif H_c en fonction de la limite élastique $R_{0,2}$ de cet alliage.

L'équation (I.15) montre bien que les propriétés magnétique et mécanique ont des effets antagonistes (l'amélioration de $R_{0,2}$ dégrade le champ coercitif H_c). Malgré les efforts métallurgiques déployés, les alliages FeCo classiques ne dépassent pas les valeurs de 450-500 MPa en limite $R_{0,2}$. Ces efforts concernent [14] :

- La diminution de la densité de précipités N ,
- La réduction des contraintes σ internes et/ou externes intervenant dans la magnétostriction,
- L'optimisation de la taille des grains (optimum pour avoir une limite élastique $R_{0,2}$ élevée sans pour autant dégrader de beaucoup le champ coercitif H_c).

I.3.4 L'alliage industriel AFK502 d'Aperam Alloys Imphy

L'alliage AFK502 a la composition $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$. Il couvre une large gamme de limite élastique allant jusqu'à 1200 MPa [14], [18]. Diverses applications, telles que les génératrices

à grande vitesse, nécessitent un matériau qui résiste à la force centrifuge. Cela permet d'augmenter le couple massique en augmentant la vitesse de rotation.

Aperam Alloy Imphy a développé un nouveau processus de fabrication des alliages FeCo nommé High Strength Process (HSP) basé sur le recuit continu de recristallisation partielle. L'application de ce processus sur l'alliage $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$ laminé à froid, permet [14], [18]:

- Un recuit facilement contrôlé d'une large gamme de limites élastiques allant jusqu'à 1200 MPa,
- Une facilité du découpage, de l'estampage et de la perforation,
- La possibilité d'appliquer sur les pièces ainsi découpées un recuit statique pour une recristallisation complète afin d'améliorer les propriétés magnétiques (tôles du stator). En effet, le processus HSP est réversible.
- Un bon compromis entre pertes magnétiques et limites élastiques $R_{0.2}$.

I.3.4.1 Processus de fabrication des AFK502

Depuis des décennies, les fabricants délivrent aux clients des bandes de FeCo dans leurs états bruts de laminage, c'est le meilleur moyen pour faire de l'estampage des géométries. Un tel processus s'appelle : « semi-process ». En effet, après avoir été travaillée à chaud, trempée dans l'eau et subi un laminage à froid jusqu'à l'épaisseur finale, la bande reste ductile et permet toute déformation et découpage sans dommage. Le « semi-process » peut être suivi par plusieurs types de recuits :

- **Recuit statique (cristallisation complète) :**

Il est appliqué, pendant une longue durée à une température de désordre typiquement entre 720 et 880 °C (au-dessus de la Température order/disorder = 720 °C), aux parties découpées (ou bien perforées, poinçonnées,...), ou aux noyaux enroulés. Il produit une croissance des grains (qui améliore les propriétés magnétiques) et permet un bon contrôle de la vitesse de refroidissement et ainsi optimiser les propriétés magnétiques. Ce type de recuit ne permet pas de dépasser 550 MPa [18].

- **Recuit statique (cristallisation partielle : essai de Thornburg) :**

C'est un recuit statique de courte durée à une température de l'état ordonné du matériau typiquement entre 600 et 710 °C (juste au-dessous de la température order/disorder = 720 °C), suivi par un refroidissement rapide [22], [23]. Il permet d'augmenter la limite élastique jusqu'à 1000 MPa et présente une bonne ductilité. Cela correspond d'un point de vue métallurgique à une recristallisation partielle. Ce type de recuit ne peut pas être appliqué pour les processus industriels à cause de la haute inertie thermique. En effet, pour une grosse bobine enroulée de FeCo, l'inertie de recristallisation et le refroidissement n'affectent pas de la même manière le centre, l'intérieur et l'extérieur de la bobine, ce qui provoque des propriétés mécaniques et magnétiques hétérogènes le long de la bobine FeCo [18].

- **Recuit Continu (cristallisation partielle : High Strength Process) :**

Dans le recuit continu, la bande de FeCo est débobinée afin de pouvoir être glissée dans le four qui fait 10 mètres de longueur, à une vitesse de 0.1 à 5 m/min. Le recuit est fait à une

haute température de 820 °C (au-dessus de la température order/disorder = 720 °C) pendant 1 minute suivi d'un refroidissement rapide. Une large gamme de limites élastiques est obtenue (jusqu'à 1200 MPa) avec des pertes magnétiques significativement diminuées par rapport au Short Box Annealing (essai de Thornburg). Ce type de recuit permet un contrôle facile des propriétés mécanique et magnétique, nommé par Aperam Alloy « High Strength Processing » [18].

La figure I-13 montre la limite élastique en MPa en fonction des pertes magnétiques en W/kg à 400 Hz et à induction sinusoïdale imposée de 2 T pour les trois processus de recuit final pour le produit industriel AFK502.

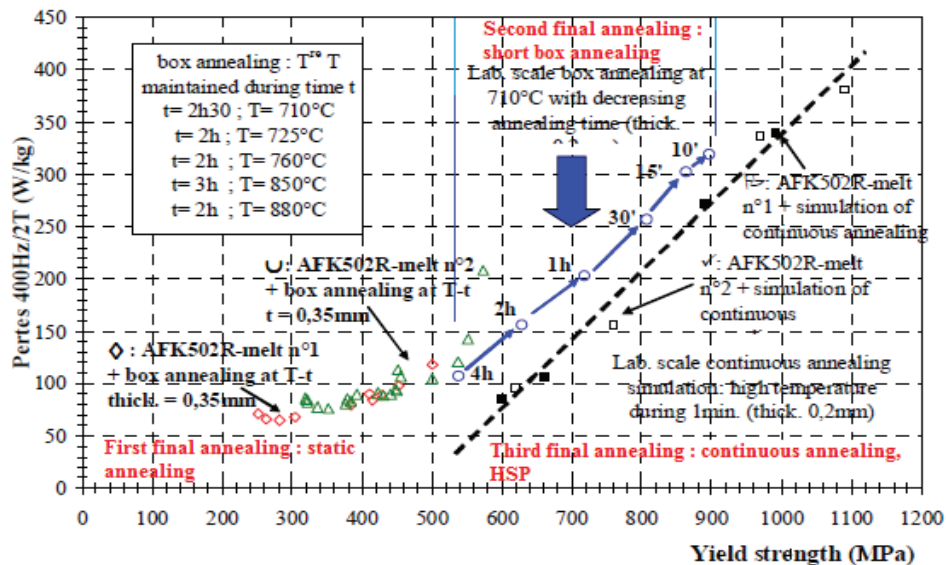


Figure I-13 Pertes totales mesurée à 400 Hz pour une induction sinusoïdale imposée de 2 T en fonction de la limite élastique pour les trois recuits finaux [18].

I.4 Alliages nanocristallins

Les alliages nanocristallins sont obtenus grâce à un recuit de cristallisation d'alliages amorphes. Cependant, avant de passer en revue les caractéristiques des alliages nanocristallins, il est important de s'arrêter un peu sur les alliages amorphes.

I.4.1 Bref aperçu sur les alliages amorphes

I.4.1.1 Rapide historique

Jusqu'en 1960, on croyait que le ferromagnétisme ne pouvait exister que dans les matériaux polycristallins c'est-à-dire dans les matériaux qui présentent un arrangement périodique des cristaux à grande distance (100 % de cristallisation). C'est à partir de 1960 que cette compréhension est remise en cause par la découverte du premier matériau amorphe doux à base de Fer [24]. En effet, les alliages amorphes ne présentent pas un arrangement atomique à grande distance mais plutôt un arrangement local à courte distance.

La découverte des alliages amorphes prouve que le ferromagnétisme se base plutôt sur les phénomènes se produisant à l'échelle locale notamment le déplacement de l'aimantation locale qui se produit à courte distance.

Le développement industriel des alliages amorphes n'a pu commencer qu'en 1971 et la commercialisation du premier amorphe sous le nom Metaglas 2826 ($\text{Fe}_{40}\text{Ni}_{40}\text{P}_{14}\text{B}_6$) de la société Allied Chemical a démarré en 1973 [9].

I.4.1.2 Elaboration des alliages amorphes

Les alliages amorphes sont, en fait, des verres métalliques qui se forment grâce à l'étape clé de refroidissement rapide de la solution liquide. La figure I-14 présente un diagramme température-temps-transformation illustrant différentes vitesses de refroidissement, notamment la vitesse de refroidissement critique V_c pour éviter la cristallisation.

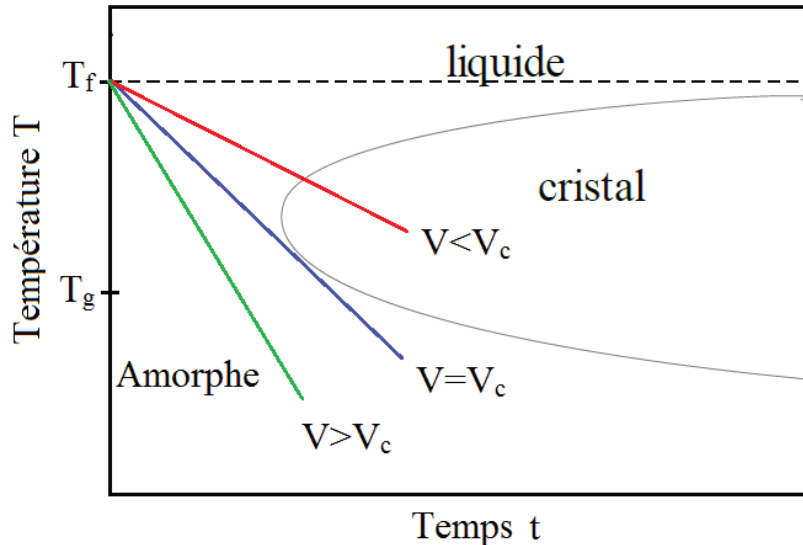


Figure I-14 Illustration de la vitesse de refroidissement sur le diagramme température-temps-transformation (T-T-T) par les droites en couleur. La vitesse de refroidissement critique V_c pour éviter la cristallisation est déterminée par rapport au « nez » de la zone de cristallisation [2], [25].

A partir de la température de fusion T_f , le refroidissement doit être suffisamment rapide ($V \geq V_c$) pour éviter la cristallisation et pour figer le désordre atomique que présente la configuration liquide ; autrement dit pour passer de l'état liquide à l'état vitreux. Cette transformation de phase se produit en dessous de la température de transition vitreuse T_g (glass temperature) [25].

La transformation vitreuse dépend principalement de la composition de l'alliage. Afin que cette transformation soit accessible à des vitesses de refroidissement acceptables, les alliages doivent contenir des éléments amorphisants tels que : le Silicium, le Bore, le Phosphore, etc. En effet, l'addition de tels éléments fait que la transformation vitreuse réduite définie par $T_{gr} = T_g/T_f$ augmente, le « nez » de la zone de cristallisation du diagramme TTT commence à des temps plus élevés et donc la vitesse de refroidissement critique V_c est diminuée [2].

Toutefois, pour obtenir des propriétés magnétiques intéressantes, il faut que les alliages amorphes contiennent au maximum environ 20 % des éléments amorphisants. Cette quantité correspond à une vitesse critique de refroidissement V_c de 10^6 K/s qui est abordable dans le contexte industriel de fabrication de masse.

Plusieurs techniques de refroidissement ultra-rapide existent. Les plus utilisées dans l'industrie sont le « melt spinning » et le « planar flow ». Ces deux techniques se basent sur la projection de l'alliage en fusion sur une roue froide tournant à une grande vitesse typiquement entre 20-40 m/s (la roue est fabriquée généralement en cuivre pour sa grande conductivité thermique). Au contact de cette dernière, le liquide en fusion se solidifie très rapidement (hypertrempe) et on obtient dans le cas du « melt spinning » un ruban continu de quelques mm de largeur. Dans le cas du « planar flow » cette largeur est contrôlable et peut atteindre environ 50 mm. Cela est possible grâce à une buse de fente dont la largeur est réglable, elle est placée très près de la roue tournante [2], [25]. La figure I-15 présente ces deux techniques de fabrication des rubans amorphes.



Figure I-15 Les techniques de fabrication des rubans amorphes : à gauche la technique «melt spinning » et à droite la technique « planar flow » [9], [25].

I.4.2 Elaboration des alliages nanocristallins

En 1988 Yoshizawa et son équipe ont découvert un nouvel alliage base-Fer présentant des propriétés magnétiques très douces [26]. Il s'agit de l'alliage aîné de la famille des nanocristallins Finemet ayant la composition : $\text{Fe}_{\text{Balance}}\text{Cu}_{0.5-1}\text{Nb}_{2-3}\text{Si}_{12-16}\text{B}_{6-9}$. Les alliages nanocristallins sont obtenus à partir des alliages amorphes, donc leur élaboration reprend la technologie de la trempe sur roue, ces alliages se présentent sous forme de rubans. Les alliages amorphes ainsi obtenus subissent un recuit de nanocristallisation dans la plage de température 500-600 °C pendant environ 1 heure. La figure I-16 présente un essai de DSC (Differential Scanning Calorimetry) sur un alliage amorphe FeCuNbSiB. Cet essai met en évidence la température de cristallisation de 540 °C par le pic exothermique du FeSi.

Les alliages nanocristallins se composent d'une phase cristalline sous forme de nano-grains (10-15 nm) répartis d'une manière homogène dans le reste de la structure amorphe (1-2 nm de séparation amorphe des nano-grains). Ils atteignent 70 % de phase cristalline contre le reste en phase amorphe très pauvre en Si. En effet, le Silicium initialement présent est diffusé en grande partie dans les nano-grains à l'issue du recuit de nanocristallisation.

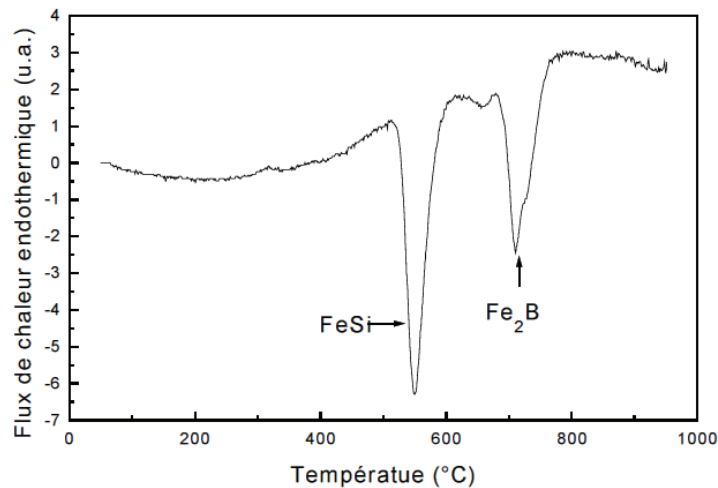


Figure I-16 Analyse thermique DSC : pics de cristallisation d'un alliage $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ [27].

La formation d'une microstructure avec une taille de grains d'environ 10-15 nm nécessite une grande vitesse de nucléation ainsi qu'une faible vitesse d'accroissement des grains. En effet, la cristallisation des alliages amorphes classiques qui ne contiennent pas d'éléments chimiques favorisant la nucléation et retardant la croissance des grains permet d'obtenir des grains de taille moyenne d'environ 0.1-1 μm ce qui dégrade, en conséquence, les propriétés magnétiques. Les alliages FeCuNbSiB doivent leur nanocristallisation au cuivre et au niobium qui jouent, respectivement, le rôle de nucléateur de nanocristaux et le rôle d'inhibiteur de la croissance des grains. Le cuivre avec sa caractéristique non miscible dans le fer se regroupe en clusters qui engendrent à leur tour des sur-concentrations locales de FeSi enclenchant ainsi la nucléation des cristaux. La nanostructure homogène obtenue dans ces matériaux ne serait pas possible sans l'intervention du niobium. En effet, le niobium avec sa caractéristique non miscible dans le fer et sa taille atomique large, empêche la croissance des grains et la formation des borures de Fer (Fe_2B et Fe_3B) connus pour leurs effets néfastes sur les propriétés magnétiques [2], [9], [28], [29]. Dépassant la température de 600 °C, les borures de fer apparaissent malgré la présence du Nb tel que le montre la figure I-16 par le pic exothermique du Fe_2B . La figure I-17 illustre le processus de nanocristallisation des alliages amorphes FeCuNbSiB.

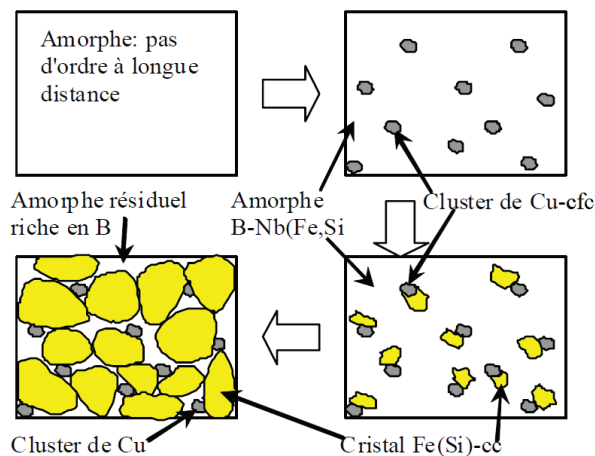


Figure I-17 Processus de nanocristallisation des alliages FeCuNbSiB [29].

I.4.3 Propriétés physiques et magnétiques de base

I.4.3.1 Température de Curie & aimantation à saturation

La figure I-18 présente l'évolution de la polarisation à saturation J_s en fonction de la température pour un alliage base-Fer : $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ à l'état amorphe (après hyper-trempe) et à l'état nanocristallin (après hyper-trempe + recuit d'une heure à 520 °C).

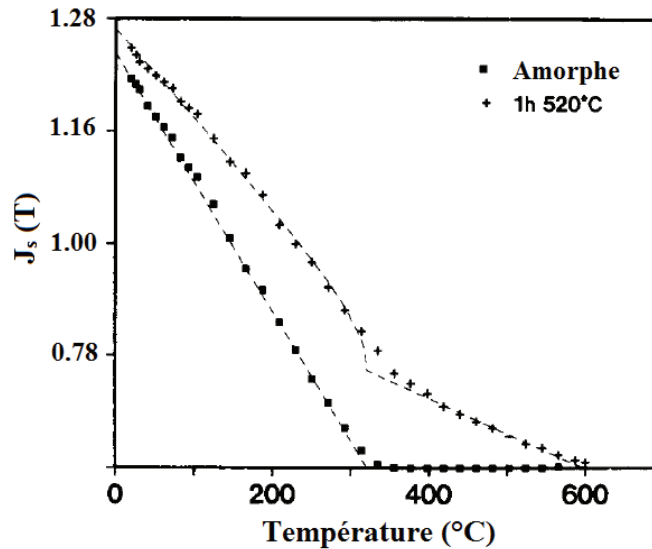


Figure I-18 Polarisation magnétique à saturation J_s en fonction de la température de mesure d'un alliage amorphe et nanocristallin ayant la composition : $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ [30].

La polarisation à saturation J_s de l'alliage $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ chute rapidement et d'une manière linéaire en fonction de la température. L'alliage à son état amorphe présente une diminution plus importante de J_s qu'à son état nanocristallin et il devient amagnétique au-delà de sa température de Curie amorphe $T_C^{\text{am}} \approx 320$ °C. L'alliage nanocristallin présente un changement de pente à T_C^{am} et devient amagnétique au-delà de sa température de Curie $T_C^{\text{FeSi}} \approx 600$ °C. Ce changement de pente est dû au fait qu'au-delà de T_C^{am} , seulement la phase cristalline FeSi contribue à l'aimantation globale dans le matériau. A la température ambiante, J_s est estimée à environ 1.21 T et 1.25 T pour les alliages amorphe et nanocristallin, respectivement.

I.4.3.2 Effet de la température sur les propriétés magnétiques de base

La figure I-19 présente les évolutions de la perméabilité initiale μ_i , du champ coercitif H_c , et du rapport de l'induction rémanente sur l'induction à saturation B_r/B_s en fonction de la température d'un nanocristallin $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ (recuit pendant 1 h à 540 °C + 4 h à 350 °C sous champ magnétique transversal). Les mesures sont faites à 50 Hz.

Tout comme pour J_s , le reste des propriétés magnétiques dépendent des deux températures de Curie T_C^{am} et T_C^{FeSi} . D'après la figure I-19, on remarque que les propriétés magnétiques se dégradent considérablement lorsque la température se rapproche de T_C^{am} . La perméabilité μ_i chute, le champ H_c et le rapport B_r/B_s augmentent (le cycle d'hystérésis devient carré). Au-delà de T_C^{FeSi} toutes ces propriétés magnétiques s'évanouissent.

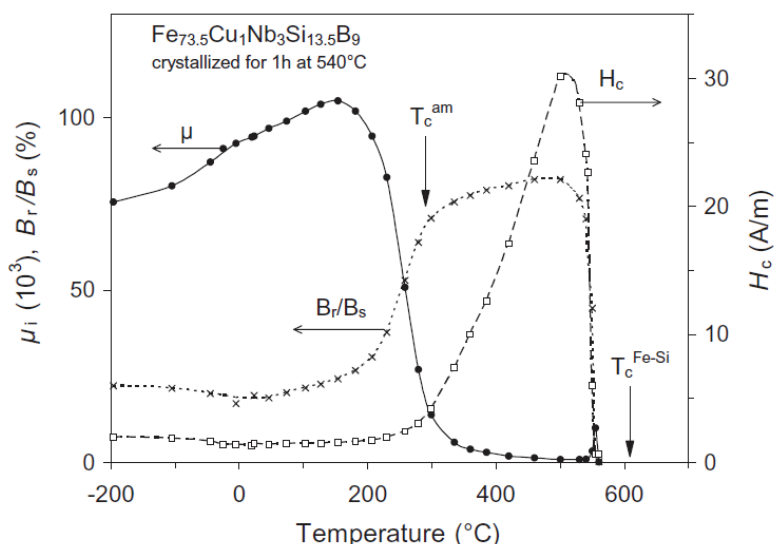


Figure I-19 Perméabilité initiale μ_i , champ coercitif H_c et rapport B_r/B_s d'un nanocristallin $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$ en fonction de la température de mesure. L'échantillon a été nanocristallisé à 540 °C pour 1 h puis recuit sous champ transverse à 350 °C pendant 4 h (induction de $K_u \approx 6 \text{ J/m}^3$) [2], [28].

L'une des explications les plus plausibles de ces dégradations est liée à la diminution de l'énergie d'échange A (Voir section I.2.2.1). En effet, en se rapprochant de T_c^{am} cette dernière diminue et s'annule complètement à T_c^{FeSi} . Ce comportement de l'énergie d'échange A est justifié par l'équation (I.3). En effet, l'énergie d'échange A diminue à cause de la diminution de l'induction à saturation en fonction de la température (voir figure I-18). La phase amorphe résiduelle assure la continuité du magnétisme dans le matériau nanocristallin autrement dit : elle assure le couplage d'échange entre les grains FeSi. Cependant, dépassant T_c^{am} , cette continuité sera rompue et la phase amorphe résiduelle jouera le rôle d'entrefers partiels entre les nano-grains FeSi.

I.4.3.3 Evolution de la résistivité pendant le processus de nanocristallisation

La figure I-20.a présente l'évolution de la résistivité ρ en fonction de la fraction cristallisée f_x .

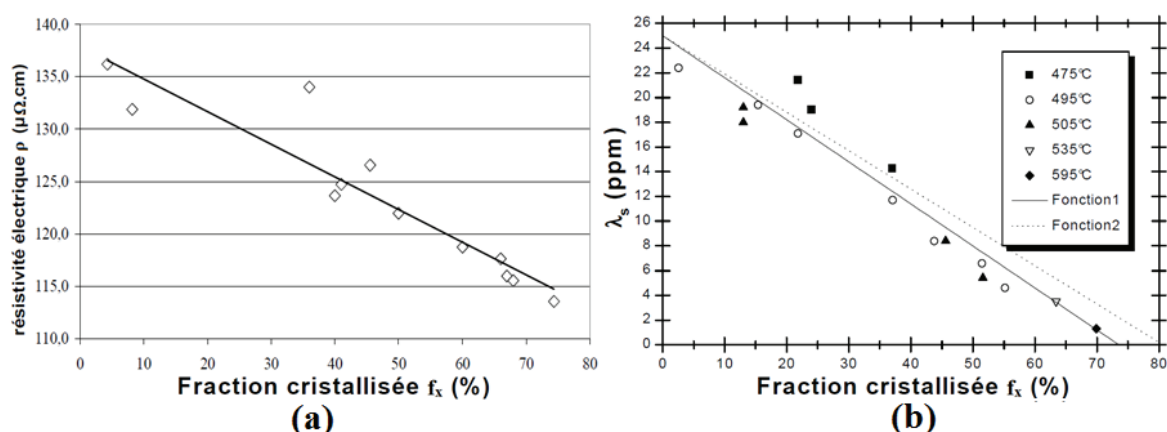


Figure I-20 Variations de la résistivité ρ et de la constante d'anisotropie λ_s en fonction de la fraction cristallisée f_x [29].

La résistivité ρ diminue en fonction de la fraction cristallisée f_x . Cela est tout à fait normal étant donné l'augmentation du degré d'ordre pendant le processus de nanocristallisation. La

résistivité passe d'environ $137 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ à l'état amorphe à environ $115 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ à l'état nanocristallin ($f_x \approx 75 \%$).

I.4.3.4 Evolution de la constante de magnétostriction à saturation λ_s pendant le processus de nanocristallisation

La figure I-20.b présente l'évolution de la constante λ_s en fonction de la fraction cristallisée pour plusieurs températures de recuit.

D'après cette figure la magnétostriction diminue linéairement en fonction f_x et tend vers une valeur proche de zéro lorsque le processus atteint 70 à 80 % de nanocristallisation. L'évanouissement de λ_s dépend de la composition. En effet, G. Herzer dans [31] démontre que, pour une composition de matériau nanocristallin FeCuNbSiB avec une teneur en Silicium d'environ 15 at% et qui subit un recuit sans champ de 540°C pendant 1 heure possède une valeur de la constante λ_s proche de zéro.

I.4.4 Les différents recuits de nanocristallisation : les énergies d'anisotropies

Les alliages nanocristallins Nanophy commercialisés par la société Aperam Alloys Amilly de composition $\text{Fe}_{74.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_{6.5}$ révèlent d'excellentes propriétés magnétiques grâce à l'évanouissement des énergies d'anisotropies (l'énergie d'anisotropie magnétoélastique presque nulle (évanouissement de λ_s) et l'énergie d'anisotropie magnétocristalline très faible comme cela va être expliqué ci-après grâce au modèle d'anisotropie aléatoire) [2], [9], [28]. L'évanouissement des énergies d'anisotropies est aussi important afin de pouvoir introduire efficacement une anisotropie macroscopique uniforme (recuit sous champ et sous contraintes mécaniques).

Selon le type de recuit que les nanocristallins subissent, une énergie d'anisotropie domine sur les autres et impose une forme particulière au cycle d'hystérésis. L'énergie d'anisotropie aléatoire $\langle E_{kl} \rangle$ domine dans les matériaux recuits sans champ magnétique (cycle rond : R) ; l'énergie d'anisotropie induite uniforme E_{Ku} domine quand les matériaux sont recuits sous champ transversal (cycle linéaire : F1) ou longitudinal (cycle carré : Z) ; l'énergie d'anisotropie magnétoélastique induite $E_{u\sigma}$ domine lorsque un recuit sous contraintes mécanique est appliqué (cycle très linéaire : F2).

La figure I-21 présente une illustration de cycles d'hystérésis quasi-statiques d'un même matériau nanocristallin ayant subi ces quatre modes de recuit.

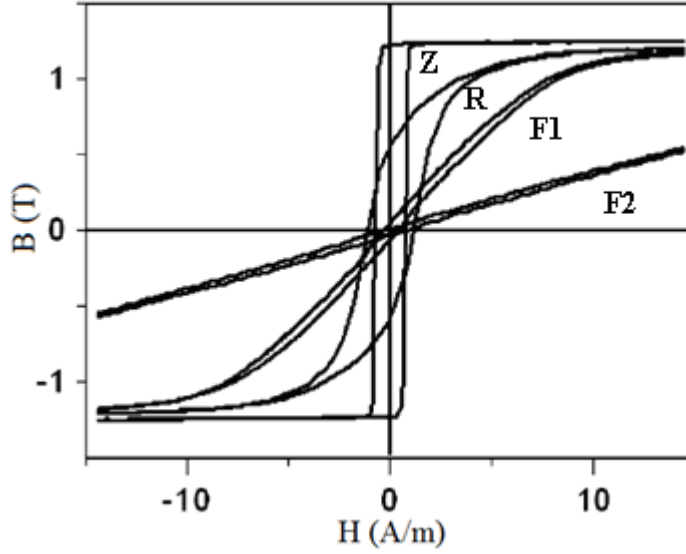


Figure I-21 Cycles d'hystérésis en quasi-statique d'un nanocristallin recuit selon plusieurs types de recuit. Cycle R : recuit sans champ ; Cycle Z : recuit sous champ longitudinal ou sous traction induisant une anisotropie négative ; Cycle F1 : recuit sous champ transversal ; Cycle F2 : recuit sous traction induisant une anisotropie positive.

I.4.4.1 Recuit sans champ magnétique et sous champ magnétique transversal : Modèle d'anisotropie aléatoire (Random Anisotropy Model)

La conséquence la plus importante de la réduction de la taille des grains à l'échelle nanométrique est que la longueur d'échange L_0 (épaisseur de paroi de Bloch) devient plus grande que la taille moyenne des nano-grains D .

$$L_0 = c_1 \cdot \sqrt{A/K_1} \quad (\text{I.16})$$

Où c_1 est un facteur de proportion de l'ordre de 1, A est la constante d'échange et K_1 est la constante d'anisotropie magnétocristalline. De façon approximative, la longueur d'échange (paroi de Bloch) est trois fois plus grande que la taille des grains dans le cas des nano-grains FeSi. Cependant, le déplacement des parois de Bloch par rotation progressive de direction de facile aimantation entre chaque grain (domaine magnétique) n'est plus possible. Autrement dit, l'aimantation ne peut pas suivre des orientations aléatoires des directions de facile aimantation locales dans une échelle plus petite que celle de L_0 . Donc l'aimantation n'est plus sensible à l'anisotropie magnétocristalline. Elle est plutôt sensible aux fluctuations de l'anisotropie magnétocristalline d'un nombre N très important de nano-grains dont les directions de facile aimantation sont orientées d'une manière très aléatoire. C'est le modèle de l'anisotropie aléatoire (Random Anisotropy Model, RAM) présenté par G. Herzer pour les nanocristallins en 1990 [32].

La constante d'anisotropie magnétocristalline aléatoire s'écrit, selon l'équation :

$$\langle K_1 \rangle = K_1 / \sqrt{N} \quad (\text{I.17})$$

Selon le modèle RAM, il devient plus cohérent de considérer une longueur d'échange normalisée beaucoup grande que L_0 :

$$L_{ex} = c_1 \cdot \sqrt{A / \langle K_1 \rangle} \quad (\text{I.18})$$

Avec $\langle K_1 \rangle$ la constante d'anisotropie magnétocristalline aléatoire nettement petite par rapport à K_1 . Le nombre de nano-grains N s'exprime en fonction de la taille moyenne des grains D comme suit :

$$N = (L_{ex}/D)^3 \quad (I.19)$$

La figure I-22 présente une illustration du modèle d'anisotropie aléatoire avec les paramètres associés.

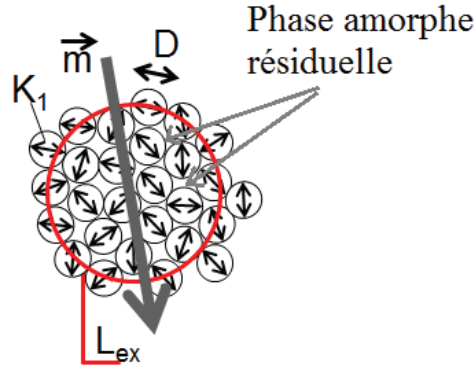


Figure I-22 Illustration du modèle d'anisotropie aléatoire pour des nano-grains intégrés dans le reste de la phase amorphe.

L'explication donnée ci-dessus est basée sur le fait que l'énergie magnétocristalline aléatoire est dominante. C'est typiquement le cas des nanocristallins hautes perméabilités qui ont subi un recuit sans champ magnétique (cycle d'hystérésis type R : voir figure I-21).

Afin de réduire la perméabilité, les métallurgistes utilisent la technique du recuit sous champ transversal (maximum de réduction atteint par cette technique est d'environ 20000 [29]). Le but de ce recuit est d'induire une énergie d'anisotropie E_{Ku} uniformément répartie dans le sens transverse de la circulation du flux magnétique (cycle d'hystérésis type F1 : voir figure I-21). Cependant, l'énergie d'anisotropie totale sera la contribution d'une grande partie de l'énergie E_{Ku} et d'une petite partie de $\langle E_{K1} \rangle$ (qui peut être négligeable). La constante d'anisotropie totale $\langle K \rangle$ est approximée comme suit [33]:

$$\langle K \rangle \approx \sqrt{K_u^2 + \beta^2 \cdot \langle K_1 \rangle^2} \quad (I.20)$$

Le paramètre β correspond à 1 si les grains ont une symétrie uniaxiale ou à 0.4 si les grains ont une symétrie cubique (voir section I.2.2.2.1) ; K_u représente la constante d'anisotropie uniforme induite sous champ. De même, la longueur d'échange normalisée s'exprimera en fonction de $\langle K \rangle$ comme suit:

$$L_{ex} = c_1 \cdot \sqrt{A/\langle K \rangle} \quad (I.21)$$

La résolution des équations (I.19), (I.20) et (I.21) pour déterminer $\langle K \rangle$ est très délicate et donne une solution très compliquée [34]. Le problème est contourné en cherchant les conditions aux limites selon le fait que K_u domine ou non. L'équation (22.I) présente la solution selon les deux conditions [10]:

$$\begin{cases} a : \langle K \rangle \approx \langle K_1 \rangle = K_1 \cdot f_x^2 \cdot (D/L_0)^6 & \text{Quand } K_u = 0 \\ b : \langle K \rangle \approx K_u + \frac{1}{2} \cdot f_x \cdot \sqrt{\beta \cdot K_1 \cdot K_u} \cdot (D/L_0)^3 & \text{Quand } K_u \gg \langle K_1 \rangle \end{cases} \quad (I.22)$$

Où f_x correspond à la fraction cristallisée. Le second terme de l'équation (I.22-b) correspond à $\langle K_1 \rangle$. L'équation (I.22) montre bien que la dépendance de $\langle K_1 \rangle$ de la taille des grains passe d'une loi en D^6 à une loi en D^3 quand K_u est dominante. Ainsi, les nanocristallins recuits sans champ où l'énergie $\langle E_{K1} \rangle$ est dominante suivent la loi en D^6 et les nanocristallins où l'énergie E_{Ku} est dominante suivent la loi en D^3 .

I.4.4.2 Recuit sous contraintes mécaniques : énergie d'anisotropie magnéto-élastique induite uniforme

Le recuit de nanocristallisation sous contraintes mécaniques a été proposé pour la première fois dans les années 90 comme une autre alternative pour produire des nanocristallins de basses perméabilités [35]–[37]. C'est un recuit statique qui induit dans le matériau une anisotropie magnétoélastique uniforme $K_{u\sigma}$. Cette dernière est supposée être localisée dans les grains sous forme d'énergie magnétoélastique $E_{Ku\sigma}$ stockée sous l'effet « back stress » exercé par la phase amorphe. Cela a été démontré implicitement par Herzer [13], [31] par le fait que l'énergie $E_{Ku\sigma}$ normalisée par rapport à la fraction cristallisée f_x croît avec l'augmentation du %Si alors que l'énergie d'anisotropie normalisée E_{Ku}/f_x (anisotropie induite par champ transversal) décroît avec l'augmentation du %Si. L'anisotropie $K_{u\sigma}$ est, cependant, fonction de f_x et de la constante de magnétostriction à saturation de la phase FeSi λ_s^{FeSi} comme suit :

$$K_{u\sigma} = -\frac{3}{2} \cdot f_x \cdot \lambda_s^{\text{FeSi}} \cdot \sigma \quad (I.23)$$

Selon la composition de l'alliage, l'anisotropie $K_{u\sigma}$ peut être positive ou négative [2], [13], [35]. L'étude de recuit sous contraintes axiales faite dans [35] sur trois types d'alliages différents Finemet ($\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$), Hitperm ($\text{Fe}_{44}\text{Co}_{44}\text{Zr}_7\text{B}_4\text{Cu}_1$) et Nanoperm ($\text{Fe}_{84.5}\text{Zr}_2\text{Nb}_4\text{B}_{8.5}\text{Cu}_1$), présente une anisotropie $K_{u\sigma}$ positive pour le Finemet et négative pour les deux autres alliages. Si $K_{u\sigma} < 0$, l'énergie magnétoélastique $E_{Ku\sigma}$ sera stockée dans le sens longitudinal par rapport au sens de l'application des contraintes durant le recuit ce qui augmentera la perméabilité (cycle d'hystérésis Z voir figure I-21). Si $K_{u\sigma} > 0$, l'énergie magnétoélastique $E_{Ku\sigma}$ sera stockée dans le sens transversal par rapport au sens de l'application des contraintes durant le recuit ce qui diminuera la perméabilité (cycle d'hystérésis F2 voir figure I-21).

Les nanocristallins Nanophy avec la composition $\text{Fe}_{74.1}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_{6.5}$ qui sont recuits sous traction présentent une anisotropie magnétoélastique positive. La valeur de cette anisotropie est proportionnelle à la contrainte appliquée durant le recuit σ .

Par ailleurs, la perméabilité relative μ_r varie inversement proportionnellement à l'anisotropie induite $K_{u\sigma}$ comme suit [13], [29], [38] :

$$\mu_r = \frac{B_s^2}{2\mu_0} \cdot \frac{1}{K_{u\sigma}} \quad (I.24)$$

Avec $K_{u\sigma}$ positive ($\lambda_s^{\text{FeSi}} \approx -7$ ppm pour $f_x \approx 75$ %), B_s : l'induction à saturation et μ_0 la perméabilité du vide.

La figure I-23 présente en (a) l'évolution de $K_{u\sigma}$ en fonction σ appliquée durant plusieurs recuits de l'alliage $\text{Fe}_{74.3}\text{Cu}_1\text{Nb}_{2.7}\text{Si}_{15.5}\text{B}_{6.5}$ est en (b) la variation de la perméabilité μ_r en fonction de la contrainte σ (la validation expérimentale de l'équation (I.24))

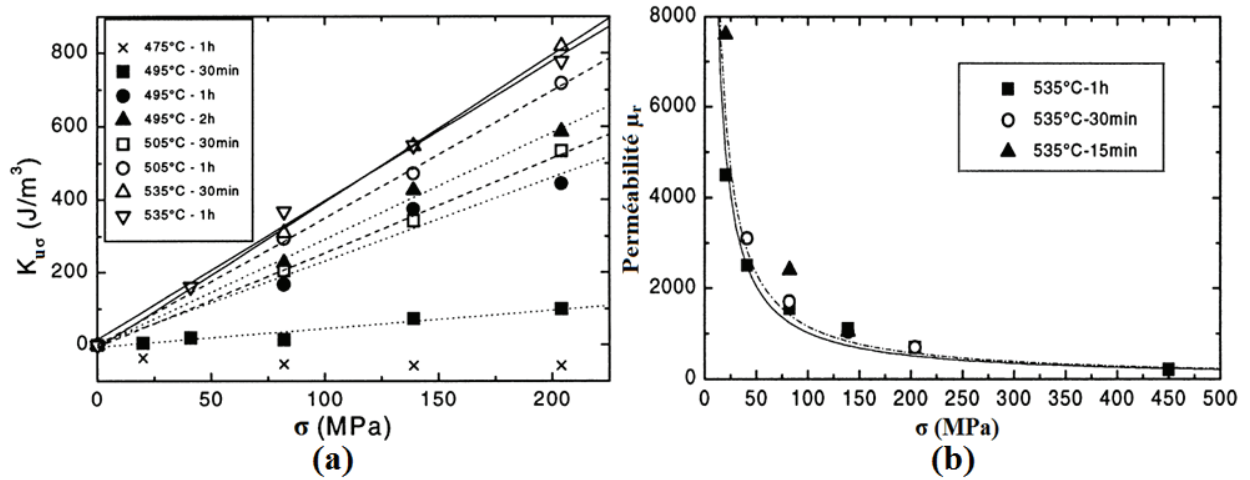


Figure I-23 Evolutions de l'anisotropie macroscopique $K_{u\sigma}$ et de la perméabilité μ_r en fonction de la contrainte appliquée σ pour plusieurs temps et/ou températures de recuit [13].

Comme expliqué précédemment, l'efficacité des recuits qui induisent des anisotropies macroscopiques uniformes dépend de l'évanouissement des constantes d'anisotropie initialement présentes dans les alliages amorphes. On parle de la constante d'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$ et de la constante de magnétostriction à saturation λ_s . La structure nanocristalline ($f_x \approx 70\text{-}80\%$) garantit l'évanescence de $\langle K_1 \rangle$ (environ 1 J/m^3) mais ne garantit pas forcément l'évanouissement de λ_s . Cette dernière dépend de la composition chimique de l'alliage. La figure I-24 présente l'évolution de λ_s et de $-K_{u\sigma}$ normalisée par rapport à σ en fonction de la teneur en Si (at%) dans un alliage base-Fer $\text{Fe}_{\text{bal}}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_x\text{B}_{z-x}$.

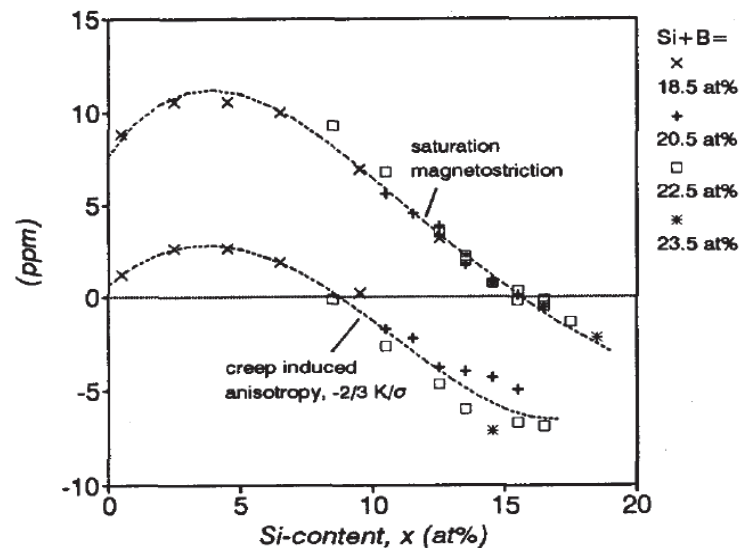


Figure I-24 Evolutions la constante d'anisotropie λ_s et du paramètre d'anisotropie induite $k = -2/3 \times K_{u\sigma} / \sigma$ en fonction de la teneur x en Si dans l'alliage $\text{Fe}_{\text{bal}}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_x\text{B}_{z-x}$ [31].

La figure I-24 montre bien qu'un maximum d'induction de $K_{u\sigma}$ est obtenu pour des valeurs de λ_s presque nulles. Cela correspond à environ 15-16 at% de Si d'où la composition des alliages Nanophy d'Aperam Alloys Amilly.

- **Le recuit sous traction mécanique au défilé**

Le recuit sous traction au défilé a été développé pour la production industrielle de masse. Il a été introduit pour la première fois sous le nom de recuit flash [13], [38]. Il permet d'atteindre à l'échelle industrielle des valeurs très importantes de $K_{u\sigma}$: plus de 3000 J/m³ dans le cas des nanocristallins Finement et Nanophy. Dans ce processus, les rubans amorphes défilent sous contraintes le long d'un four continu avec une vitesse de recuit aux alentours de 100 m/min ce qui correspond à un temps de recuit de seulement quelques secondes. La contrainte mécanique peut varier de zéro à quelques centaines de MPa. Afin d'atteindre des fractions cristallisées entre 70 et 80 %, la température de recuit doit être maintenue entre 600 et 700 °C, soit 100 °C de plus par rapport aux recuits statiques sous contraintes de traction [2], [13], [38].

I.5 Vieillissement des matériaux magnétiques

La bibliographie sur le vieillissement des matériaux magnétiques est très modeste. Nous avons pu voir que les matériaux magnétiques vieillissent selon leurs types et leurs conditions d'utilisation. Nous limitons l'état de l'art au vieillissement des deux types de matériaux magnétiques : polycristallins et nanocristallins.

I.5.1 Vieillissement des matériaux polycristallins

Dans [39], le vieillissement thermique sous atmosphère sec (pas d'humidité dans les fours) des tôles FeSi à 210 °C pendant 30 heures a causé une augmentation de 13 % et une diminution de 10 % des pertes, respectivement de la perméabilité maximale comme le montre la figure I-25 (a) et (b).

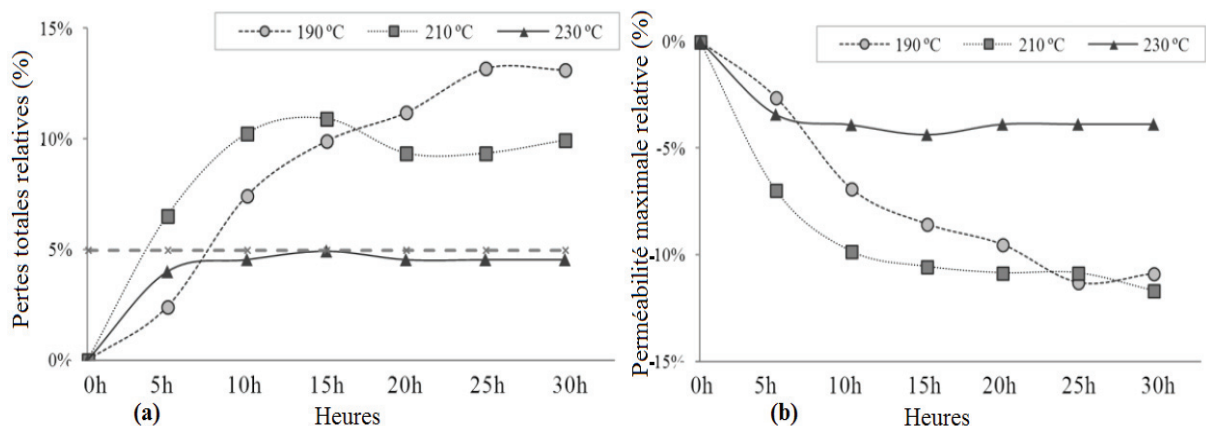


Figure I-25 Evolution relative des pertes totales (a) et de la perméabilité maximale (b) d'un matériau FeSi en fonction du temps de vieillissement et des trois températures 190, 210 et 230 °C. Les mesures sont faites à induction sinusoïdale imposée de 1 T à 60 Hz [39].

Un autre vieillissement thermique a été effectué dans [40] sur un alliage contenant de l'Aluminium et du Silicium pendant 600 heures à 210 °C. La figure I-26 montre une augmentation relative de 40% des pertes totales magnétiques.

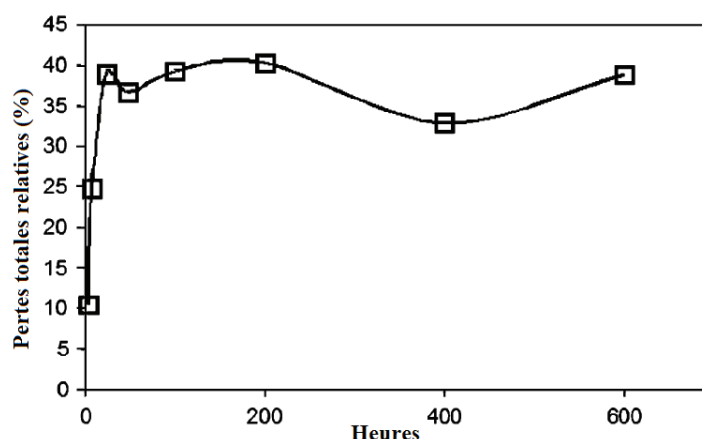


Figure I-26 : Evolution relative des pertes totales d'un matériau à base d'AlSi en fonction du vieillissement thermique à 210 °C. Les mesures sont faites à induction imposée sinusoïdale de 1 T à 60 Hz [40].

La société Aperam a effectué dans le passé (1960) [41], un vieillissement accéléré sur le Fer-Nickel (FERIMPHY) pour plusieurs températures (100, 200, 300, 400, et 500 °C) pendant 4 heures. Une dégradation significative des propriétés magnétiques a été observée pour les températures 200°C et 500 °C (tableau I-2).

Températures	Propriétés magnétiques	Avant vieillissement	Après vieillissement
500 °C	Perméabilité maximale	9440	4900
	Champ coercitif	56 A/m	60 A/m
	Induction à 20 Oe	1.59 T	1.5 T
200°C	Perméabilité maximale	9440	6870
	Champ coercitif	56 A/m	96 A/m

Tableau I-2 Propriétés magnétiques du FeNi (Ferimphy) avant et après 4 heures de vieillissement à 200 et 500°C. Copiée de [41].

Récemment, la société Aperam a effectué un essai de vieillissement sur l'alliage AFK502 standards et HLE à 200 °C pendant 600 heures [18]. Le vieillissement n'a pas été observé sur toutes les nuances de cet alliage et cela est dû probablement à la courte durée de vieillissement imposée (600 heures). Il est très important dans le cadre de cette thèse, de refaire cet essai mais sur une période beaucoup plus longue (supérieure à 600 heures).

I.5.1.1 Influence de la quantité de Carbone sur le vieillissement des matériaux magnétiques

La fabrication des matériaux magnétiques passe par une étape très importante qui est le durcissement (de l'état liquide à l'état solide). Il est expliqué dans [1] que, lors du durcissement, il résulte des impuretés résiduelles telles que : le carbone, l'oxygène, et l'azote (nitrogen en anglais) avec des taux dépendants de la température de durcissement. La

figure I-27 (a) présente les taux de ces impuretés dans le fer selon la température de durcissement.

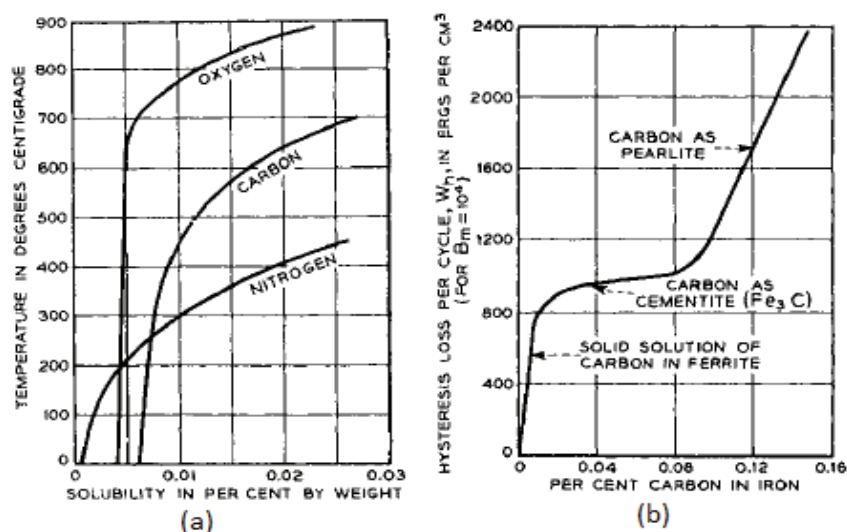


Figure I-27 Taux d'impuretés en fonction de la température (a). Pertes hystérésis en fonction du taux de Carbone dans le Fer (b) [1].

Le traitement thermique des fabricants ou consommateur après l'étape du « Semi-Process », est très important pour l'amélioration des propriétés magnétiques (croissance des grains) et mécaniques. On obtient une diminution de la teneur de carbone à l'aide du traitement thermique de décarburation [39], [40]. Les alliages AFK502 ont subi ce genre de traitement pour diminuer ces impuretés [18]. La présence de plus de 0.04 % (400 ppm) de carbone à l'état solide dans un alliage donné diminue considérablement les propriétés magnétiques [1], [39]. La figure I-27 (b) montre l'augmentation des pertes magnétiques en fonction de la teneur de carbone dans le fer.

Dans [39] et [40], le vieillissement est associé, principalement, à la précipitation du carbone autour des grains cristallins, empêchant ainsi le mouvement des parois de Bloch. Ce phénomène augmente le champ coercitif et, en conséquence conduit à une augmentation des pertes magnétiques. Des mesures du taux du carbone (solide) en ppm, dans [40], au cours du vieillissement, viennent appuyer ce phénomène. Le tableau I-3 donne les teneurs en carbone et azote (ppm) dans l'alliage à base d'aluminium silicium traité dans [40] à 210°C pendant 24 heures.

D'après ce tableau, la teneur interstitielle en carbone diminue à cause de la précipitation du carbone pour former des carbures de fer (Fe₃C).

vieillissement	Teneur totale en carbone	Teneur interstitielle en carbone	Teneur totale en azote	Teneur interstitielle en azote
Avant	30	13.6	34	1.7
Après	30	3.9	34	1.6

Tableau I-3 Taux de Carbone et Azote en ppm, avant et après 24 heures de vieillissement à 210 °C. Les mesures sont obtenues par le test de Friction Intérieur [40].

Une autre étude de vieillissement faite dans [42] sur des tôles électriques (la composition chimique n'est pas indiquée) montre, également, l'influence de la teneur en Carbone sur la dégradation des propriétés magnétiques. Grâce à différents cycles de décarburation, 6 échantillons de différentes teneurs en Carbone sont obtenus. Ces derniers ont subi un traitement de vieillissement thermique à 225 °C pendant 24 heures. La figure I-28 présente la variation du champ coercitif H_c en fonction du taux de Carbone avant et après 24 heures de vieillissement à 225 °C.

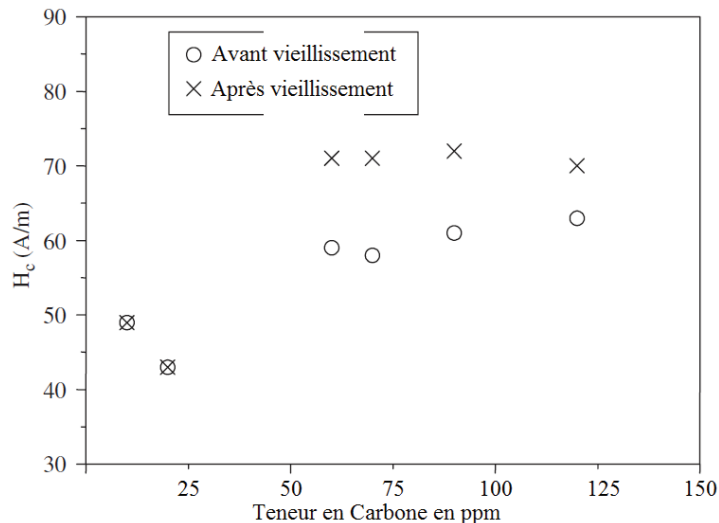


Figure I-28 Variation du champ coercitif H_c en fonction de la teneur en Carbone avant et après 24 heures de vieillissement à 225 °C [42].

La figure I-28 montre que les dégradations magnétiques ne concernent que les échantillons ayant une teneur en Carbone supérieure à 20 ppm. Selon [42], le vieillissement thermique a provoqué la formation de carbures de Fer (Cémentites : Fe_3C). De plus, la dimension de ces carbures de Fer peut être comparable à la largeur des parois de Bloch. Cependant, les interactions des parois de Bloch avec ces carbures de Fer augmentent ce qui engendre l'augmentation de H_c et des pertes magnétiques.

I.5.1.2 Evolution des pertes magnétiques en fonction du vieillissement

Il a été constaté dans [39] et [40] que seulement les pertes par hystérésis sont influencées par le vieillissement. En effet, la décomposition des pertes totales selon Bertotti à chaque point de vieillissement montre bien ce constat. Les pertes par courants de Foucault (pertes classiques) ne varient pas car la résistivité ne varie pas en fonction des vieillissements traités. En effet, en se rapportant à l'équation (I.11), les pertes par courant de Foucault sont liées à la résistivité. La figure I-29 montre l'évolution de ces pertes en fonction du temps de vieillissement dans le cas du matériau FeSi (a) et du matériau à base d'AlSi (b).

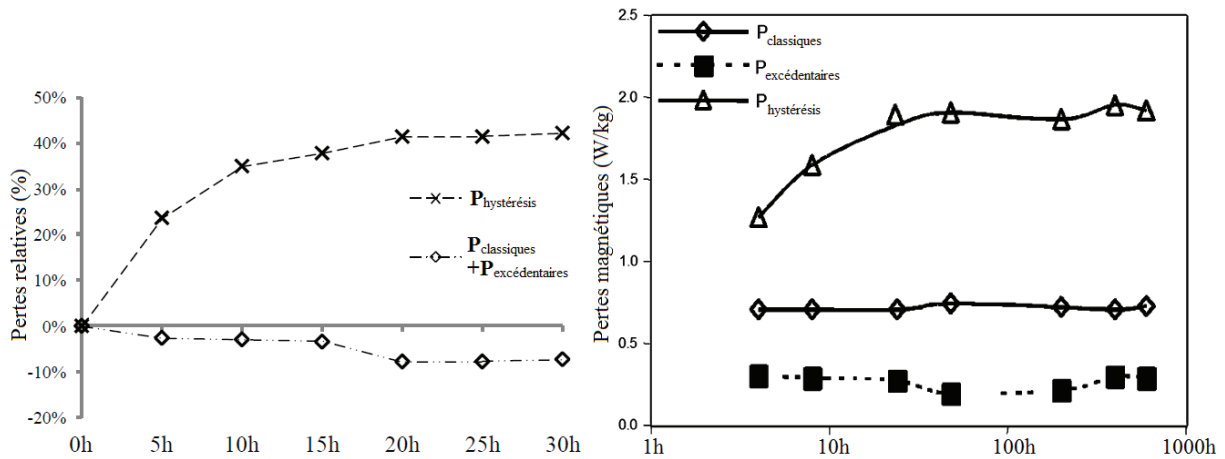


Figure I-29 Evolution des pertes hystérésis, excédentaires et classiques en fonction du vieillissement à 210 °C. (a) vieillissement du matériau FeSi [39] ; (b) vieillissement du matériau à base d'AlSi [40].

La décomposition des pertes dans [42] montre bien que le taux de carbone dans le matériau impacte seulement les pertes hystérésis après vieillissement (24 h/210 °C). Les pertes classiques et excédentaires ne varient pas après ce traitement de vieillissement. Cependant, la formation des carbures de Fer après vieillissement n'influe pas sur la résistivité et, également, sur l'amplification des courants induits locaux harmoniques (sources des pertes excédentaires). La figure I-30 présente la décomposition des pertes en fonction du taux de carbone dans le matériau base AlSi avant et après 24 heures de vieillissement à 210 °C.

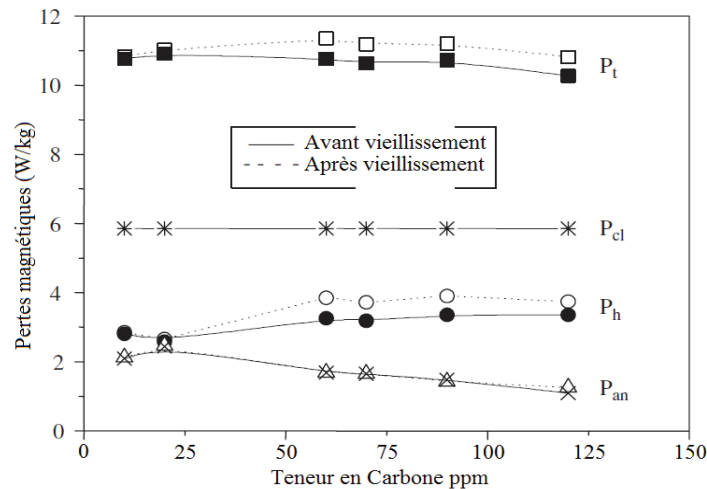


Figure I-30 Décomposition des pertes totales en fonction du taux de Carbone dans le matériau base AlSi avant et après 24 heures de vieillissement à 210 °C [42].

I.5.2 Vieillissement des matériaux nanocristallins FeCuNbSiB

Selon [28], [43], le vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins est lié, principalement, à la formation ou à la réorientation de l'anisotropie magnétique prédominante selon les directions locales d'aimantation. Selon [43], cette formation et/ou réorientation d'anisotropie est causée par l'activation thermique de la diffusion à courte distance. De plus, quelle que soit la nuance des échantillons nanocristallins (haute ou moyenne perméabilité), cette diffusion à courte distance obéit à une même loi thermodynamique (type Arrhenius) et à une même cinétique.

Selon le type de matériaux nanocristallins (haute, moyenne et basse perméabilité), le comportement du vieillissement change. Le vieillissement thermique des nanocristallins de hautes perméabilités présente beaucoup plus de dégradations des propriétés magnétiques que celui des matériaux de moyennes perméabilités [28], [43], [44]. La raison est liée au fait que, pendant le vieillissement, il y a eu formation d'une anisotropie uniforme locale K_u^{loc} . Cette dernière s'instaure autour des domaines magnétiques et empêche le déplacement des parois de Bloch [43]. Dans le cas des nanocristallins de moyennes perméabilités, l'anisotropie induite uniforme K_u est fortement induite durant le recuit sous champ transversal pour que le vieillissement puisse la détruire en instaurant l'anisotropie K_u^{loc} .

Le comportement du vieillissement des nanocristallins dépend aussi des conditions d'aimantation durant le traitement de vieillissement [28]. Dans le cas du vieillissement des matériaux de moyennes perméabilités sollicités par un champ magnétique faible (l'aimantation atteint le point de rémanence), l'aimantation est alignée parallèlement à l'axe de l'anisotropie K_u . Cependant, durant le vieillissement thermique, l'amplitude de l'anisotropie K_u augmente et la perméabilité diminue (voir figure I-31). Leur vieillissement sous un champ magnétique élevé (l'aimantation atteint sa valeur à saturation), induit une anisotropie longitudinale qui réduit l'anisotropie K_u transversale. En conséquence, leur perméabilité augmente comme on peut le voir sur la figure I-31 qui présente l'évolution relative de la perméabilité initiale en fonction du vieillissement à 120 °C, pour un vieillissement à saturation et un vieillissement à rémanence.

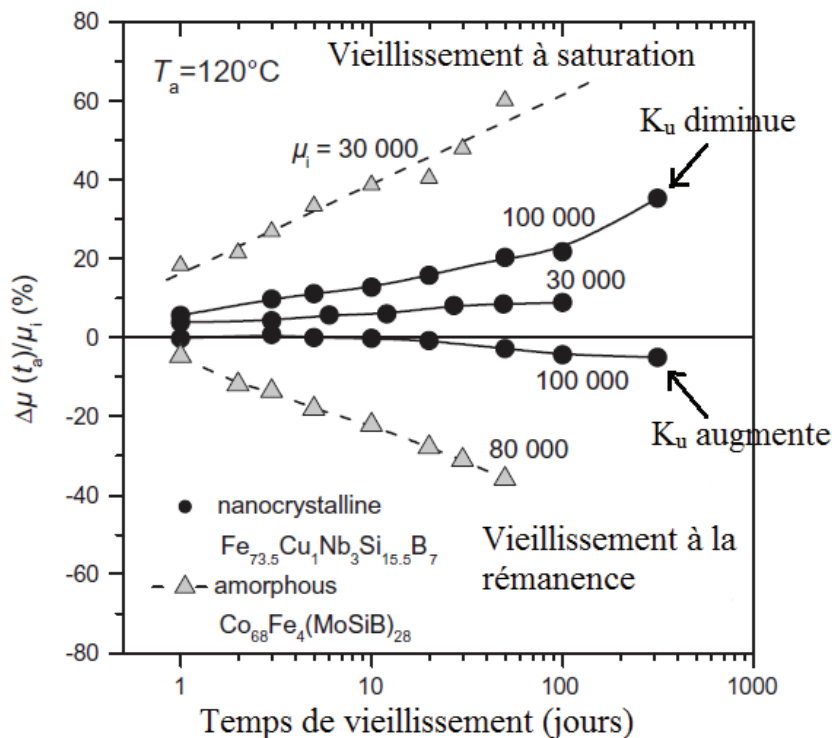


Figure I-31 Evolution relative de la perméabilité initiale en fonction du vieillissement à 120 °C, pour le cas à saturation et à rémanence. Les matériaux concernés sont : les nanocristallins FeCuNbSiB recuits sous champ transversal et les amorphes CoFe(MoSiB) [28].

I.6 Conclusion

Nous avons rappelé dans ce chapitre les principales propriétés physiques et magnétiques des matériaux magnétiques, nécessaires pour mener l'étude de leur vieillissement. Nous avons également détaillé les différentes énergies mises en jeu dans les matériaux et plus précisément les énergies d'anisotropies.

Les propriétés relatives aux alliages de FeCo en général sont présentées. Plus spécifiquement, le processus d'élaboration de l'alliage AFK502 qui fait l'objet de notre étude de vieillissement est détaillé. Pour l'étude du vieillissement de cet alliage, d'autres propriétés seront définies dans le chapitre V. Il s'agira du degré d'ordre, la contrainte maximale de rupture et l'allongement mécanique.

Nous avons ensuite passé en revue les caractéristiques de la deuxième famille de matériaux qui est étudiée dans ce travail : les nanocristallins. Leur procédé d'élaboration, leurs propriétés physiques et magnétiques ainsi que les différents recuits sous contraintes sont présentés.

Pour terminer ce chapitre, une rapide présentation de la bibliographie sur le vieillissement des matériaux polycristallins et nanocristallins est faite. Il s'est avéré que la principale cause du vieillissement des matériaux polycristallins est liée à la formation des carbures de fer. Cependant, en dessous de 20 ppm de teneur en carbone, ces matériaux peuvent ne pas présenter de dégradations magnétiques après un traitement de vieillissement (comme c'est le cas pour les matériaux base AlSi). Or, les échantillons AFK502 fournis par la société Aperam contiennent une très faible teneur en carbone (probablement moins de 20 ppm) et il semble peu probable que les variations de leurs propriétés magnétiques pendant le vieillissement seraient causées par la formation de carbures de fer.

Pour terminer, la modeste bibliographie sur le vieillissement des matériaux nanocristallins ne s'intéresse qu'à l'étude des variations de leur perméabilité (en l'occurrence les anisotropies magnétiques). Or, notre étude du vieillissement des nanocristallins s'intéresse à pratiquement toutes les propriétés magnétiques à savoir : l'induction à saturation, l'induction rémanente, la perméabilité, le champ coercitif, les pertes hystérésis, classiques et excédentaires ce qui justifie l'apport de nos travaux.

I.7 Références

- [1] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism*. Princeton (N.J.), Etats-Unis d'Amérique, Canada, Royaume-Uni de Grande-Bretagne et d'Irlande du Nord, 1951.
- [2] Rainer Hilzinger and Werner Rodewald, "Magnetic Materials," in *Magnetic Materials*, Germany: VACUUMSCHMELZE GmbH & Co, 2013.
- [3] F. S. M. Mballa, "Modélisation du comportement magnéto-mécanique d'un acier Dual Phase à partir de sa description microstructurale," phd thesis, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2013.
- [4] F. Bitter, "On Inhomogeneities in the Magnetization of Ferromagnetic Materials," *Phys. Rev.*, vol. 38, no. 10, pp. 1903–1905, Nov. 1931.
- [5] A. Ambatiello, K. Fabian, and V. Hoffmann, "Magnetic domain structure of multidomain magnetite as a function of temperature: observation by Kerr microscopy," *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, vol. 112, no. 1–2, pp. 55–80, Mar. 1999.
- [6] O. Messal, "Characterization and modeling of the thermomagnetic behavior of FeNi alloys for virtual prototyping," Theses, Université Claude Bernard - Lyon I, 2013.
- [7] P. Weiss, "L'hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique," *J. Phys. Theor. Appl.*, vol. 6, no. 1, pp. 661–690, 1907.
- [8] T. Waeckerlé, "Matériaux magnétiques doux cristallins | Techniques de l'Ingénieur." *Techniques de L'ingénieur*, Aug-2010.
- [9] Y. Yao, "Etudes des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB pour applications en électronique de puissance," phd thesis, Université Grenoble Alpes, 2015.
- [10] K. Suzuki and G. Herzer, "Magnetic-field-induced anisotropies and exchange softening in Fe-rich nanocrystalline soft magnetic alloys," *Scripta Materialia*, vol. 67, no. 6, pp. 548–553, Sep. 2012.
- [11] M. Emura, A. M. Severino, A. D. Santos, and F. P. Missell, "Induced anisotropy in nanocrystalline FeCuNbSiB," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 30, no. 6, pp. 4785–4787, Nov. 1994.
- [12] T. Waeckerlé, T. Save, and A. Demier, "New stressed and continuously annealed low μ nanocrystalline FeCuNbSiB cores for watt-hour-metering or differential mode inductance applications," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 320, no. 20, pp. e797–e801, Oct. 2008.
- [13] F. Alves, J. B. Desmoulins, D. Hérisson, J. F. Rialland, and F. Costa, "Stress-induced anisotropy in Finemet- and Nanoperm-type nanocrystalline alloys using flash annealing," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 215–216, pp. 387–390, Jun. 2000.
- [14] T. Waeckerlé, "Alliages Fe-Co à Haute limite élastique," France, Livrable du projet GENOME, Sep. 2014.

- [15] G. Bertotti, "Connection between microstructure and magnetic properties of soft magnetic materials," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 320, no. 20, pp. 2436–2442, Oct. 2008.
- [16] T. Sourmail, "Near equiatomic FeCo alloys: Constitution, mechanical and magnetic properties," *Progress in Materials Science*, vol. 50, no. 7, pp. 816–880, Sep. 2005.
- [17] R. S. Sundar and S. C. Deevi, "Soft magnetic FeCo alloys: alloy development, processing, and properties," *International Materials Reviews*, vol. 50, no. 3, pp. 157–192, Jun. 2005.
- [18] T. Waeckerlé, R. Battonnet, T. Wéry, and F. Petit, "Fully Processed Fe-Co Soft Magnetic Laminations for High-Speed Electrical Machines," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 50, no. 4, pp. 1–6, Apr. 2014.
- [19] B. Nabi, A.-L. Helbert, F. Brisset, G. André, T. Waeckerlé, and T. Baudin, "Effect of recrystallization and degree of order on the magnetic and mechanical properties of soft magnetic FeCo–2V alloy," *Materials Science and Engineering: A*, vol. 578, pp. 215–221, Aug. 2013.
- [20] B. Thomas, "The influence of nickel on the magnetic and mechanical properties of Co-Fe-V alloy," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 16, no. 2, pp. 444–454, Mar. 1980.
- [21] D. Gautard, G. Couderchon, and L. Coutu, "50-50 CoFe alloys: Magnetic and mechanical properties," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 160, pp. 359–360, 1996.
- [22] D. R. Thornburg, "High-Strength High-ductility Cobalt-Iron Alloys," *Journal of Applied Physics*, vol. 40, no. 3, pp. 1579–1580, Mar. 1969.
- [23] T. Sourmail, "Evolution of strength and coercivity during annealing of FeCo based alloys," *Scripta Materialia*, vol. 51, no. 6, pp. 589–591, Sep. 2004.
- [24] P. Duwez and S. C. H. Lin, "Amorphous Ferromagnetic Phase in Iron-Carbon-Phosphorus Alloys," *Journal of Applied Physics*, vol. 38, no. 10, pp. 4096–4097, Sep. 1967.
- [25] F. Mazaleyrat, "Matériaux magnétiques: "Les nouveaux matériaux"," Supélec, Gif-sur-Yvette, France, Feb-1999.
- [26] Y. Yoshizawa, S. Oguma, and K. Yamauchi, "New Fe-based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure," *Journal of Applied Physics*, vol. 64, no. 10, pp. 6044–6046, Nov. 1988.
- [27] J. Charpy, "Suivi des mécanismes de vieillissement dans des matériaux magnétiques de dernière génération pour des applications en aéronautiques," Laboratoire MATEIS, France, Projet de fin d'études, Mar. 2016.
- [28] G. Herzer, "Modern soft magnets: Amorphous and nanocrystalline materials," *Acta Materialia*, vol. 61, no. 3, pp. 718–734, Feb. 2013.
- [29] T. Waeckerlé, "Matériaux nanocristallins : Application en électronique de puissance," France, Livrable du projet GENOME, Sep. 2014.

- [30] G. Herzer, "Grain structure and magnetism of nanocrystalline ferromagnets," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 25, no. 5, pp. 3327–3329, Sep. 1989.
- [31] G. Herzer, "Creep induced magnetic anisotropy in nanocrystalline Fe-Cu-Nb-Si-B alloys," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 30, no. 6, pp. 4800–4802, Nov. 1994.
- [32] G. Herzer, "Grain size dependence of coercivity and permeability in nanocrystalline ferromagnets," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 26, no. 5, pp. 1397–1402, Sep. 1990.
- [33] K. Suzuki, G. Herzer, and J. M. Cadogan, "The effect of coherent uniaxial anisotropies on the grain-size dependence of coercivity in nanocrystalline soft magnetic alloys," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 177–181, Part 2, pp. 949–950, Jan. 1998.
- [34] K. Suzuki, N. Ito, S. Saranu, U. Herr, A. Michels, and J. S. Garitaonandia, "Magnetic domains and annealing-induced magnetic anisotropy in nanocrystalline soft magnetic materials," *Journal of Applied Physics*, vol. 103, no. 7, p. 07E730, Apr. 2008.
- [35] L. K. Varga, Z. Gercsi, G. Kovács, A. Kákay, and F. Mazaleyrat, "Stress-induced magnetic anisotropy in nanocrystalline alloys," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 254–255, pp. 477–479, Jan. 2003.
- [36] B. Hofmann and H. Kronmüller, "Stress-induced magnetic anisotropy in nanocrystalline FeCuNbSiB alloy," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 152, no. 1–2, pp. 91–98, Jan. 1996.
- [37] N. Murillo, J. González, J. M. Blanco, and M. Vázquez, "Stress induced anisotropy and temperature dependence of the magnetostriction in Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{13.5}B₉ amorphous alloy," *Journal of Applied Physics*, vol. 74, no. 5, pp. 3323–3327, Sep. 1993.
- [38] E. Csizmadia, L. K. Varga, Z. Palánki, and F. Záborszky, "Creep or tensile stress induced anisotropy in FINEMET-type ribbons?," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 374, pp. 587–590, Jan. 2015.
- [39] G. M. R. Negri, "Estudo de caso de envelhecimento magnético em aços elétricos de grão não orientado de baixa eficiência," Universidade Federal de Santa Catarina, Brésil, 2011.
- [40] K. M. Marra, F. J. G. Landgraf, and V. T. Buono, "Magnetic losses evolution of a semi-processed steel during forced aging treatments," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 320, no. 20, pp. e631–e634, Oct. 2008.
- [41] "Matériaux magnétiques utilisables à haute température, vieillissement des FERIMPHY." Document Aperam, 14-Mar-1960.
- [42] M. F. de Campos, M. Emura, and F. J. G. Landgraf, "Consequences of magnetic aging for iron losses in electrical steels," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 304, no. 2, pp. e593–e595, Sep. 2006.
- [43] T. Waeckerlé, A. Demier, and S. Camus, "Effect of ageing on FeCuNbSiB nanocrystalline magnetic properties," *Soft Magnetic Materials Conference*, São Paulo, Brasil, p. 4, 2015.

[44] C. Martin, R. Robutel, C. Buttay, and F. Sixdenier, “High Temperature Ageing of Fe-based Nanocrystalline Ribbons,” presented at the IMAPS. HiTEC, Albuquerque, United States, 2012, p. 6.

II. Chapitre II : Outils d'expérimentation

II.1 Introduction

Les matériaux magnétiques étudiés dans ce travail de doctorat qui sont les nanocristallins Nanophy et les Fer-Cobalt AFK502 produits par la société Aperam Alloys Imphy, ont déjà été présentés dans le contexte général et dans le chapitre I. Leur étude de vieillissement est basée sur l'idée du suivi de l'évolution de leurs propriétés caractéristiques en fonction de contraintes appliquées durant le vieillissement. Dans notre étude, une seule contrainte a été appliquée. En effet, étant donné le faible nombre de travaux existants sur la thématique, il était judicieux de commencer par une étude de vieillissement avec comme seule contrainte la température, appliquée de façon continue (pas de cyclage en température).

Au départ de cette étude de vieillissement, seules les mesures des propriétés macroscopiques ont été prévues. Il s'est avéré peu de temps après le lancement des vieillissements que le suivi des propriétés macroscopiques ne suffirait pas à expliquer les mécanismes de vieillissement. L'une des pistes pour surpasser le verrou scientifique lié aux mécanismes de vieillissement était d'évaluer en fonction du vieillissement les énergies d'anisotropie qui contrôlent l'aimantation dans le matériau magnétique. Pour ce faire, il fallait effectuer des relevés de caractéristiques à des échelles inférieures : microscopiques voire nanométriques. La collaboration avec le laboratoire MATEIS⁴, spécialiste dans les caractérisations microstructurales, s'est inscrite dans ce cadre. A l'issue de cette collaboration, de nombreuses informations en ce qui concerne l'évolution structurale des alliages nanocristallins et FeCo en fonction du vieillissement ont été rapportées. Afin d'affiner cette étude énergétique notamment pour les nanocristallins, un séjour au sein du laboratoire SATIE⁵ a été effectué pour une mesure particulière du coefficient de magnétostriction λ_s .

Pour résumer, les différentes mesures nécessaires pour le suivi du vieillissement ont été effectuées dans quatre laboratoires différents :

- Les caractérisations magnétiques et électriques ont été menées au sein du laboratoire Ampère,
- Les caractérisations de microstructures ont été effectuées au sein du laboratoire MATEIS,
- La mesure du coefficient de magnétostriction a été effectuée au sein du laboratoire SATIE,
- Les mesures de contraintes mécaniques ont été effectuées au sein du laboratoire de recherche de la société Aperam Imphy Alloys.

Signalons que les caractérisations magnétiques ont été très chronophages à cause du nombre prohibitif d'échantillons dédiés à cet effet.

Nous abordons ce chapitre par un recensement des échantillons étudiés (nanocristallins et FeCo) et du matériel utilisé pour effectuer les essais de l'étude du vieillissement. Puis, nous

⁴ MATEIS : Laboratoire MATÉriaux, Ingénierie et Science. Situé à l'INSA de Lyon, Villeurbanne.

⁵ SATIE : Laboratoire des Systèmes et Applications des Technologies de l'Information et de l'Energie. Situé à l'ENS Cachan, Paris.

présentons brièvement chacune des manipulations de suivi de vieillissement énoncées ci-dessus excepté la technique de mesure des contraintes mécaniques. Nous présentons, également la démarche suivie pour les caractérisations magnétique et électrique des échantillons AFK502 et Nanophy en fonction du vieillissement.

II.2 Recensement et préparation des échantillons

II.2.1 Recensement des échantillons

Pour la conception des génératrices hautes vitesses, la société Thales a besoin de matériaux magnétiques possédant une Haute Limite Élastique (HLE). Une priorité est ainsi accordée au nouvel alliage FeCo AFK502 HLE développé par la société Aperam Imphy Alloys. En effet cet alliage présente des caractéristiques magnétiques et mécaniques intéressantes et aussi une large gamme de limite élastique (voir section I.3.4 du chapitre I). De la même manière, une priorité est accordée à l'alliage nanocristallin Nanophy pour la conception de différents convertisseurs statiques. En effet, cet alliage présente des caractéristiques magnétiques intéressantes ainsi qu'une disponibilité en large gamme de perméabilité (voir chapitre I section I.4.4). Le critère lié à la tenue thermique dans le temps constitue l'un des critères déterminant du choix final des alliages à prendre à compte lors de la phase de la conception. Plusieurs nuances de ces deux alliages dans notre étude de vieillissement ont été prises en compte. En effet, considérer plusieurs nuances de ces deux alliages, permet de mener des études comparatives entre celles-ci.

Les nuances qui nous ont été proposées par Aperam pour l'étude du vieillissement s'étalent d'une limite élastique allant de 370 MPa à environ 1000 MPa en ce qui concerne les AFK502 et d'environ 200 à environ 500000 pour la perméabilité relative en ce qui concerne les Nanophy. Ces larges gammes de nuances sont obtenues grâce aux différents recuits appliqués sur leurs alliages de base.

Quatre nuances en termes de limite élastique des échantillons AFK502 ont été étudiées : la nuance standard d'environ 370 MPa ayant subi le recuit classique et trois nuances HLE ayant subi le recuit HSP dont les limites élastiques sont d'environ 600, 800 et 1000 MPa.

Egalement quatre nuances de l'alliage Nanophy en terme de perméabilité relative ont été traitées : deux en basse perméabilité de 200 et 3000 ayant subi un recuit au défilé sous traction mécanique ; une nuance moyenne perméabilité 30000 ayant subi le recuit sous champ transversal et enfin une nuance haute perméabilité 500000 ayant subi un recuit classique sans champ.

Par ailleurs, ces deux types de matériaux sont aussi proposés selon plusieurs finitions. En effet, les tôles AFK502 qui constitueront le stator et le rotor devront être isolées pour réduire au maximum les pertes classiques. Quant aux noyaux Nanophy, pour des raisons de fragilité, ces derniers sont protégés par un enrobage. Pour résumer, dans notre étude, les alliages AFK502 se présentent en différentes nuances selon la limite élastique et en différentes finitions selon l'isolation des tôles (pour notre cas des rondelles) et les alliages Nanophy se présentent selon la perméabilité et avec ou sans enrobage.

Le tableau II-1 regroupe tous les échantillons FeCo selon les quatre limites élastiques (environ 370, 600, 800 et 1000 MPa) et les trois finitions (nu, isolé par oxydation et isolé par du Méthylate de Mg). Les échantillons et les éprouvettes de traction (pour le suivi de la limite élastique) sont répartis à égalité pour les 4 températures de vieillissement. Pour chaque cas de vieillissement, 3 échantillons identiques (même teneur élastique et finition) sont vieillis et caractérisés à chaque étape de vieillissement. Un échantillon est constitué d'un empilement de 13 rondelles de dimensions 36×29.5 mm et 0.2 mm d'épaisseur. Au total, pour les 4 températures de vieillissement considérées, soit 120 échantillons sont à faire vieillir et doivent être caractérisés.

Types	Finition	100°C	200°C	250°C	300°C
FeCo (36×29.5× (0.2×13)) mm					
AFK502 Standard RN ~ 370MPa	Nu	3	3	3	3
	Oxydé	3	3	3	3
	Isolation de méthylate de Mg	3	3	3	3
AFK502 FP6 600 MPa	Nu	3	3	3	3
	Oxydé	3	3	3	3
AFK502 FP8 ~ 800 MPa	Nus	3	3	3	3
	Oxydé	3	3	3	3
	Isolation de méthylate de Mg	3	3	3	3
AFK502 FP10 ~ 1000 MPa	Nu	3	3	3	3
	Oxydé	3	3	3	3
FeCo (200×20×0.34) mm					
Eprouvettes de traction	Nues	72	72	72	72

Tableau II-1 Recensement des échantillons FeCo étudiés.

De plus, d'autres échantillons qui servent de références ou étalons, sont caractérisés et gardés soigneusement (ils ne subissent pas de vieillissement). La société Aperam nous a fourni des éprouvettes de traction rectangulaires (voir figure 2.1) à l'état nu. Elles sont vieilles selon le même processus de vieillissement que les rondelles. Elles sont expédiées à la société Aperam à chaque étape de vieillissement pour les essais de traction qui servent au suivi de la tenue élastique.

Le tableau II-2 regroupe tous les échantillons nanocristallins selon leur perméabilité ($\mu 200$, $\mu 3000$, $\mu 30000$ et $\mu 500000$) et leur finition (enrobé ou nu). Au total, 88 échantillons sont répartis pour les quatre températures de vieillissement.

Types	Finition	100°C	150°C	200°C	240°C
Nanocristallins (22×17×7) mm					
Nanophy μ 200	Tores nus avec boitier	2+2*	2+2*	2+2*	2+2*
	Tores enrobés	2+2*	2+2*	2+2*	/
Nanophy μ 3000	Tores nus avec boitier	2+2*	2+2*	2+2*	2+2*
Nanophy μ 30000	Tores nus avec boitier	2+2*	2+2*	2+2*	2+2*
	Tores enrobés	2+2*	2+2*	2+2*	/
Nanophy μ 500000	Tores nus avec boitier	2+2*	2+2*	2+2*	2+2*

* : échantillons dédiés pour les mesures sur l'impédance mètre.

Tableau II-2 Recensement des échantillons nanocristallins étudiés.

La figure II-1 présente des échantillons de matériaux avec leurs principales dimensions :

- Rondelles AFK502 utilisées pour constituer les échantillons AFK502 de caractérisations magnétiques (empilement de 13 rondelles) et aussi utilisées pour la mesure de la résistivité,
- Eprouvette AFK502 de traction pour les essais de contraintes mécaniques, utilisée également pour les caractérisations de microstructure,
- Tores Nanophy nus et enrobés pour les caractérisations magnétiques et pour les mesures à l'impédance mètre,
- Ruban coupé pour les mesures de magnétostriction, de résistivité et également pour les caractérisations de microstructure.

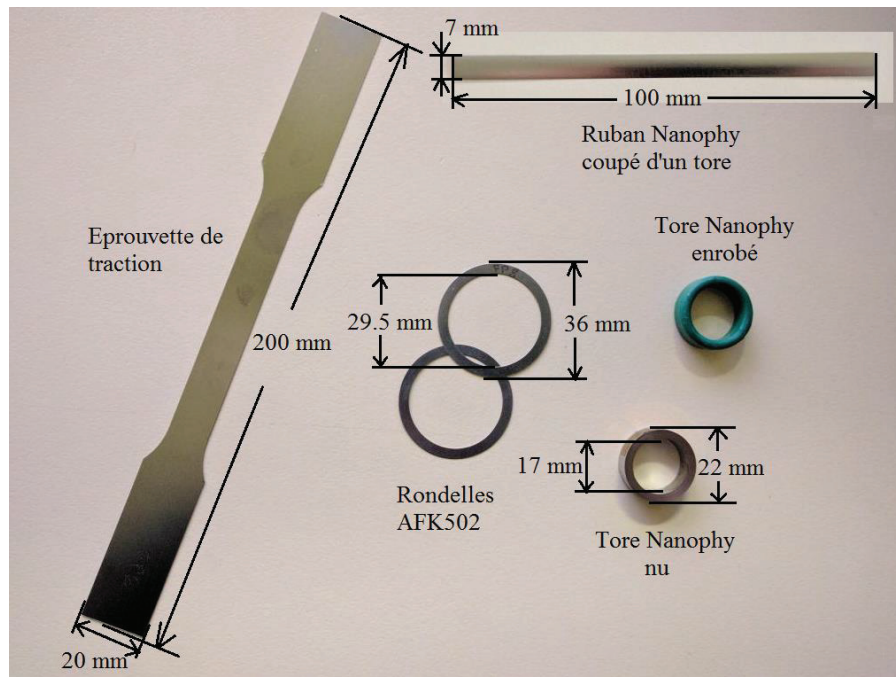


Figure II-1 Échantillons de base AFK502 et Nanophy utilisés dans diverses mesures.

II.2.2 Préparation des échantillons

II.2.2.1 Etuves

Pour faire vieillir les échantillons AFK502 et Nanophy, cinq étuves sont employées. Elles fonctionnent en permanence aux températures de 100, 150, 200, 240 et 300 °C. Signalons que ces étuves fonctionnent sous conditions atmosphériques. La figure II-2 présente une des étuves utilisée.



Figure II-2 Etuve utilisée pour le vieillissement de marque Memmert 108 litres, modèle UN110PLUS.

II.2.2.2 Bobinage des échantillons

II.2.2.2.1 Choix du bobinage

Les caractérisations magnétiques sont faites par des hystérésigraphes dont le principe de fonctionnement est basé sur la méthode du transformateur à vide. Pour cela il faut disposer deux bobinages sur les échantillons, le premier bobinage est le primaire N_p pour créer l'excitation et le deuxième constitue le secondaire N_s nécessaire pour le relevé de la f.e.m à vide. Les mêmes bobinages ont été choisis pour tous les échantillons AFK502, soit : $N_p=100$ spires et $N_s=34$ spires.

Par contre appliquer le même bobinage sur tous les échantillons Nanophy n'est pas possible à cause de la grande différence en termes de perméabilité entre les différents types de matériaux. Le tableau II-3 présente le nombre de spires primaires et secondaires des échantillons Nanophy.

	N_p	N_s
$\mu 500000$	2	10
$\mu 30000$	10	10
$\mu 3000$	20	10
$\mu 200$	70	10

Tableau II-3 Nombre de spires primaires et secondaires des échantillons Nanophy.

II.2.2.2.2 Boîtiers et fil de bobinage

Les échantillons AFK502 sont formés d'un empilement de rondelles qui sont fragiles (0.2 mm d'épaisseur) et dont le bobinage ne doit pas être fait directement. Cela nous a amenés à faire

usiner des boitiers sur mesure. Les boitiers et le fil de bobinage doivent résister aux températures de vieillissement (les échantillons sont mis dans les fours déjà bobinés).

Les échantillons Nanophy sont fournis en rubans nanocristallins enroulés sous forme de tores de 17 et 22 mm de diamètres intérieur et extérieur respectivement et de 7 mm de hauteur. De même, des boitiers sont usinés sur mesure pour les tores nus à cause de leur fragilité.

Deux types de fils et de boitiers, présentés dans le tableau II-4, sont prévus. Le premier type résiste jusqu'à 240 °C en permanence et le deuxième résiste à plus de 300 °C (évidemment le deuxième type ne concerne que les échantillons AFK502 vieillis à 300 °C).

	Type 1	Type 2
Fil de bobinage	Fil en cuivre émaillé (magnetemp 240 Y) 0.5 mm de diamètre, 240 °C en permanence, souple (bobinage facile) 	Fil en cuivre nickelé revêtu d'une poudre de céramique (KD500/35) 0.35 mm de diamètre, 500°C en permanence, moins souple, fragile 
Boitier	Type de matière : Peek 260 °C en permanence Usinage facile 	Type de matière : céramique Jusqu'à 1000 °C Usinage difficile 

Tableau II-4 Fils et boitiers utilisés pour le bobinage.

II.2.2.2.3 Sous-traitance de bobinage

Cette sous-traitance a été faite seulement pour 90 échantillons AFK502 relatifs à la colonne 100, 200 et 250 °C du tableau II-1. Ces 90 échantillons ont été bobinés avec le type 1 de fil et de boitier (tableau II-4). Le bobinage des échantillons Nanophy a été fait à la main par nos soins afin de s'assurer de l'adéquation entre le bobinage et l'échantillon correspondant. La figure II-3 présente les 60 échantillons AFK502 étiquetés et dont le bobinage a été sous-traité.

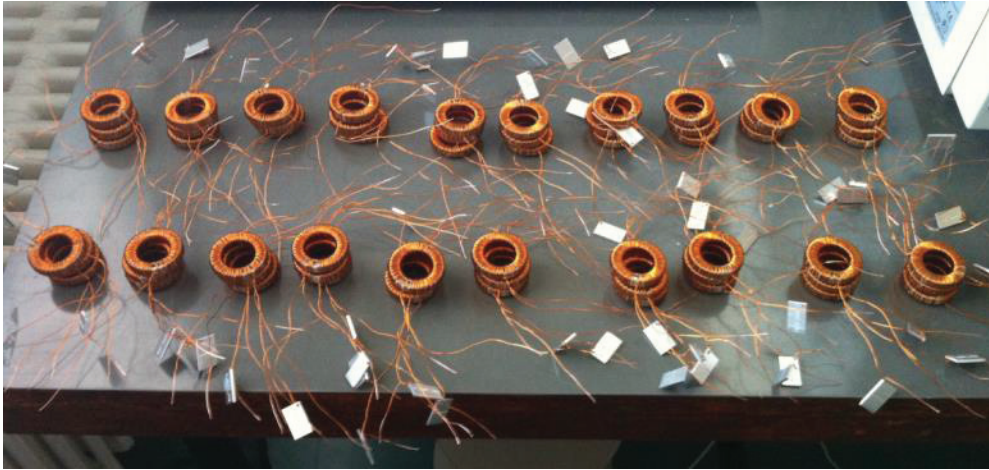


Figure II-3 60 échantillons AFK502 bobinés pour les températures de vieillissement de 200 et 250°C.

Le bobinage du primaire des 30 échantillons (dédiés à la température de vieillissement de 300 °C) avec le fil en céramique n'était pas possible. En effet, les caractérisations jusqu'à presque la saturation imposent un champ de l'ordre de 6000 A/m ($\rightarrow 6$ A au primaire alors que l'ampérage du fil ne peut dépasser 1 A), rajoutant à cela sa rigidité. Par contre le bobinage secondaire de 34 spires a été fait manuellement avec ce fil.

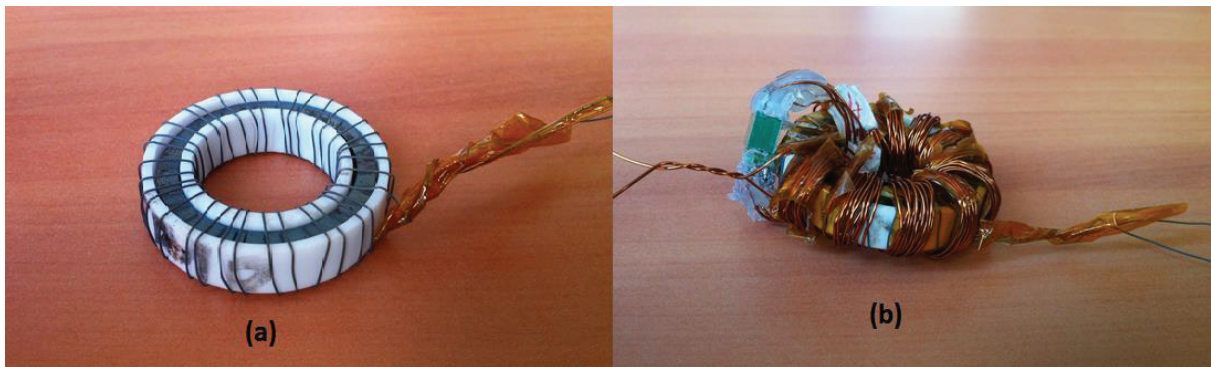


Figure II-4 Bobinage des 30 échantillons AFK502 de la température 300°C.

La figure II-4 (a) présente le bobinage secondaire de 34 spires. La figure 2.6 (b) présente l'astuce qui a été utilisée pour palier la difficulté technique du bobinage primaire. Celui-ci est en fait constitué d'un faisceau démontable de 10 fils avec des connecteurs aux deux extrémités. En faisant seulement 10 spires avec ce faisceau, nous obtenons les 100 spires désirées.

II.3 Brève présentation des techniques expérimentales pour l'étude du vieillissement

Dans cette partie, nous présentons brièvement les techniques expérimentales utilisées pour mener à bien ce travail de thèse. Pour chacune des techniques, nous précisons le principe de fonctionnement et les propriétés mesurées. Il est à souligner que le travail consacré à la caractérisation magnétique a été très chronophage et a nécessité des efforts, de la ténacité et des précautions.

II.3.1 Caractérisations magnétiques

Il existe plusieurs méthodes pour déterminer les propriétés magnétiques macroscopiques d'un matériau. La méthode la plus répandue est la méthode dite « fluxmétrique » ou encore appelée la méthode « du transformateur ». Elle consiste en la mesure des courbes du cycle d'hystérésis $B(H)$. Dans ce type de mesure, le circuit magnétique (formé du matériau à caractériser) doit être fermé. On utilise généralement des circuits toriques ou des cadres Epstein [1]. Dans notre cas, des tores magnétiques sont employés. La figure II-5 montre le schéma de principe de la méthode « fluxmétrique » dans le cas d'un échantillon torique.

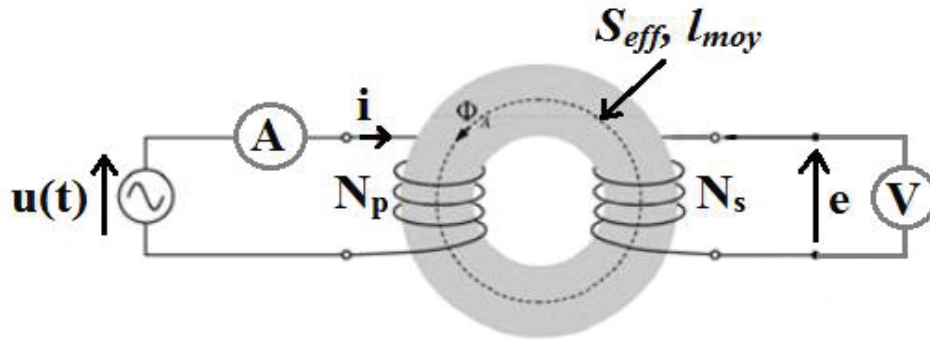


Figure II-5 Schéma de principe de la méthode « fluxmétrique » [2].

Les grandeurs magnétiques que sont l'induction B et le champ d'excitation magnétique H ne sont pas directement accessibles. Leurs valeurs sont déduites à partir de grandeurs électriques mesurées. On effectue l'acquisition du courant primaire i et de la tension à vide e du secondaire. Le théorème d'Ampère (équation II-1) et la loi de Faraday (équation II-2) permettent, à l'aide des dimensions de l'échantillon et des nombres de spires du primaire et du secondaire, de calculer H et B respectivement. La mesure des cycles $B(H)$ permet la détermination des principales grandeurs magnétiques macroscopiques (voir section I.2.3 du chapitre I).

$$H(t) = \frac{N_p \cdot i(t)}{l_{moy}} \quad (\text{II.1})$$

$$B(t) = \frac{1}{N_s \cdot S_{eff}} \int e(t) \cdot dt \quad (\text{II.2})$$

Avec l_{moy} : longueur moyenne de l'échantillon torique ; S_{eff} : section droite effective de l'échantillon.

Le laboratoire Ampère a mis au point deux bancs hystérésigraphe adaptables à la plupart des circuits magnétiques. Ces deux bancs permettent d'appliquer au primaire de l'échantillon différentes formes d'ondes du champ d'excitation magnétique (sinusoïdale, triangulaire, trapézoïdale et même des formes non-conventionnelles préprogrammées) et pour différentes fréquences et de températures. Les deux bancs ne sont pas tout à fait identiques et sont complémentaires. En effet, le premier banc est efficace pour imposer un champ magnétique pour les fréquences basses, typiquement, de 0.1 Hz à quelques kHz et le deuxième est efficace pour imposer soit le champ ou bien l'induction magnétique mais pour des fréquences entre environ 100 Hz et 20 kHz.

II.3.1.1 Banc hystérésigraphe n° 1 :

Le schéma de principe de fonctionnement du banc est illustré dans la figure II-6.

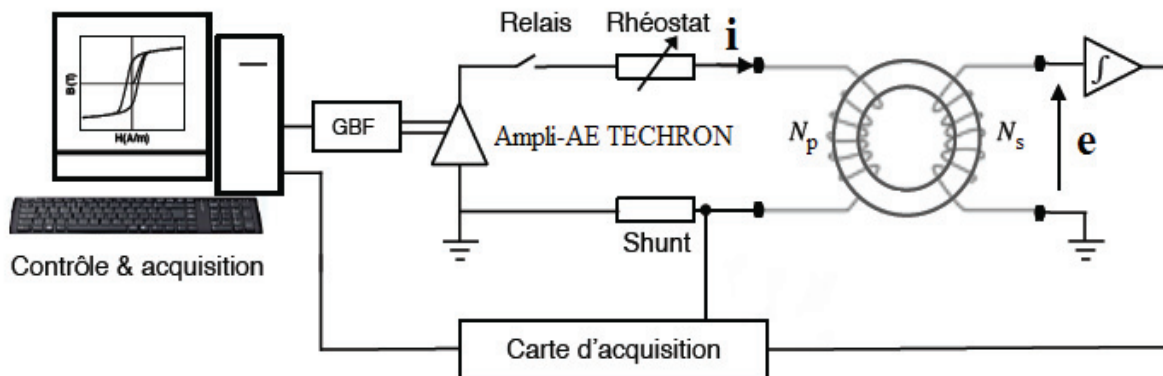


Figure II-6 Schéma de câblage du banc hystérésigraphe n° 1 (champ imposé) [3].

L'ordinateur commande le GBF (Générateur Basse Fréquence) qui envoie le signal d'excitation de quelques volts avec la forme d'onde et la fréquence souhaitées vers l'amplificateur. Ce dernier amplifie le signal et à l'aide du rhéostat, le banc impose l'amplitude du champ nécessaire à la mesure. En effet, l'association du rhéostat à l'amplificateur permet de réaliser une pseudo-source de courant pour effectuer des mesures à champ H imposé. Le courant i qui circule dans le bobinage primaire est obtenu par la carte d'acquisition grâce à la résistance shunt. A l'aide de l'intégrateur analogique, la tension secondaire e est intégrée et renvoyée à la carte d'acquisition. Les signaux récoltés par cette dernière qui sont l'image de H et de B sont ensuite transférés à l'ordinateur pour le calcul de H et de B pour, enfin, tracer les courbes $B(H)$.

D'un point de vue matériel, le banc hystérésigraphe n° 1 est composé de :

- PC pentium 4 – 3.0 GHz pour commander les différents blocs fonctionnels et gérer l'acquisition des données,
- Carte d'acquisition Spectrum MI.3112 – 8 voies, basée sur un convertisseur analogique numérique 12 bits,
- Carte GPIB National Instrument IEEE 488.2 pour relier le GBF au PC.
- Générateur de fonction-GBF Tektronix AFG320, gamme de fréquences [0.01 Hz–26 MHz], amplitude des signaux générés [10 mV à 10 V], commandé via une liaison GPIB,
- Amplificateur de puissance AE TECHRON 200 V/10 A,
- Intégrateurs analogiques permettant l'accès au flux, de gains réglables [100, 200, 500, 1000] et [1000, 2000, 5000, 10000],
- Relais de protection jouant le rôle d'interrupteur,
- Deux cartes électroniques : une amplificatrice et une atténuatrice, de gains réglables. La première sert à amplifier les amplitudes des signaux en basse fréquence et la deuxième a pour rôle de les réduire en haute fréquence. Elles permettent d'avoir des signaux d'amplitude ± 5 V, quelle que soit la fréquence,

- Rhéostat et Shunt.

II.3.1.2 Banc hystérésigraphe n° 2 :

Le schéma de principe de fonctionnement du banc est illustré dans la figure II-7.

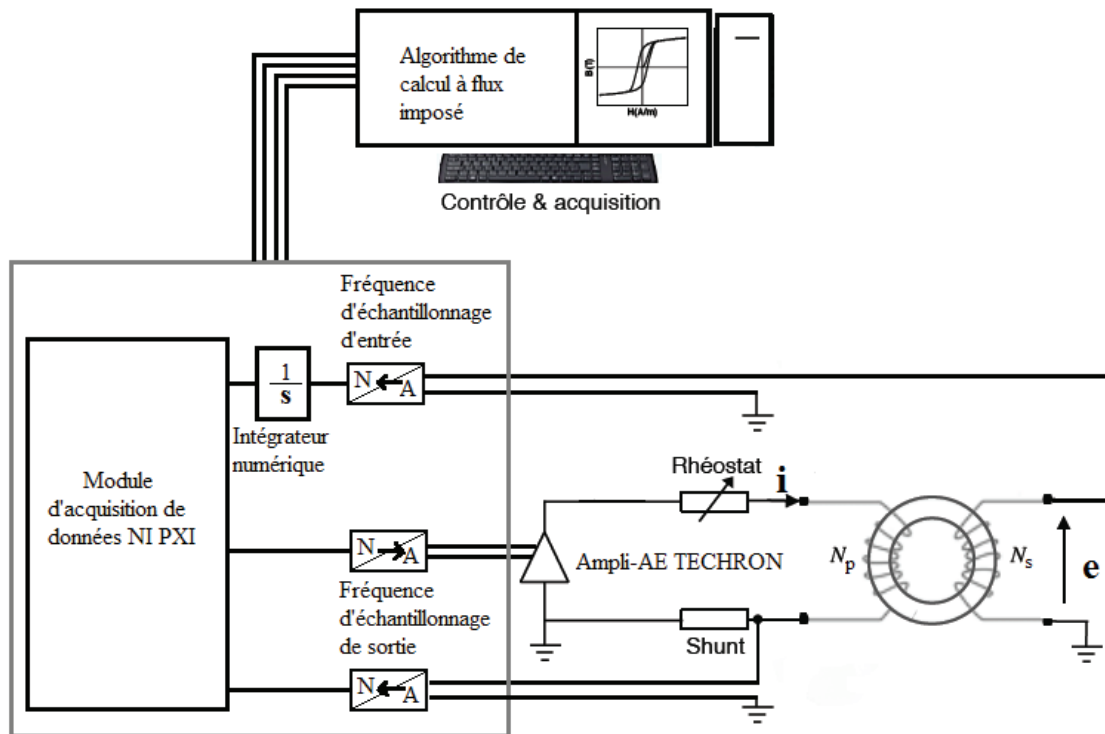


Figure II-7 Schéma de câblage du banc hystérésigraphe n° 2 (champ imposé / induction imposée).

Le banc n° 2 présente quelques différences technologiques par rapport au banc n° 1 notamment concernant la fonction de génération de signal primaire et d'intégration de la tension secondaire qui s'effectuent numériquement. Le banc fonctionne à champ H imposé ou bien à induction B imposée.

Fonctionnement à champ H imposé :

Lorsque le banc fonctionne à champ H imposé, l'algorithme construit numériquement le signal H souhaité et à l'aide du convertisseur numérique/analogique il l'envoie sur l'amplificateur pour la mesure de i et de e . Ces deux grandeurs électriques sont renvoyées vers le module d'acquisition numérique pour le calcul de H et de B . Le calcul de B se fait par intégration numérique de e en passant par le convertisseur analogique/numérique. L'algorithme est en réalité un algorithme d'optimisation qui, à l'aide d'une fonction coût, compare à chaque itération (chaque signal H envoyé dans l'échantillon) le champ H construit numériquement et celui mesuré à l'aide de la résistance Shunt. Une fois que les deux critères d'arrêt : amplitude et facteur de forme du champ H sont atteints, l'algorithme sort de la boucle d'optimisation et trace le cycle $B(H)$ correspondant à la dernière itération.

Fonctionnement à induction B imposée :

Lorsque le banc fonctionne à induction B imposée, l'algorithme pré-calcule analytiquement le champ H correspondant à l'induction B souhaitée [4]. Par la suite, l'algorithme construit

numériquement ce champ H pré-calculé pour l'envoyer via le convertisseur numérique/analogique à l'amplificateur pour effectuer la mesure de i et de e . Une fois que les grandeurs magnétiques H et B sont calculées avec les grandeurs i et e ainsi mesurées, l'algorithme d'optimisation compare à l'aide d'une fonction coût l'induction B qui provient de la mesure et celle souhaitée. Si les deux critères d'arrêt : amplitude de B et facteur de forme ne sont pas satisfaits l'opération se répète en termes d'itérations jusqu'à satisfaction de ces deux derniers. L'algorithme retient la dernière itération et trace le cycle $B(H)$ correspondant.

D'un point de vue matériel, le banc hystérésigraphe n° 2 est composé de :

- PC 3.0 GHz 4GHz RAM avec une interface logiciel pour commander le banc,
- Plateforme National Instruments PXI-1033 avec un module multifonctions type PXI-6259 16-bit et une carte d'acquisition type PXI-5122 14-bit,
- Amplificateur de puissance AE TECHRON 200 V/10 A,
- Rhéostat et Shunt.

II.3.2 Caractérisation électrique

II.3.2.1 Impédancemétrie

Cette technique est utilisée pour la mesure de la perméabilité initiale et de la fréquence de coupure des échantillons Nanophy où l'impédancemètre HP Agilent 4294A est employé. Le principe de mesure est simple, l'appareil envoie un signal sinusoïdal très faible en amplitude à différentes fréquences sur un dipôle et en mesure son impédance. L'appareil peut faire un balayage en fréquence f sur une plage allant de 40 Hz à 110 MHz. Pour chaque fréquence, l'impédancemètre mesure le courant et la tension aux bornes du dipôle et calcule l'impédance complexe correspondante. Dans notre cas le dipôle est une inductance constituée d'un noyau nanocristallin et de deux spires. L'impédance des deux spires ne rentre pas dans les calculs car elle est compensée à chaque mesure faite. Pour le calcul de l'impédance du noyau magnétique, l'impédancemètre propose une configuration R-L (résistance-inductance) série ou parallèle. Dans nos mesures, la configuration série est considérée et l'impédance complexe est définie par (II-3) :

$$\underline{Z}(\omega) = R(\omega) + j \cdot \omega \cdot L(\omega) \quad (\text{II.3})$$

Avec ω : pulsation égale à $2 \cdot \pi \cdot f$

La perméabilité complexe s'écrit comme suit :

$$\underline{\mu}_r = \mu_r' - j \cdot \mu_r'' \quad (\text{II.4})$$

Où μ_r' représente la « capacité » à stocker l'énergie magnétique et μ_r'' représente l'image des pertes magnétique.

Les deux termes de la perméabilité complexe peuvent s'écrire analytiquement en fonction des grandeurs électriques R et L et en fonction des dimensions du noyau magnétique et du bobinage utilisé pour la mesure comme suit :

$$\mu_r'(\omega) = L(\omega) \cdot \frac{l_{moy}}{N^2 \cdot S_{eff} \cdot \mu_0} \quad (II.5)$$

$$\mu_r''(\omega) = R(\omega) \cdot \frac{l_{moy}}{\omega \cdot N^2 \cdot S_{eff} \cdot \mu_0} \quad (II.6)$$

La figure II-8 présente l'évolution des perméabilités μ_r' et μ_r'' d'un Nanophy moyenne perméabilité en fonction de la fréquence, la perméabilité initiale μ_i et la fréquence de coupure f_c sont indiquées.

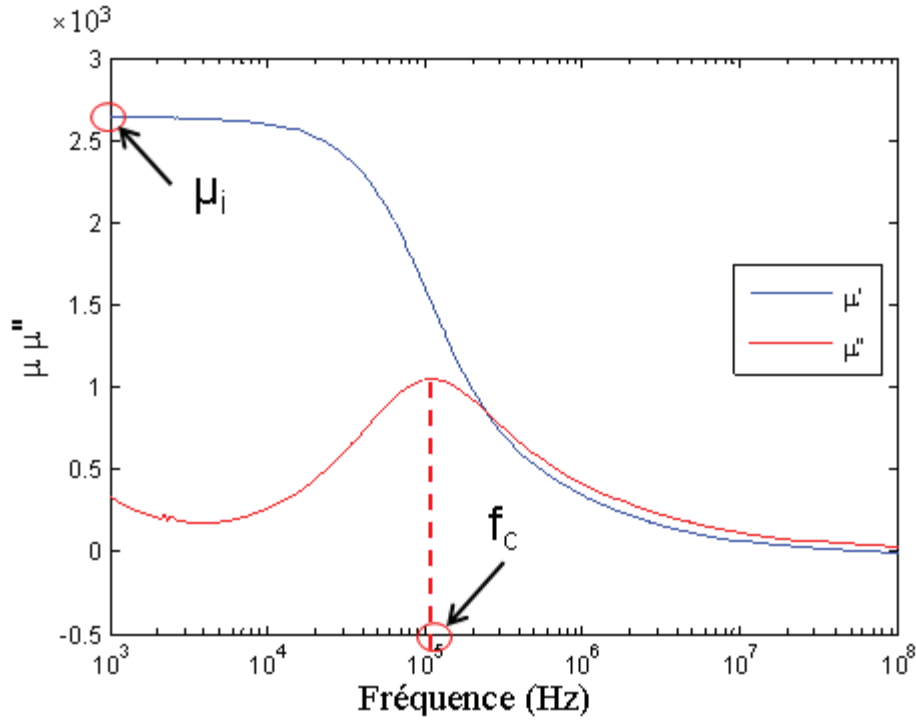


Figure II-8 Perméabilité complexe d'un Nanophy moyenne perméabilité (27000) (partie réelle : μ' et partie imaginaire : μ'').

II.3.2.2 Méthode de mesure de la résistivité par la méthode des quatre pointes.

La résistivité est mesurée à l'aide de la méthode des quatre pointes. Deux supports spéciaux ont été usinés à cet effet. Le premier est conçu sur mesure par rapport aux dimensions de la rondelle AFK502 et le deuxième est conçu sur mesure par rapport aux dimensions du ruban Nanophy. La figure II-9 présente ces deux supports de mesure de la résistivité avec la méthode des quatre pointes.

Les quatre pointes sont branchées à un ohmmètre de précision pour la mesure de la résistance. Au travers de deux pointes, l'ohmmètre injecte le courant dans l'échantillon et à l'aide des deux autres pointes il mesure la résistance. Connaissant, la longueur l entre les deux pointes de mesure et la section droite S de l'échantillon on peut déterminer la résistivité de l'échantillon selon l'équation suivante :

$$\rho = \frac{R \cdot S}{l} \quad (II.7)$$

Dans le cas des rondelles AFK502, on mesure la résistance des deux côtés de la rondelle (voir support de rondelle sur la figure II-9). La valeur de la résistivité est calculée en faisant la moyenne des valeurs obtenues pour les deux points de mesure.

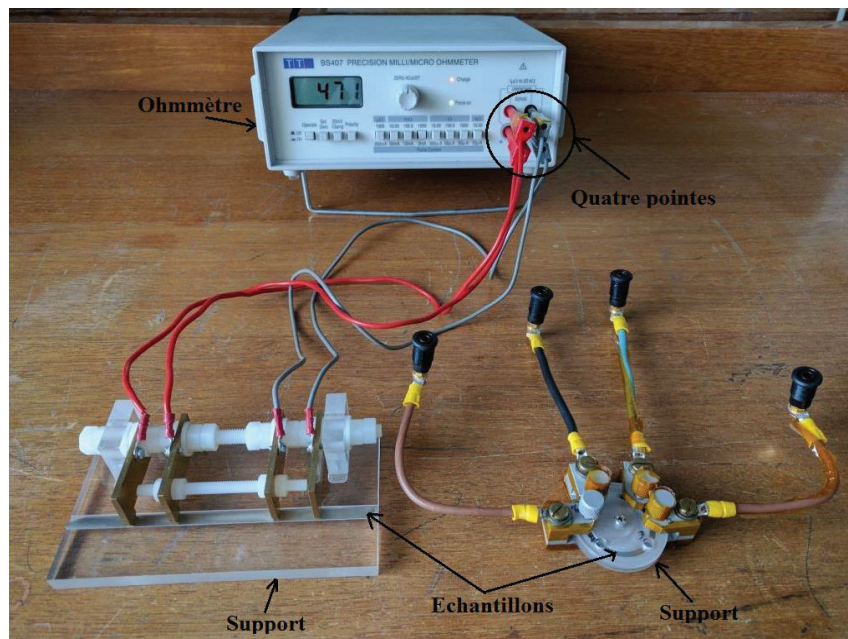


Figure II-9 Manipulation de mesure de la résistivité.

II.3.3 Mesure du coefficient de magnétostriction à saturation λ_s

Les mesures sont faites au laboratoire SATIE sur le banc de mesure de magnétostriction à saturation SAMR (Small Angle Magnetization Rotation). Cette méthode a été brevetée en 1996 par le SATIE [5], [6]. C'est une méthode magnétomécanique basée sur la mesure d'une variation de flux sous l'application d'une contrainte mécanique. Cette contrainte mécanique est, en fait, une traction longitudinale appliquée sur les deux bouts du ruban nanocristallin. La valeur de cette contrainte est fixée à l'aide d'une masse en translation. La partie magnétique est composée de trois bobines :

- Une bobine primaire alimentée en courant continu qui permet d'appliquer un champ à saturation dont la direction est définie par celle de la contrainte de traction ($H_{//}$).
- Une bobine transversale alimentée en courant alternatif dont le but est d'appliquer un champ perpendiculaire (H_{per}) à la direction de la contrainte, variable dans le temps, de fréquence élevée (10 kHz).
- une bobine secondaire qui permet de mesurer la variation de flux (tension e_{2w}) sous l'application de la contrainte de traction.

Le champ transversal à haute fréquence permet une oscillation des moments magnétiques avec un faible angle autour du champ principal longitudinal $H_{//}$. L'application d'une variation de la contrainte de traction $\Delta\sigma$ change le comportement magnétique ce qui fait varier la tension e_{2w} . La variation de e_{2w} est compensée à chaque variation de la contrainte de traction par la diminution ou l'augmentation de l'intensité de $H_{//}$ (magnétostriction positive et négative respectivement).

La mesure de la magnétostriction à l'aide de ce dispositif est indirecte et fait intervenir l'équation suivante (elle est valable lorsque l'angle d'oscillation du champ H_{per} est petit et le matériau est saturé) :

$$\lambda_s = -\frac{\mu_0 \cdot B_{sat}}{3} \cdot \frac{\Delta H_{//}}{\Delta \sigma} \quad (II.8)$$

La figure II-10 présente le schéma de principe du montage du banc SAMR.

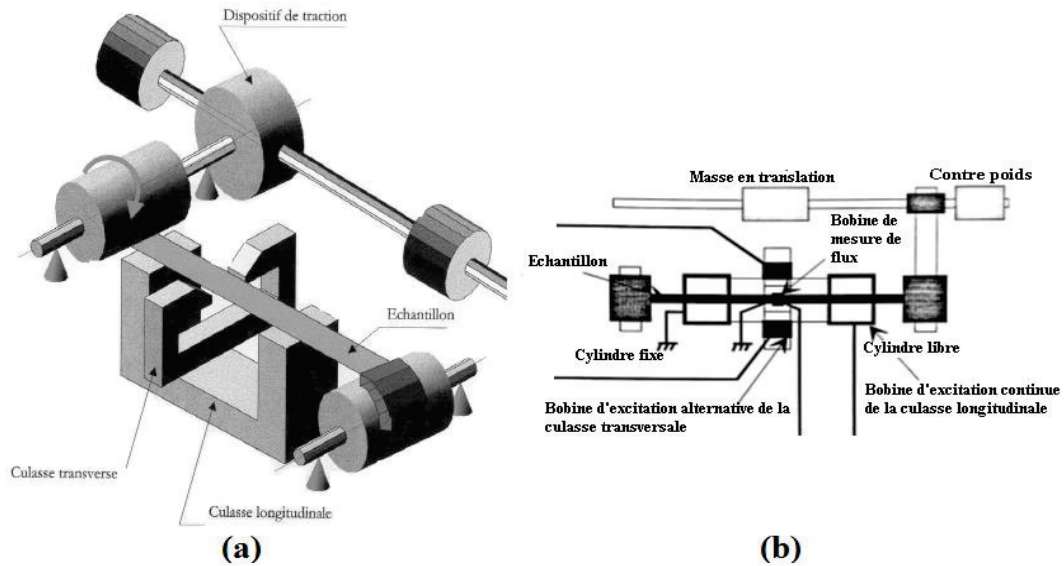


Figure II-10 Présentation de la manipulation SAMR. (a) Vue en perspective isométrique ; (b) Vue de dessus avec les principaux éléments qui constituent la manipulation [6], [7].

La figure II-11 présente deux exemples de mesure avant vieillissement : les nanocristallins $\mu 500000$ (recuit sans champ transverse) courbe (a) et $\mu 200$ (recuit sous contraintes mécaniques) courbe (b). Les courbes (a) et (b) évoluent selon l'équation d'une droite qui passe par zéro ce qui justifie l'utilisation de l'équation (II.8) pour la détermination de la valeur de λ_s . Les deux matériaux présentent une magnétostriction positive : $\lambda_s^{\mu 200} \approx 1.4$ ppm ; $\lambda_s^{\mu 500000} \approx 0.15$ ppm.

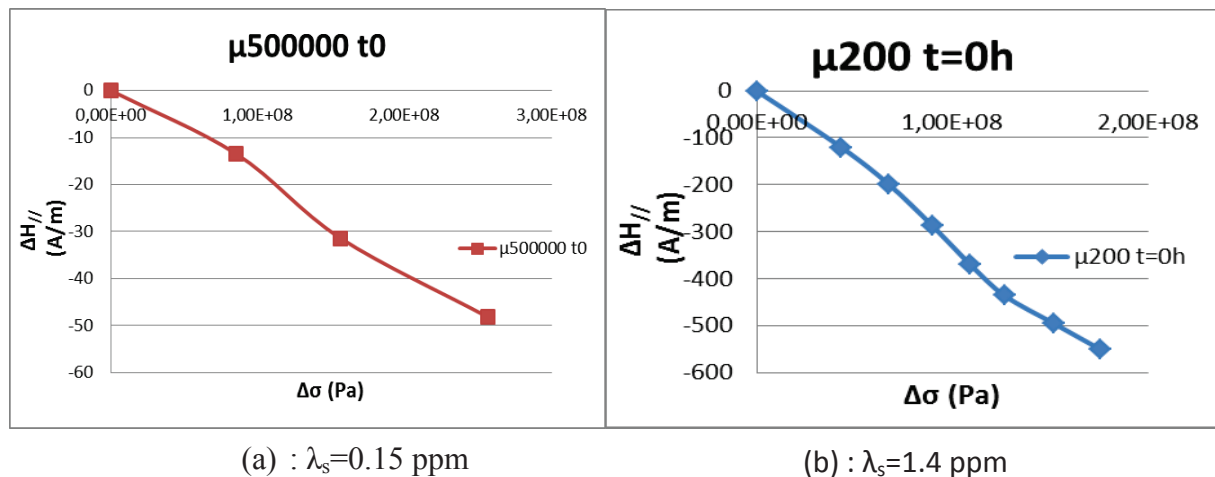


Figure II-11 Détermination du coefficient de magnétostriction λ_s ; (a) pour un Nanophy $\mu 30000$, (b) pour un Nanophy $\mu 200$.

II.3.4 Caractérisations de microstructure

Dans le cadre de notre collaboration avec le laboratoire MATEIS, plusieurs techniques de caractérisation de microstructure ont été effectuées sur nos matériaux au cours de leur vieillissement. Dans cette partie, nous présentons d'une manière très succincte les trois principales techniques de mesure utilisées. Il s'agit de la DSC, de la DRX et du PTE.

II.3.4.1 DSC « Differential Scanning Calorimetry »

La DSC ou bien ce qu'on appelle en français « La calorimétrie différentielle à balayage » est une technique d'analyse thermique qui permet d'étudier les transitions de phase d'un matériau. Il s'agit d'imposer à l'échantillon à analyser et à un échantillon de référence inerte (dans notre cas l'air) le même profil de température, souvent linéaire, et l'on mesure ensuite la différence d'énergie qui a été fournie. La figure II-12 présente un schéma illustratif du principe de la DSC.

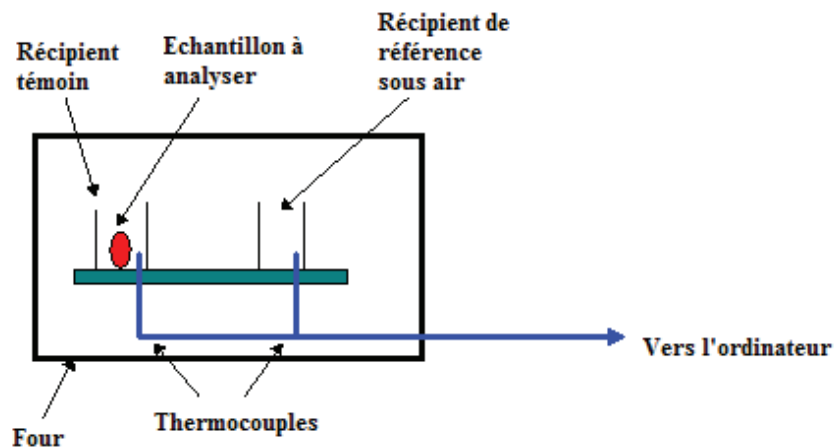


Figure II-12 Schéma de principe de fonctionnement de la DSC [8].

Ces expériences de DSC ont été réalisées avec l'instrument DSC 204 F1 de NETZSH, sous balayage d'un gaz inerte (de l'argon à un débit de 25 ml/min) pour éviter toute réaction du matériau à étudier avec l'atmosphère du four. Des capsules en aluminium ont été utilisées comme porte-échantillons. Afin d'assurer la fiabilité de nos mesures, un étalonnage préalable de la température a été effectué avec un étalon d'indium standard [8].

II.3.4.2 PTE « Pouvoir Thermo-Electrique »

Cette manipulation se base sur l'effet Seebeck qui consiste en l'apparition d'une différence de potentiel électrique sous l'effet d'un gradient thermique appliqué aux jonctions d'un matériau. Le PTE est très sensible aux variations structurales du matériau en l'occurrence aux défauts. Cette manipulation est tout à fait indépendante de la géométrie de l'échantillon. La figure II-13 présente le montage de mesure PTE.

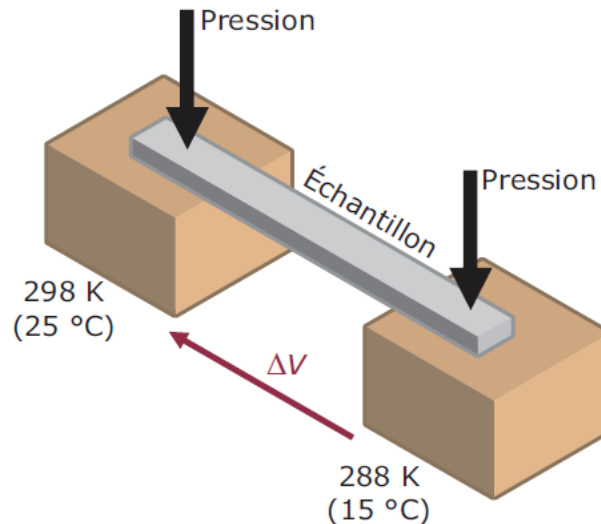


Figure II-13 Schéma de principe de fonctionnement du PTE [9].

L'échantillon est serré par deux blocs métalliques de références. L'une des jonctions est maintenue à la température T (ici 15°C), l'autre à la température $T + dT$ (ici 25 °C), la température de la pièce étant maintenue à $T + (dT) / 2$ (ici 20 °C), une différence de potentiel est ainsi créée. Le PTE relatif de l'échantillon par rapport à la référence à la température $T + (dT) / 2$ (ici 20 °C) est donné par la relation $dS = dV/dT$ (en nV/°C), avec $dS = S_{\text{échantillon}} - S_{\text{référence}}$ [8].

II.3.4.3 DRX « Diffraction aux Rayons X »

La méthode consiste à bombarder l'échantillon avec des rayons X et à récolter les faisceaux diffusés par les atomes de ce dernier. Les rayons X diffusés présentent des interférences entre eux qui vont être alternativement constructives et destructives. Cependant, leur intensité présente des maxima liés aux interférences constructives. Ce phénomène s'appelle la diffraction des rayons X. Ces maxima sont, en fait, des pics de diffraction qui correspondent à un plan cristallographique particulier et peuvent être déterminés par la loi de Bragg :

$$2. d. \sin \theta = n. \lambda \quad (\text{II.9})$$

Avec :

- d : la distance interréticulaire, c'est-à-dire la distance entre deux plans cristallographiques,
- θ : le demi-angle de déviation (moitié de l'angle entre le faisceau incident et la direction du détecteur),
- n : l'ordre de réflexion (nombre entier),
- λ : la longueur d'onde des rayons X qui est de l'ordre de grandeur des distances interatomiques (quelques Angströms).

La figure II-14 présente en (a) le schéma d'un diffractomètre et en (b) la géométrie expliquant la loi de Bragg.

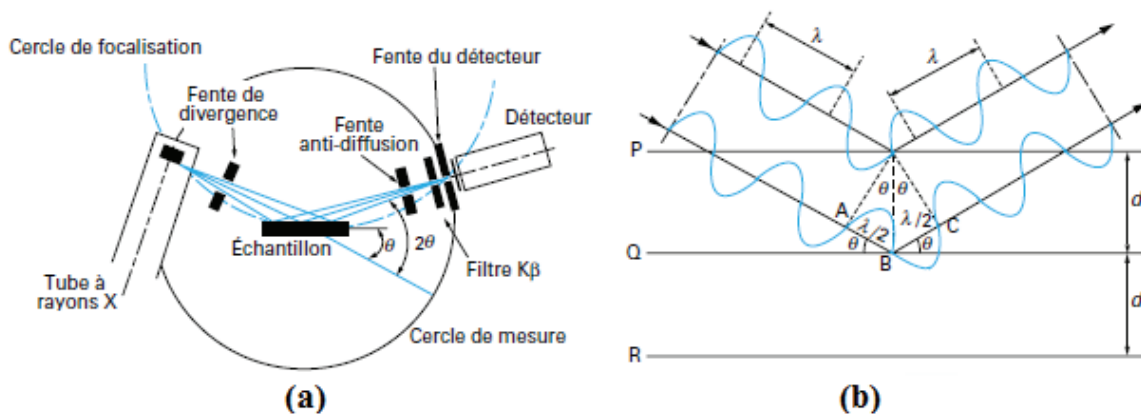


Figure II-14 Principe de fonctionnement de la DRX. (a) Schéma d'un diffractomètre ; (b) Géométrie expliquant la loi de Bragg [10].

Cependant, le diffractomètre détecte plusieurs pics caractéristiques des plans cristallins de l'échantillon analysé et les enregistre en fonction de l'angle de déviation 2θ du faisceau ; la courbe obtenue s'appelle le diffractogramme. Ce dernier permet d'identifier les phases présentes dans l'échantillon par comparaison avec les diffractogrammes des cristaux connus (déjà analysés). La figure II-15 présente le diffractogramme du cristal de Fer bcc.

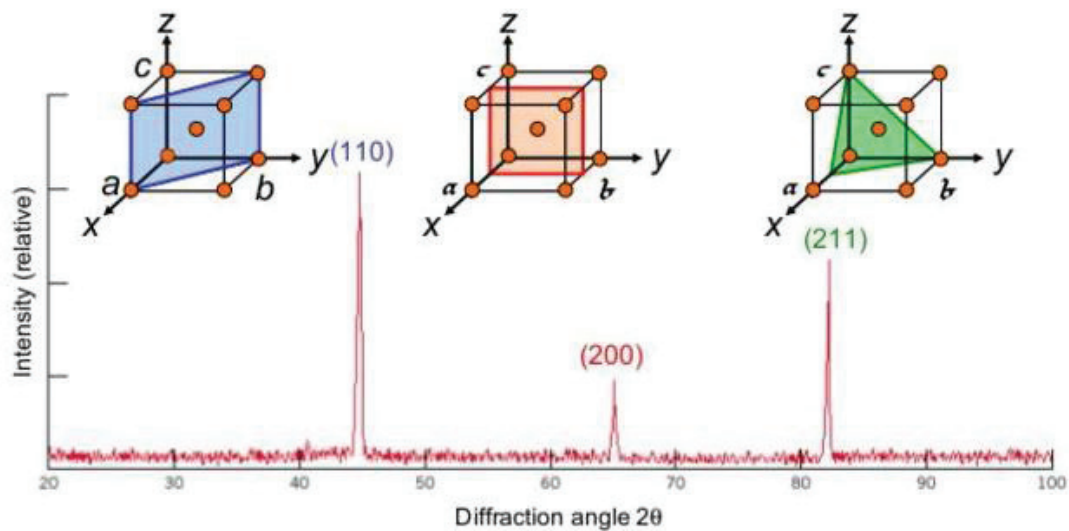


Figure II-15 Diffractogramme d'un échantillon de Fer bcc [8].

L'appareil utilisé est le diffractomètre D8 ADVANCE de Brüker AXS. Il est équipé d'un tube de rayons X à cible de cuivre. Deux détecteurs sont utilisés : le détecteur LynxEye qui présente l'avantage d'être ultra-rapide par l'acquisition simultanée d'un large domaine angulaire 2θ (2.6°) et, le détecteur Sol-X dont le discriminateur en énergie permet de supprimer la fluorescence X [8].

II.4 Protocole de caractérisations magnétiques et électriques

Le travail expérimental mené durant cette thèse se distingue par son caractère exploratoire du fait de peu de données expérimentales et/ou théoriques recueillies dans la littérature se référant à notre sujet. Afin d'établir un protocole de suivi des propriétés magnétiques et

électriques plusieurs paramètres doivent être pris en compte, à savoir : le nombre de températures de vieillissement, le nombre d'échantillons par température, l'intervalle entre deux points de mesures et le nombre de caractérisations par échantillon.

Afin d'alléger le protocole de caractérisation il a fallu diminuer au maximum le nombre de caractérisations magnétiques / électriques et contrôler les intervalles de sortie des échantillons pour la mesure. Signalons que le nombre de températures et le nombre d'échantillons ont été fixés dès le départ et il n'a pas été possible de les diminuer.

II.4.1 Intervalles de mesures

- **Essais de vieillissement des échantillons AFK502**

Le principe de la détermination des intervalles de mesures est fonction de l'évolution des grandeurs magnétiques vérifiée sur seulement quatre échantillons en faisant deux caractérisations au maximum par échantillon (le reste des échantillons ne sort pas des fours). La vérification est faite sur un échantillon nu de chaque nuance (RN, FP6, FP8 et FP10), par la caractérisation en quasi-statique à champ H imposé à 0.1 Hz et en dynamique à induction sinusoïdale B imposée de 2 T à 400 Hz. Ces échantillons doivent provenir de la température de vieillissement la plus haute (300 °C) car plus la température est élevée plus les propriétés magnétiques des échantillons sont susceptibles d'évoluer en fonction du vieillissement.

Ainsi, après un intervalle X (quelques jours), choisi arbitrairement au départ du vieillissement :

- Si les caractérisations de ces échantillons ne révèlent pas de changement :
 - → action sur la température testée : on remet ces échantillons au four avec les autres et on double l'intervalle de vieillissement ($2 \times X$),
 - → action sur les autres températures : on double l'intervalle de vieillissement pour toutes les températures de vieillissement ($2 \times X$),
- Si les caractérisations révèlent des changements :
 - → action sur la température testée : on sort tous les échantillons de la température correspondante pour **une caractérisation complète** et on double l'intervalle de vieillissement ($2 \times X$),
 - → action sur la température directement inférieure : On refait le même test avec quatre échantillons nus provenant de la température directement inférieure.

- **Essais de vieillissement des échantillons Nanophy**

Les essais antérieurs d'Aperam sur le vieillissement des échantillons Nanophy ont permis d'affiner d'avantage leur protocole de vieillissement. Mis à part l'effet de la température sur le vieillissement des échantillons (plus la température augmente plus les échantillons vieillissent), un autre point très important concernant la perméabilité des échantillons Nanophy a été remarqué. En effet, il a été constaté que plus la perméabilité est élevée plus le vieillissement est marqué. Cependant, au lieu de caractériser quatre échantillons correspondant à chaque nuance comme c'est le cas pour les AFK502, seulement un échantillon de la plus haute perméabilité et de la plus haute température de vieillissement est

testé (un $\mu 500000$ vieilli à 240 °C). Le test est fait avec deux caractérisations magnétiques en champ H imposé à 1 Hz et en dynamique à induction B sinusoïdale imposée de 0.8 T à 1 kHz. Ainsi, après un intervalle X (quelques heures seulement), choisi arbitrairement au départ du vieillissement :

- Si les caractérisations de l'échantillon ne révèlent pas de changement :
 - → action sur la température testée : on remet l'échantillon au four avec les autres et on double l'intervalle de vieillissement ($2 \times X$),
 - → action sur les autres températures : on double l'intervalle de vieillissement pour toutes les températures de vieillissement ($2 \times X$),
- Si les caractérisations révèlent des changements :
 - → action sur les autres températures de vieillissement : on sort tous les échantillons de la même perméabilité pour **une caractérisation complète** et on double leur intervalle de vieillissement ($2 \times X$).
 - → action sur la température testée : on refait le même test avec un échantillon de perméabilité directement inférieure.

Il est à savoir que ces deux méthodes de protocole de vieillissement ont été appliquées du mieux possible à cause des diverses tâches à accomplir simultanément. Le fait que les essais de vieillissements des deux types de matériaux se déroulaient au même temps constituait une contrainte majeure à l'application efficace de ces deux protocoles de vieillissement.

II.4.2 Caractérisations complètes par échantillon

- **Caractérisation complète des échantillons AFK502 :**

Pour chaque échantillon AFK502 huit caractérisations B(H) ont été effectuées (plus de 1000 caractérisations ont été faites avant le lancement du vieillissement) :

Quasi-Statique à champ H imposé (Hystérésigraphe n° 1)

- Deux caractérisations à champ H imposé en quasi-statique à 0.1 Hz pour deux niveaux de champs : $H_{\max} = 300$ A/m et 2000 A/m pour les échantillons AFK502 Standard, (2000 A/m et 6000 A/m pour le reste des nuances HLE).

Dynamique à induction B imposée (Hystérésigraphe n° 2)

- Trois caractérisations à induction B sinusoïdale imposée pour 400 Hz pour les niveaux d'inductions suivants : 1, 1.5 et 2 T,
- Trois caractérisations à induction B sinusoïdale imposée de 2 T pour les fréquences suivantes : 250, 800 et 1600 Hz.

A la fin de ces huit caractérisations magnétiques, une dernière caractérisation de désaimantation est appliquée en imposant un champ H suffisamment lent avec une amplitude décroissante jusqu'à atteindre 0 A/m.

De plus, une mesure de résistivité pour les nuances nues a été faite.

- **Caractérisation complète des échantillons Nanophy :**

Plus de 300 caractérisations avant le lancement du vieillissement ont été faites.

Quasi-Statique à champ H imposé (Hystérésigraphe n° 1)

- Mesure à saturation à 1 Hz pour $\mu 3000$, $\mu 30000$ et $\mu 500000$,
- Mesure à saturation à 100 Hz pour seulement $\mu 200$.

Dynamique à induction B imposée (Hystérésigraphe n° 2)

- Mesure à 5 kHz à 0.2 et 0.5 T pour toutes les nuances,
- Mesure à 10 kHz à 0.2, 0.5 et 0.8 T pour toutes les nuances sauf $\mu 500000$,
- Mesure à 1 kHz à 0.2, 0.5 et 0.8 T pour la nuance $\mu 500000$.

Fréquentielle (impédance-mètre)

- Mesure de 1 kHz à 100 MHz pour le $\mu 200$,
- Mesure de 1 kHz à 10 MHz pour le $\mu 3000$ et le $\mu 30000$,
- Mesure de 40 Hz à 10 MHz pour le $\mu 500000$.

De plus, une mesure de résistivité pour chaque nuance a été faite.

En réalité deux vieillissements ont été appliqués sur les échantillons $\mu 500000$: le premier sans désaimantation après la caractérisation magnétique complète de l'échantillon (six au total) et le deuxième avec désaimantation après la caractérisation magnétique complète. La caractérisation de désaimantation est appliquée de la même manière que pour les échantillons AFK502.

II.5 Conclusion

Le travail expérimental effectué a été très coûteux en termes de temps et d'efforts. La phase la plus coûteuse a été celle du lancement des traitements de vieillissement. Par la suite, plusieurs périodes de caractérisation complète (électrique et magnétique) se sont succédées en s'appuyant sur les protocoles de vieillissement. De plus, le traitement informatique des mesures a été lui aussi très coûteux en temps. En effet, derrière chaque caractérisation magnétique et électrique, des algorithmes développés avec le logiciel Matlab ont été utilisés pour extraire les grandeurs correspondantes et tracer leurs évolutions en fonction du temps de vieillissement.

Plusieurs mesures ont été effectuées sans être exploitées dans cette thèse. Cela concerne certaines caractérisations magnétiques effectuées au laboratoire Ampère et aussi certaines mesures de microstructure effectuées par le laboratoire MATEIS. Pour exemple, on peut citer le matériau Nanophy $\mu 3000$ dont les caractérisations magnétiques et électriques n'ont pas encore été exploitées. Par ailleurs, au laboratoire MATEIS, les mesures de Microscopie Electronique à Balayage (MEB) et de Nano-indentation appliquées sur les nanocristallins et les mesures de Microscopie Optique (MO) appliquées sur les Fer-Cobalt n'ont pas été exploitées. Cependant, ces mesures restent précieuses et seront exploitées dans des travaux futurs.

II.6 Références

- [1] CEI 404-Parie 2-8, “Normes internationales : Méthodes de mesures des caractéristiques magnétiques des matériaux magnétiques.”.
- [2] T. Chailloux, “Caractérisation et modélisation de matériaux magnétiques en hautes températures en vue d’une application au filtrage CEM.,” thèse, Université Claude Bernard - Lyon I, 2011.
- [3] O. Messal, “Characterization and modeling of the thermomagnetic behavior of FeNi alloys for virtual prototyping,” These, Université Claude Bernard - Lyon I, 2013.
- [4] F. Fiorillo, “Chapter 7 - Characterization of Soft Magnetic Materials,” in *Characterization and Measurement of Magnetic Materials*, San Diego: Academic Press, 2004, pp. 307–474.
- [5] F. Alves, P. Houée, M. Lécivain, and F. Mazaleyrat, “New design of small-angle magnetization rotation device: Evaluation of saturation magnetostriction in wide thin ribbons,” *Journal of Applied Physics*, vol. 81, no. 8, pp. 4322–4324, Apr. 1997.
- [6] J.-B. Desmoulins, “Contribution à l’étude de la magnetostriction dans les structures biphasées : couplages magnétique-mécanique-thermique dans les matériaux nanocristallins de type finemet en vue de la réalisation de composants inductifs,” Cachan, Ecole normale supérieure, 1999.
- [7] T. Waeckerlé, “Matériaux nanocristallins : Application en électronique de puissance,” France, Livrable du projet GENOME, Sep. 2014.
- [8] J. Charpy, “Suivi des mécanismes de vieillissement dans des matériaux magnétiques de dernière génération pour des applications en aéronautiques,” Laboratoire MATEIS, France, Projet de fin d’études, Mars. 2016.
- [9] X. Kleber, V. Massardier, and J. Merlin, “La mesure du pouvoir thermoélectrique : une technique originale de contrôle des alliages métalliques.” *Techniques de L’ingénieur*, 10-Sep-2005.
- [10] N. Broll, “Caractérisation de solides cristallisés par diffraction X.” *Techniques de l’ingénieur*, 10-Apr-1996.

III. Chapitre III : Comportement magnétique des nanocristallins haute et moyenne perméabilités en fonction du vieillissement thermique.

III.1 Introduction

Les caractérisations magnétiques des matériaux nanocristallins, durant le vieillissement thermique, ont montré des comportements différents selon leur perméabilité et leur finition. De ce fait, l'analyse des résultats est faite séparément pour chacune des nuances. Dans ce chapitre on s'intéresse aux matériaux nanocristallins à haute et moyenne perméabilités, typiquement, le « $\mu 500000$ » et le « $\mu 30000$ », finition nue (sans enrobage ni imprégnation).

Deux campagnes de vieillissement thermique accéléré du matériau « $\mu 500000$ » ont été menées, une première, sans désaimantation des échantillons après chaque étape de caractérisation et une deuxième, avec désaimantation. Au cours de la première campagne de vieillissement (sans désaimantation), nous avons constaté des formes de cycles particulières avec l'apparition de cassures au niveau de l'induction rémanente et des pentes très raides. Afin de pallier cet aspect, une deuxième campagne de vieillissement a été effectuée en désaimantant les matériaux avant leur remise aux fours pour le vieillissement. Cette précaution n'a pas été nécessaire pour les échantillons $\mu 30000$ car leur induction rémanente est de seulement 0.02 T, cette valeur est très faible par rapport à celle des $\mu 500000$ qui est de 0.6 T.

Après avoir présenté dans le deuxième chapitre les dispositifs de caractérisation et la démarche adoptée pour le suivi des propriétés magnétiques des matériaux, nous abordons dans ce chapitre, les résultats obtenus pour le vieillissement. Trois essais de vieillissement sont étudiés : vieillissement du matériau $\mu 500000$ sans désaimantation (noté VSD), vieillissement du matériau $\mu 500000$ avec désaimantation (noté VAD) et enfin, vieillissement du matériau $\mu 30000$. Pour chaque matériau, plusieurs échantillons (38 au total) sont considérés et quatre températures de vieillissement accéléré sont envisagées. Face à l'exhaustivité des paramètres susceptibles d'évoluer, seuls les résultats pertinents sont présentés. Par la suite, une interprétation des résultats est effectuée grâce à l'étude de l'évolution des énergies d'anisotropie et en s'appuyant sur des résultats de mesures de microstructures, de magnétostriction et de résistivité. Puis, une comparaison succincte sera faite entre les vieillissements des échantillons $\mu 500000$ et le vieillissement des échantillons $\mu 30000$ grâce à un schéma illustratif. Pour clore ce chapitre, une corrélation entre les changements de microstructure et l'évolution des énergies d'anisotropie sera envisagée.

III.2 Résultats de vieillissement

Les grandeurs relevées pour chaque étape de vieillissement sont reportées en valeurs relatives par rapport aux valeurs initiales (avant vieillissement) (équation III.1). Les courbes de l'évolution des propriétés magnétiques sont tracées en fonction du temps de vieillissement t_a et sont paramétrées en température de vieillissement T_a . Les courbes tracées représentent à chaque fois la moyenne de l'évolution de la propriété magnétique de deux échantillons identiques.

$$\frac{\Delta PM}{PM} = \frac{PM(t_a) - PM(t_a=0)}{PM(t_a=0)} \times 100\% \quad (\text{III.1})$$

PM : Propriété magnétique

III.2.1 Vieillissement des échantillons $\mu 500000$ nus sans et avec désaimantation

III.2.1.1 Mesures des cycles d'hystérésis statiques

La figure III-1 présente une superposition de plusieurs cycles d'hystérésis statiques mesurés à 1 Hz et à la température ambiante pour différentes durées de vieillissements thermiques accélérés à la température de 240 °C du matériau $\mu 500000$. Les figures (a), respectivement (b) correspondent aux vieillissements sans désaimantation (VSD), respectivement avec désaimantation (VAD).

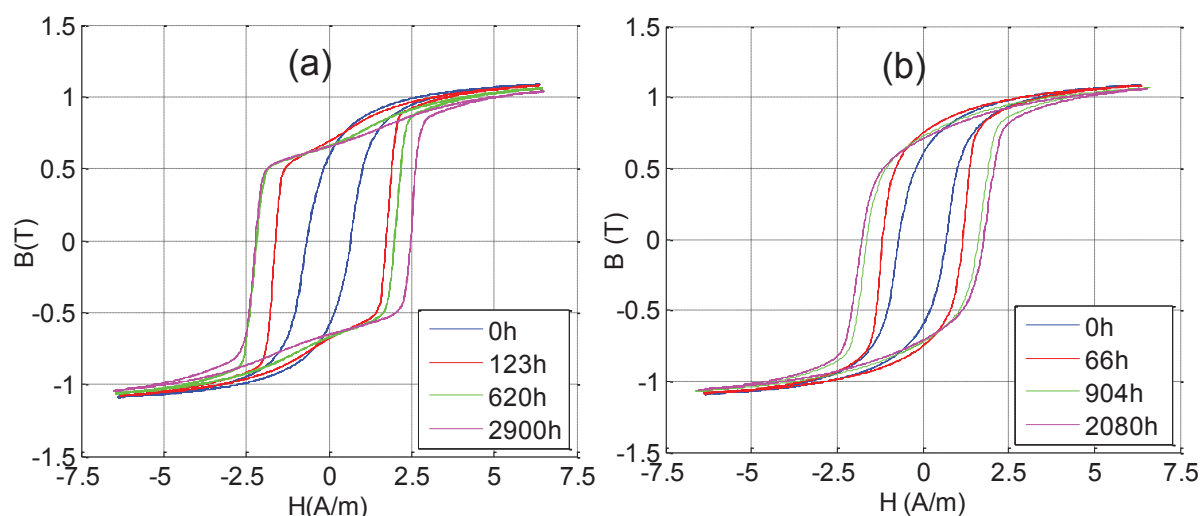


Figure III-1 Cycles d'hystérésis statiques du $\mu 500000$ mesurés à 1 Hz pour plusieurs durées de vieillissement thermique accéléré à la température de 240 °C. (a) : sans désaimantation ; (b) : avec désaimantation.

Pour les deux types d'essais (VSD et VAD), les cycles s'élargissent en fonction de la durée du vieillissement. Au cours du temps de vieillissement, la valeur du champ coercitif et les pertes par hystérésis augmentent, la perméabilité maximale quant à elle diminue. La non désaimantation des échantillons provoque, au cours du vieillissement, un changement de forme des cycles d'hystérésis comme le montre la figure (a). Les cycles passent d'une forme arrondie à une forme pratiquement carrée avec des cassures au niveau de l'induction rémanente B_r . Par contre, le vieillissement avec désaimantation montre une évolution des cycles d'hystérésis sans changement de forme comme le traduit bien la figure (b).

III.2.1.1.1 Champ coercitif H_c

La figure III-2 présente l'évolution de la valeur du champ coercitif H_c en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement considérées et pour les deux types de vieillissement VSD et VAD. Les évolutions de la valeur du champ coercitif sont monotones et croissantes. Par ailleurs, plus T_a augmente plus H_c croît. Seul l'essai de vieillissement VAD à 100 °C montre très peu d'évolution de H_c . Pour les deux types de vieillissement (VSD et VAD), les évolutions présentent une forte cinétique d'augmentation au départ puis une faible cinétique, à partir de 600 heures. Par ailleurs, les augmentations de H_c pour VSD sont plus fortes que celles pour VAD. Par exemple, pour un vieillissement thermique accéléré à $T_a = 240$ °C et pour $t_a = 2000$ heures, H_c atteint environ 240 % d'augmentation pour VSD alors qu'il atteint environ 150 % pour VAD. La non-démagnétisation des échantillons après chaque étape de caractérisation dégrade fortement la valeur du champ coercitif H_c .

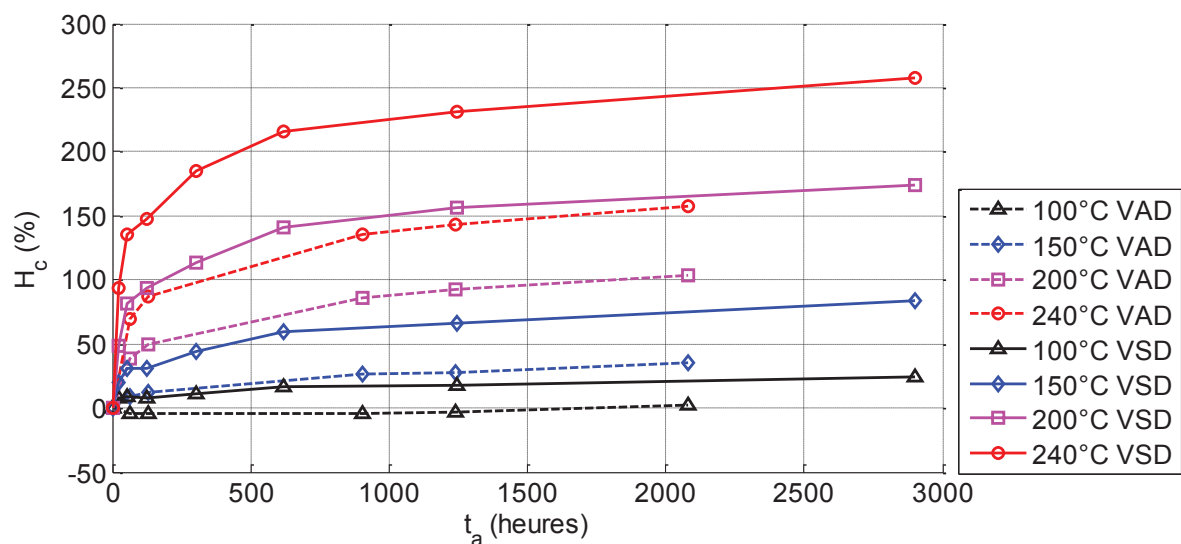


Figure III-2 Evolution de H_c du $\mu 500000$ sans et avec désaimantation en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement. VAD : avec désaimantation ; VSD : sans désaimantation.

III.2.1.1.2 Perméabilité maximale μ_{max}

La figure III-3 présente l'évolution de la perméabilité maximale pour les vieillissements VSD et VAD du $\mu 500000$ en fonction de t_a et T_a . Pour le vieillissement VSD, μ_{max} diminue en fonction de la durée du vieillissement. Cette diminution qui est faible pour la température de vieillissement de 100 °C est beaucoup plus marquée pour les vieillissements accélérés à 200 et 240 °C. Pour le vieillissement VAD à 100 et 150 °C, μ_{max} diminue très peu (2 % de diminution après 2000 heures, notons que cette valeur peut être noyée dans l'incertitude de mesure). Par contre, la décroissance de μ_{max} est sensible aux températures de vieillissement à 200 et 240 °C, tout comme pour le VSD. La diminution de μ_{max} est plus importante pour le VSD que pour le VAD. Typiquement, elle atteint, pour 2000 heures à 240 °C, une diminution de 44 % et respectivement 38 % pour les vieillissements VSD et respectivement VAD.

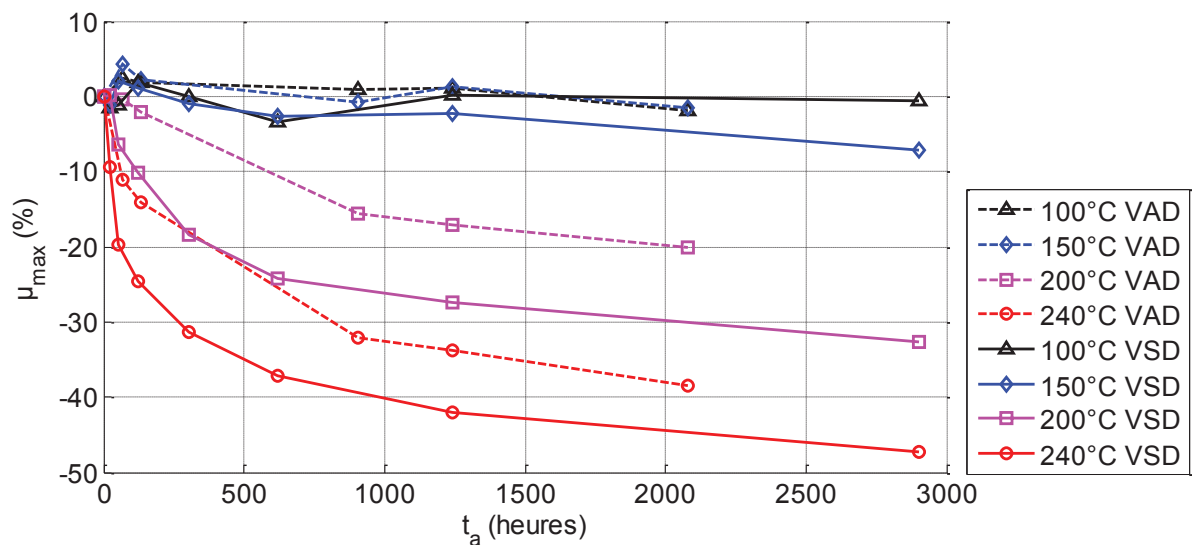


Figure III-3 Evolution de μ_{max} du $\mu 500000$ sans et avec désaimantation en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement. VAD : avec désaimantation ; VSD : sans désaimantation.

III.2.1.1.3 Pertes statiques P_{hys}

La figure III-4 présente l'évolution des pertes statiques en fonction du temps de vieillissement t_a et les quatre températures étudiées T_a pour les deux types de vieillissement VSD et VAD.

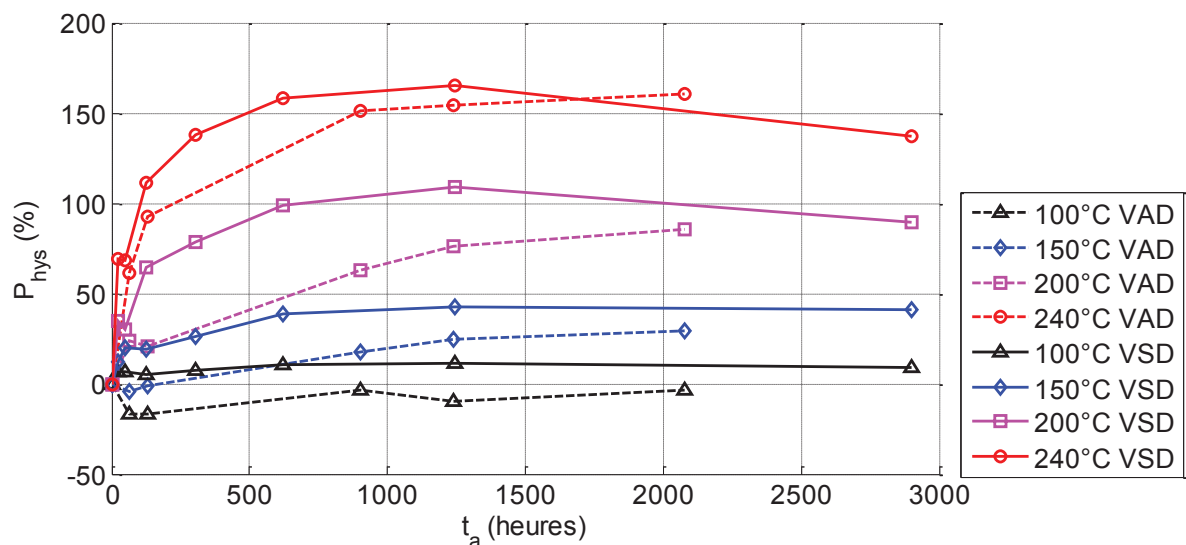


Figure III-4 Evolution de P_{hys} du $\mu 500000$ sans et avec désaimantation en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement. VAD : avec désaimantation ; VSD : sans désaimantation.

Pour le vieillissement VSD et jusqu'à 1250 heures de vieillissement, les évolutions des pertes statiques P_{hys} sont monotones croissantes, de plus, P_{hys} augmente avec T_a . Après 1250 heures de vieillissement, les pertes diminuent sensiblement après avoir atteint un maximum d'augmentation de 90 %, respectivement 160 %, pour le vieillissement accéléré de 200 °C, respectivement 240 °C. Pour le vieillissement aux températures de 100 et 150 °C, l'évolution des pertes statiques s'est quasi-stabilisée après 1250 heures.

En ce qui concerne le vieillissement VAD, les évolutions de P_{hys} sont monotones croissantes excepté pour la température de 100 °C où les pertes P_{hys} diminuent faiblement (-4 % pour 2000 heures). Contrairement au vieillissement VSD, pour les températures 200 et 240 °C, P_{hys} ne diminuent pas après 1250 heures de vieillissement. Par ailleurs, pour la température de vieillissement de 150 °C, les pertes statiques ne semblent pas se stabiliser après 1250 heures de vieillissement et l'on pourrait imaginer, qu'après un temps de vieillissement bien supérieur à 2000 heures, les pertes statiques liées au vieillissement VAD dépasseront celles liées au vieillissement VSD. En effet, c'est déjà le cas pour la température de 240 °C après 1680 heures de vieillissement.

III.2.1.1.4 Induction à saturation B_{sat}

La figure III-5 présente la superposition du cycle d'hystérésis avant vieillissement et de celui obtenu après 4260 heures de vieillissement VSD à 240 °C, les deux cycles sont relevés pour une fréquence de 15 Hz et à température ambiante. Nous constatons que l'induction à saturation reste constante (voir l'agrandissement dans la figure III-5).

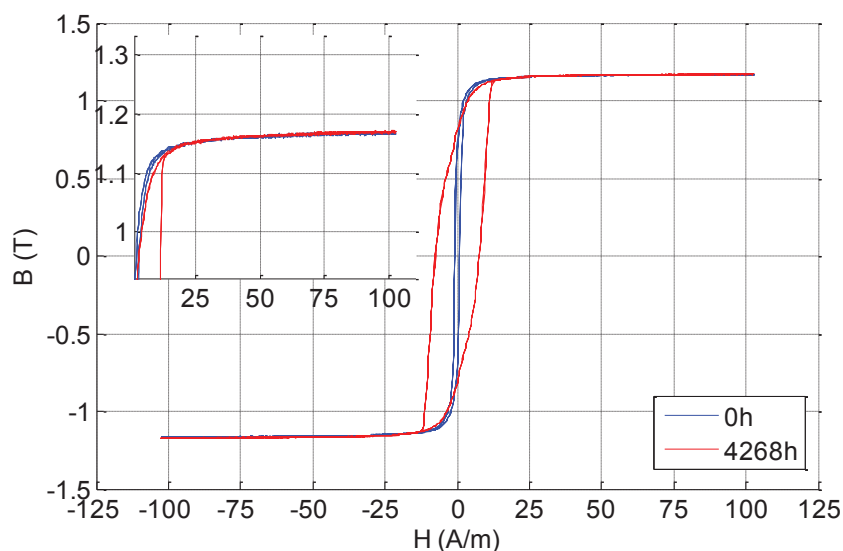


Figure III-5 Cycles d'hystérésis à 15 Hz du matériau $\mu 500000$ non vieilli et après 4260 heures de vieillissement VSD à 240 °C.

III.2.1.2 Mesures des cycles d'hystérésis en dynamique

La figure III-6 présente les cycles d'hystérésis relevés à la température ambiante, pour une induction sinusoïdale imposée avec un maximum (B_{max}) de 0,8 T et une fréquence de 1 kHz, et pour différents temps de vieillissement accéléré à la température de 240 °C. Les figures (a) respectivement (b) correspondent aux vieillissements VSD respectivement VAD.

Pour les deux types de vieillissement, les cycles s'élargissent ce qui est synonyme d'une augmentation des pertes totales. Les cycles d'hystérésis du vieillissement VSD, passent d'une forme elliptique (avant vieillissement) à une forme rectangulaire. Les cycles dynamiques du vieillissement VAD ne changent pas de forme. Cela montre bien l'influence de l'aimantation résiduelle sur le vieillissement thermique des nanocristallins hautes perméabilités.

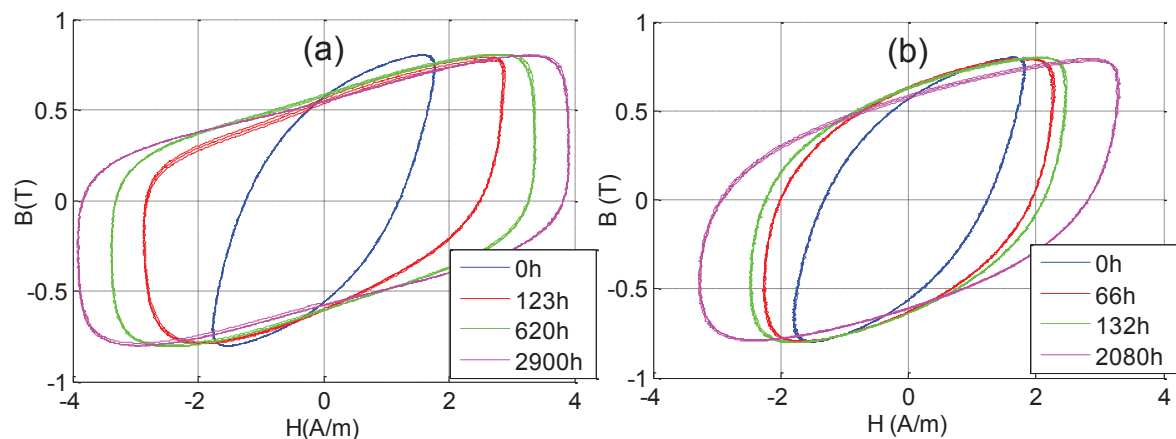


Figure III-6 Cycles d'hystérésis dynamiques mesurés à 0.8 T/1 kHz pour plusieurs durées de vieillissement à la température de 240 °C. (a) : sans désaimantation ; (b) : avec désaimantation.

III.2.1.2.1 Pertes dynamiques (totales) P_{tot}

La figure III-7 présente l'évolution des pertes totales (dynamiques) mesurées à 1 kHz/0.8 T à la température ambiante en fonction de t_a et T_a pour les deux types de vieillissement VSD et VAD.

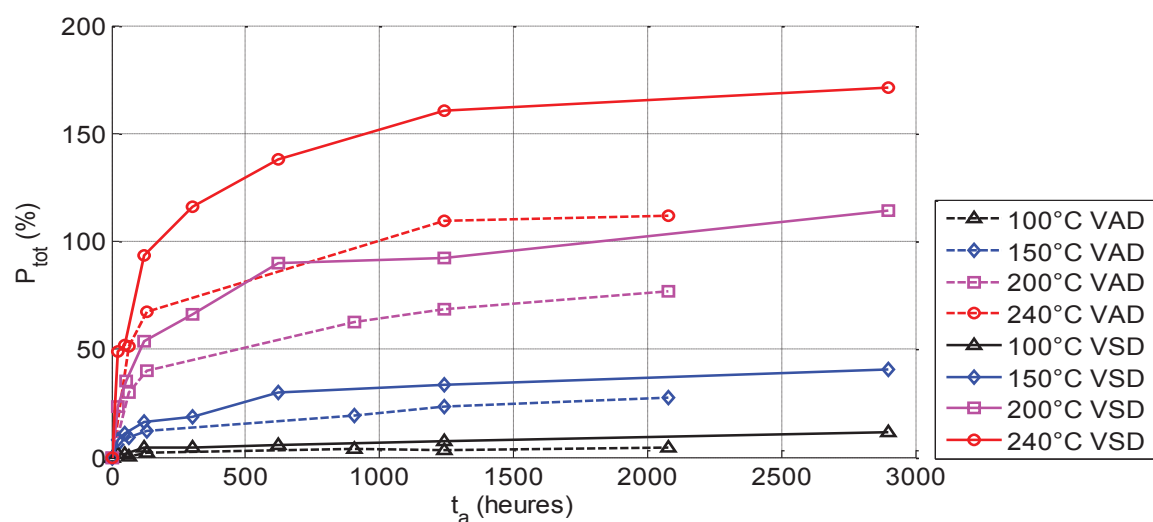


Figure III-7 Evolution de P_{tot} du $\mu 500000$ en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement. Les pertes sont mesurées à 0.8 T (sin)/10 kHz. VAD : avec désaimantation ; VSD : sans désaimantation.

Les évolutions des pertes dynamiques sont monotones croissantes en fonction du temps de vieillissement, par ailleurs, plus T_a augmente plus P_{tot} augmentent pour les deux types de vieillissement (VSD et VAD). Pour les trois températures de vieillissement de 150, 200 et 240 °C, les pertes totales augmentent rapidement au départ puis très peu après 1250 heures, il y a peu d'augmentation pour la température de 100 °C. En ce qui concerne le vieillissement VSD à 200 et 240 °C, contrairement à l'évolution des pertes statiques, les pertes totales ne présentent pas de diminution après 1250 heures. La dégradation des pertes totales est plus importante dans le cas du vieillissement VSD que dans celui du VAD. Quantitativement, pour la température de 240 °C et après 2000 heures de vieillissement, l'augmentation des pertes

totales atteint 165 %, respectivement 110 % pour le vieillissement VSD, respectivement VAD.

III.2.1.3 Mesures à l'impédance-mètre

Ces mesures ne nécessitent pas d'effectuer une désaimantation après chaque étape de mesure car les niveaux d'excitation sont trop faibles pour risquer une aimantation résiduelle des matériaux. Les mesures sont faites sur des échantillons séparés.

La figure III-8 présente l'évolution de la perméabilité complexe (μ' : partie réelle et μ'' : partie imaginaire) en fonction de la fréquence d'un échantillon μ_{500000} vieilli à 240 °C pour plusieurs durées de vieillissement (0, 51, 620 et 2900 heures). Pour le matériau non vieilli, μ' chute rapidement en fonction de la fréquence. Elle passe de 240000 à 188000 pour la gamme de fréquence de 40 Hz à 1 kHz. Par conséquent, la perméabilité μ' est très sensible à la fréquence d'utilisation du nanocristallin. En fonction du vieillissement, la perméabilité μ' chute rapidement et la fréquence de coupure f_c augmente rapidement elle aussi. Cette dernière est relevée au maximum que présente la courbe d'évolution de μ'' (ou bien au point d'inflexion de μ').

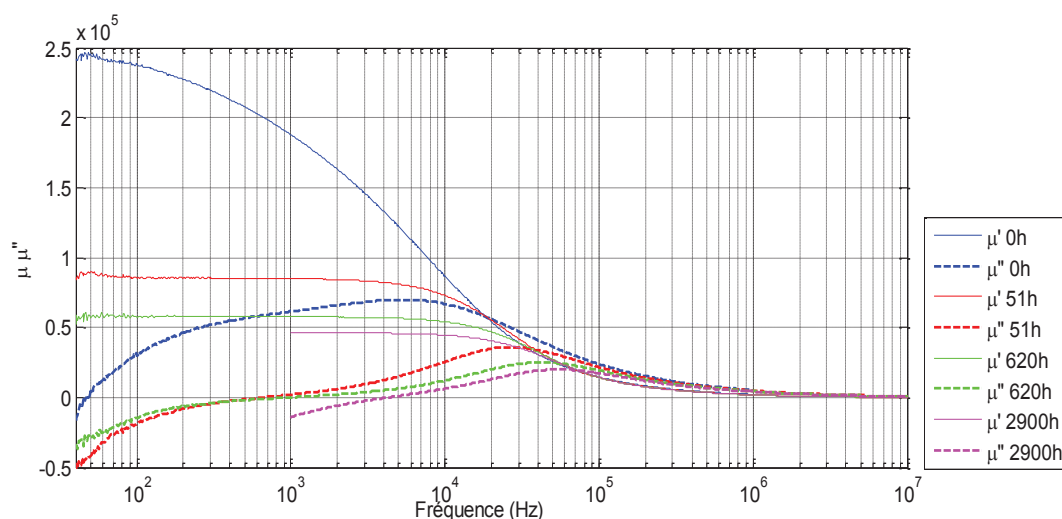


Figure III-8 Perméabilité complexe du μ_{500000} (partie réelle : μ' et partie imaginaire : μ'') pour plusieurs durées de vieillissement à 240°C.

III.2.1.3.1 Perméabilité initiale μ_i

La figure III-9 montre l'évolution de μ_i (donnée par μ') en fonction de t_a et T_a . La perméabilité initiale diminue en fonction du temps de vieillissement. Cette diminution est fortement marquée avec l'augmentation de T_a au début des vieillissements puis s'estompe avec le temps de vieillissement. Le maximum de diminution est de -75 % après un vieillissement de 2900 heures à 240 °C.

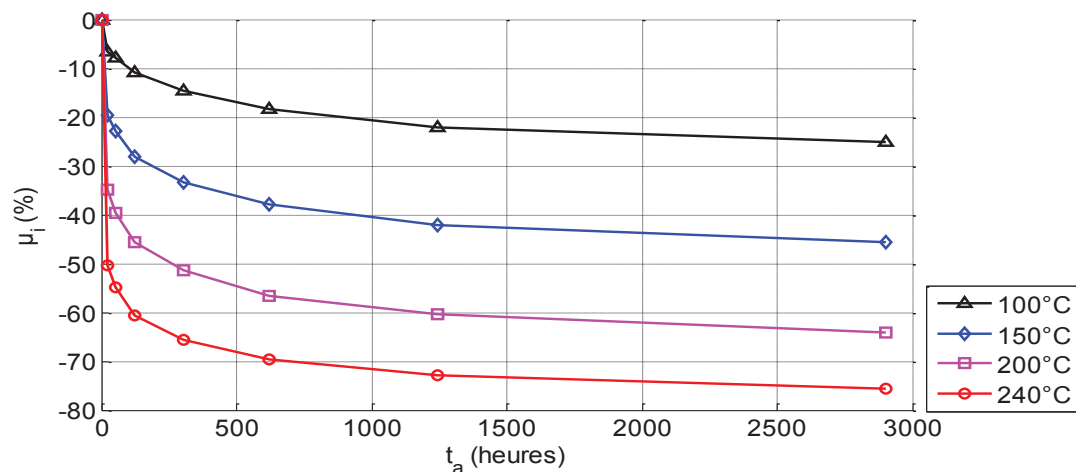


Figure III-9 Evolution de μ_i du $\mu 500000$ en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement.

III.2.1.3.2 Fréquence de coupure f_c

La figure III-10 montre l'évolution de f_c en fonction de t_a et T_a . La fréquence de coupure croît en fonction de t_a et aussi de T_a et atteint 900 % d'augmentation après 2900 heures de vieillissement à 240 °C. Pour les vieillissements de 100 et 150 °C, la fréquence de coupure a tendance à se stabiliser après 1200 heures de vieillissement. Par contre, L'évolution de f_c n'a pas tendance à se stabiliser pour les vieillissements 200 et 240 °C.

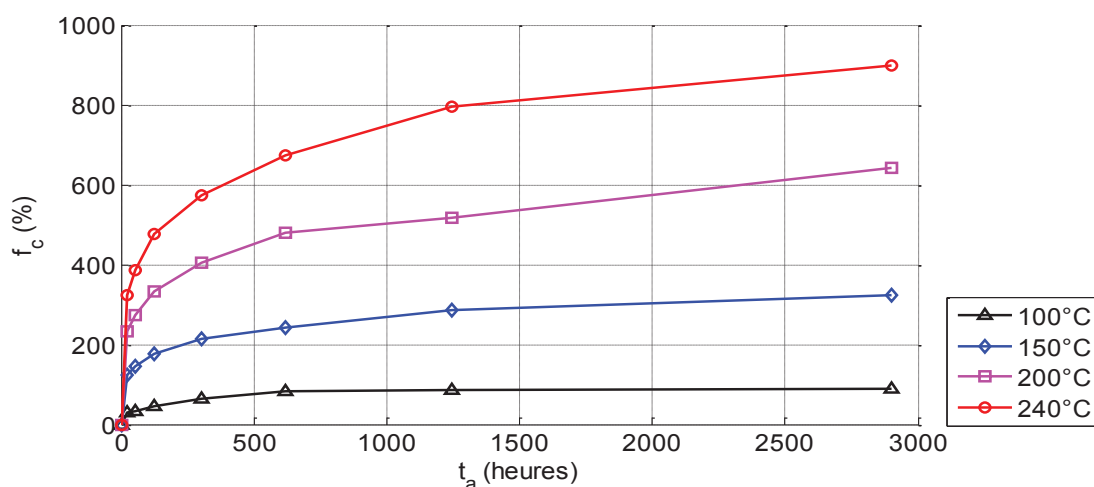


Figure III-10 Evolution de f_c du $\mu 500000$ en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement.

III.2.2 Vieillissement des échantillons $\mu 30000$ nus

III.2.2.1 Mesure des cycles d'hystérésis statiques

La figure III-11 présente plusieurs cycles d'hystérésis statiques d'un échantillon $\mu 30000$ nu pour plusieurs durées du vieillissement à 240 °C. Les cycles sont mesurés à 1 Hz et à la température ambiante. En fonction du vieillissement, les cycles ne présentent pas des changements visibles au niveau du champ coercitif, ni de l'induction rémanente et des pertes statiques (pas d'élargissement des cycles). Néanmoins, les cycles se « penchent »

sensiblement ce qui est synonyme d'une diminution de la perméabilité maximale. L'induction à saturation reste inchangée en fonction du vieillissement comme le montre la figure (b).

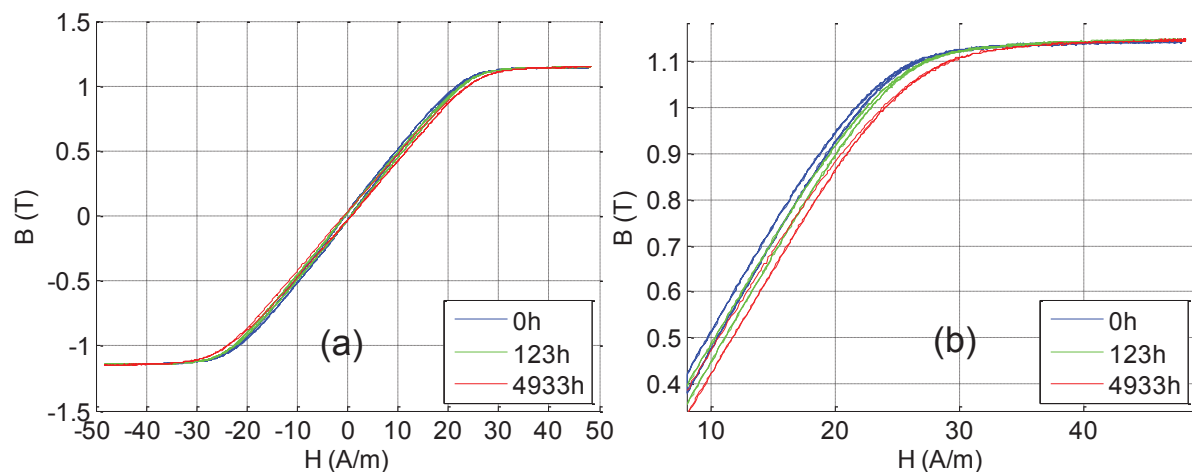


Figure III-11 Cycles d'hystérésis statiques du $\mu 30000$ nus mesurés à 1 Hz pour plusieurs durées de vieillissement à la température de 240 °C. (a) : cycles d'hystérésis ; (b) : agrandissement au niveau du coude.

III.2.2.1.1 Champ coercitif H_c

La figure III-12 présente l'évolution du champ coercitif H_c en fonction de t_a et T_a .

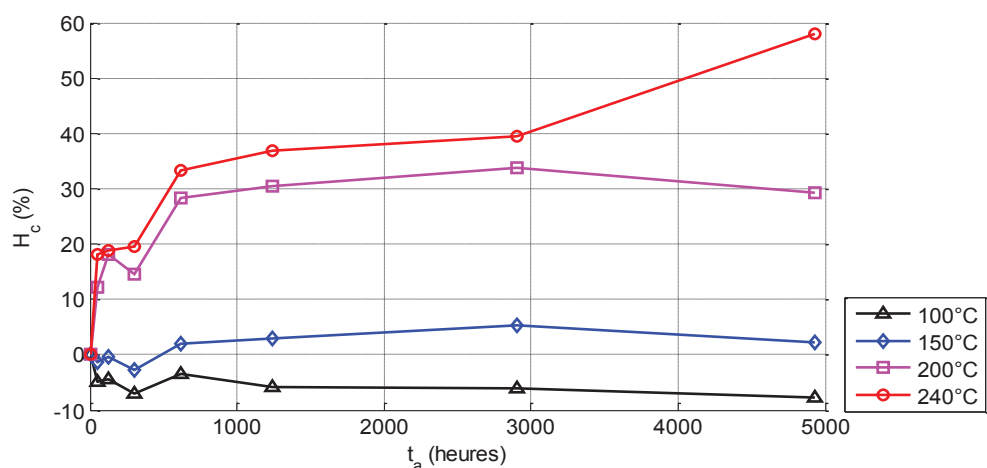


Figure III-12 Evolution de H_c du $\mu 30000$ nu en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement.

En fonction des vieillissements à 100 et 150 °C, H_c présente des évolutions faibles et de sens opposés (diminution de 8 % après 5000 heures de vieillissement à 100 °C et augmentation de 2 % après 5000 heures de vieillissement à 150 °C). En fonction des vieillissements à 200 et 240 °C, H_c présente des évolutions notables. Jusqu'à environ 3000 heures de vieillissement, H_c semble atteindre une asymptote de stabilisation avec 34 % et 40 % d'augmentation pour le vieillissement 200 et 240 °C respectivement. Mais, après ce temps de vieillissement, l'évolution de H_c présente un changement de pente avec une faible diminution de H_c pour le vieillissement 200 °C (29 % d'augmentation après 5000 heures) et une augmentation de H_c pour le vieillissement 240 °C (59 % d'augmentation après 5000 heures).

III.2.2.1.2 Induction rémanente B_r

La figure III-13 présente l'évolution de l'induction rémanente B_r en fonction de t_a et T_a .

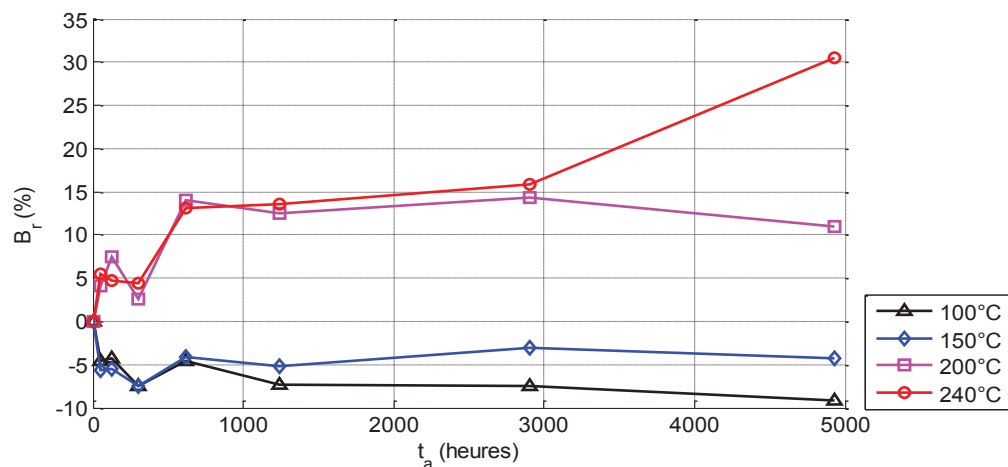


Figure III-13 Evolution de B_r du $\mu 30000$ en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement.

En fonction des vieillissements à 100 et 150 °C, l'induction rémanente B_r présente des évolutions faibles dans le sens d'une diminution. L'induction B_r semble se stabiliser autour de 5 % de diminution pour le vieillissement à 150 °C. Pour le vieillissement à 100 °C, la diminution est faible mais continue de diminuer, elle atteint une réduction de 8 % après 5000 heures. En fonction des vieillissements à 200 et 240 °C, l'induction B_r présente des évolutions similaires avec une stabilisation entre 600 et 3000 heures de vieillissement à la valeur de 14-15 % d'augmentation. A partir de 3000 heures de vieillissement, l'évolution de B_r présente un changement de pente avec une faible diminution de B_r pour le vieillissement à 200 °C (10 % d'augmentation après 5000 heures) et une augmentation de B_r pour le vieillissement à 240 °C (30 % d'augmentation après 5000 heures).

III.2.2.1.3 Perméabilité maximale μ_{max}

La figure III-14 présente l'évolution de la perméabilité μ_{max} en fonction de t_a et T_a .

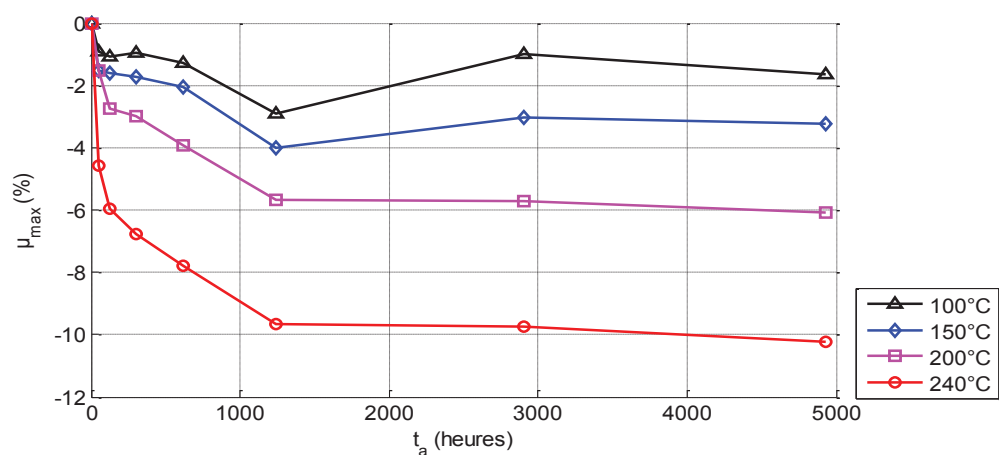


Figure III-14 Evolution de μ_{max} du $\mu 30000$ nu en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement.

La perméabilité maximale présente une diminution monotone en fonction du temps de vieillissement, par ailleurs, plus T_a augmente plus $\mu_{\max}$ diminue. A partir de 1200 heures de vieillissement, $\mu_{\max}$ semble atteindre une stabilité pour tous les vieillissements. Notons que la diminution de $\mu_{\max}$ reste faible pour les quatre vieillissements. Après environ 5000 heures de vieillissement, la diminution de $\mu_{\max}$ atteint seulement 10 %.

III.2.2.2 Mesures des cycles d'hystérésis dynamiques

La figure III-15 présente la superposition de plusieurs cycles d'hystérésis dynamiques du $\mu 30000$ nu vieilli à la température de 240 °C. Chaque cycle correspond à un temps de vieillissement donné. Les mesures sont faites à 10 kHz, avec une induction sinusoïdale imposée de 0.8 T et à la température ambiante.

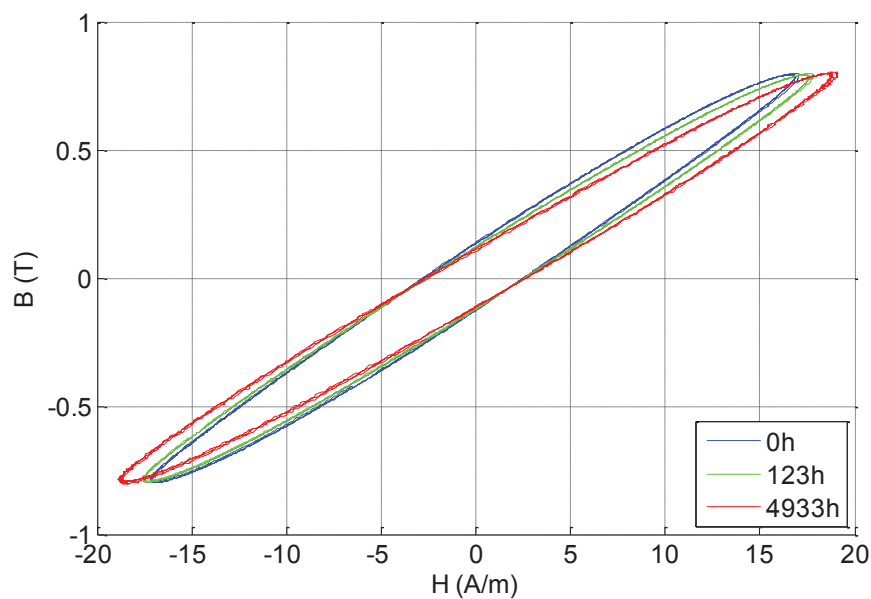


Figure III-15 Cycles d'hystérésis dynamiques du $\mu 30000$ nu mesurés à 0.8 T/10 kHz pour plusieurs durées de vieillissement à la température de 240 °C.

En fonction du vieillissement, les cycles d'hystérésis dynamiques ne semblent pas montrer de changements notables mis à part leur inclinaison due à la baisse de la perméabilité.

III.2.2.2.1 Pertes dynamiques (totales) P_{tot}

La figure III-16 présente l'évolution des pertes totales du $\mu 30000$ en fonction de t_a et T_a .

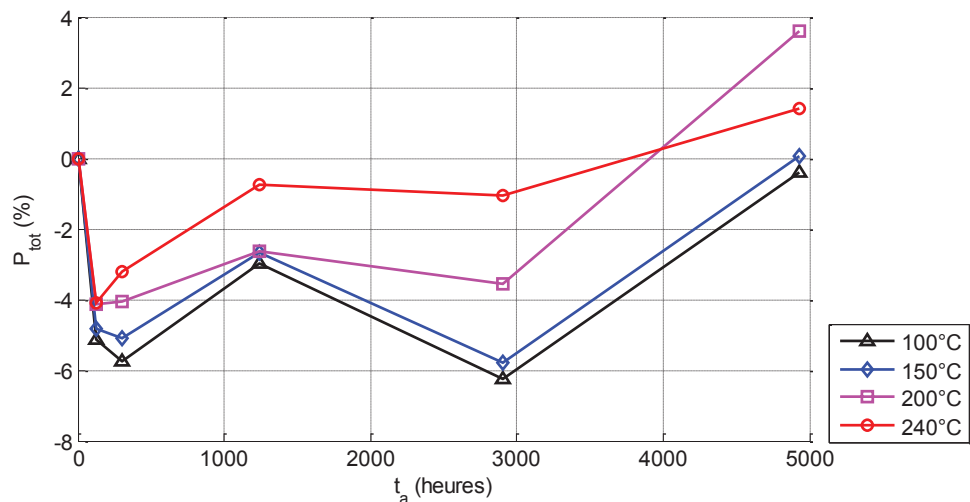


Figure III-16 Evolution de P_{tot} du $\mu 30000$ nu en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement. les Pertes sont mesurées à 0.8 T (sin)/10 kHz.

Quelle que soit la température de vieillissement, les pertes totales présentent une faible diminution jusqu'à environ 3000 heures de vieillissement. Au-delà, les pertes sembleraient augmenter sensiblement. Sur toute cette durée de vieillissement (5000 heures), les évolutions des pertes se situent entre -6 % et 4 % ce qui constitue des variations très faibles.

III.2.2.3 Mesures à l'impédance mètre

La figure III-17 présente la perméabilité complexe (μ' : partie réelle et μ'' : partie imaginaire) d'un échantillon $\mu 30000$ nu vieilli à 240 °C pour plusieurs durées de vieillissement (0, 123, 1244 et 4933 heures).

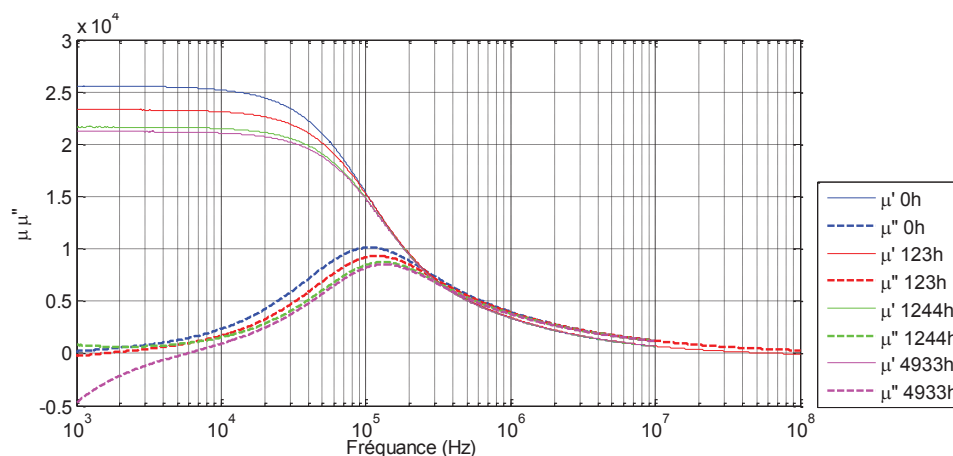


Figure III-17 Perméabilité complexe du $\mu 30000$ nu (partie réelle : μ' et partie imaginaire : μ'') pour plusieurs durées de vieillissement à 240°C.

Pour les fréquences n'excédant pas 1 kHz, la valeur de μ' diminue en fonction du vieillissement ce qui engendre une diminution de la perméabilité initiale μ_i (μ_i est obtenue en prenant la valeur de μ' à la fréquence de 1 kHz). La fréquence de coupure f_c qui correspond à la « crête » de μ'' augmente en fonction du vieillissement.

III.2.2.3.1 Perméabilité initiale μ_i

La figure III-18 présente l'évolution de μ_i en fonction du temps de vieillissement t_a pour les quatre températures de vieillissement.

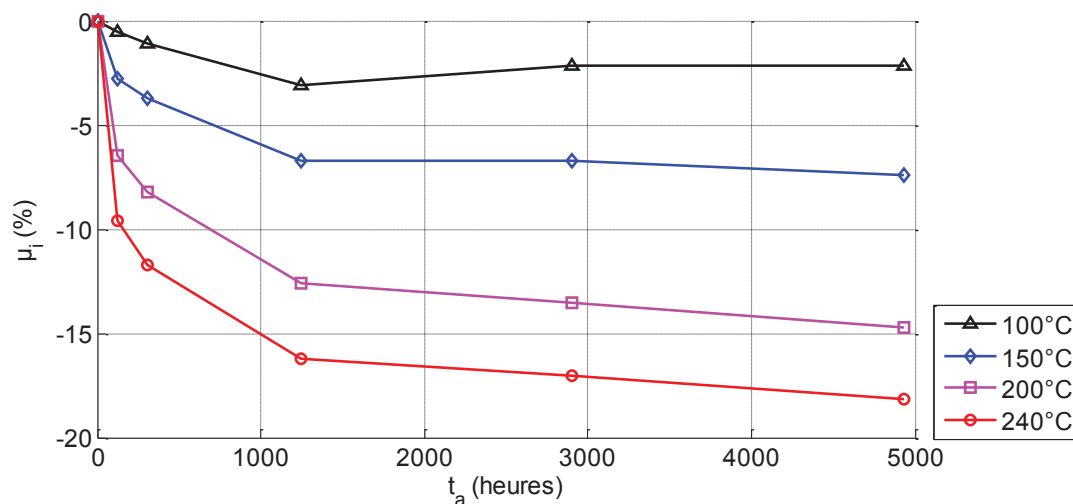


Figure III-18 Evolution de μ_i du μ_{30000} en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement.

La perméabilité initiale μ_i présente des diminutions monotones en fonction du vieillissement. Les vieillissements à 100 et 150 °C semblent atteindre une stabilisation après environ 1200 heures de vieillissement. Pour environ 5000 heures de vieillissement, μ_i atteint -2.5 et -7.5 % pour les vieillissements à 100 et 150 °C respectivement. Pour les vieillissements à 200 et 240 °C, la cinétique de la diminution de μ_i décroît après 1200 heures. Elle atteint 15 % et 18 % de diminution après 5000 heures pour le vieillissement à 200 et 240 °C respectivement.

III.2.2.3.2 Fréquence de coupure f_c

La figure III-19 montre l'évolution de f_c en fonction de t_a et T_a . La fréquence de coupure augmente en fonction de t_a . L'augmentation est monotone en fonction du vieillissement (mis à part le vieillissement à 100 °C qui présente une diminution vers 3000 heures). Pour les vieillissements à 100 et 150 °C, la fréquence de coupure a tendance à se stabiliser après 1200 heures de vieillissement (autour de 10% pour le vieillissement à 150 °C et de 5 % pour le vieillissement à 100 °C). Par contre, les vieillissements à 200 et à 240 °C ne montrent pas cette même tendance. Au début des vieillissements, l'augmentation de f_c montre une cinétique importante qui s'amointrit à partir de 1200 heures de vieillissement. La fréquence f_c atteint 22 et 27 % d'augmentation pour le vieillissement à 200 et à 240 °C respectivement.

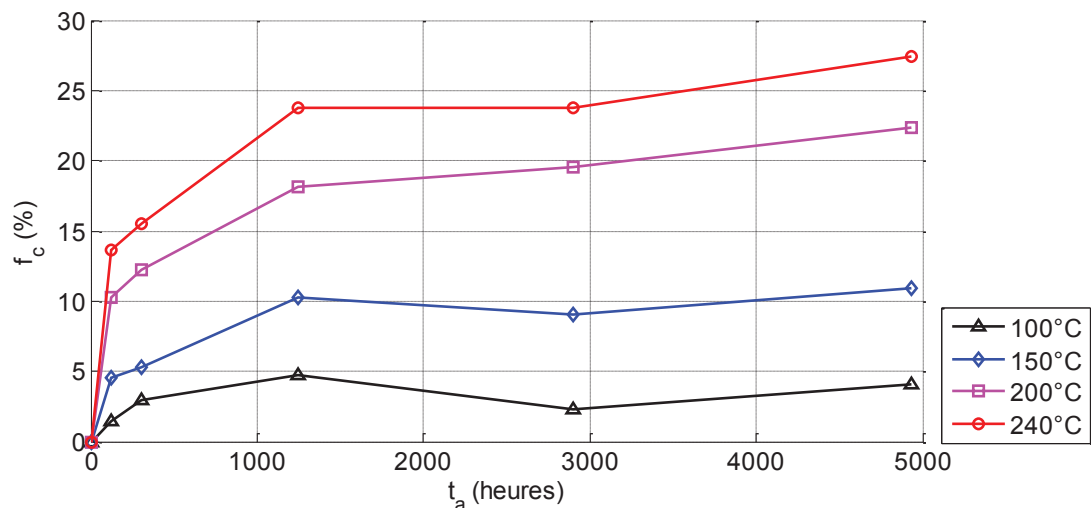


Figure III-19 Evolution de f_c du $\mu 30000$ en fonction de t_a pour les quatre températures de vieillissement.

III.3 Interprétation des résultats de vieillissement

Afin de comprendre et d'avancer des hypothèses qui permettent d'expliquer les évolutions des propriétés magnétiques en fonction du vieillissement, une analyse doit être faite à l'échelle des différentes énergies magnétiques qui gouvernent l'aimantation dans ces matériaux nanocristallins.

III.3.1 Les énergies d'anisotropies

III.3.1.1 Rappel des formulations présentées au chapitre I

- **Energie d'anisotropie totale E_K**

L'énergie totale E_K développée pendant le processus d'aimantation peut être supposée égale à la somme des différentes énergies d'anisotropie. Cette énergie est calculée grâce à la courbe de première aimantation [1]:

$$W\left(\frac{J}{m^3}\right) = \int_0^{B_{sat}} H dB \approx E_K = \langle E_{K1} \rangle + E_{Ku} + E_{\lambda\sigma} \quad (III.2)$$

Où, B_{sat} est l'induction à saturation, $\langle E_{K1} \rangle$ est la moyenne de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline aléatoire, E_{Ku} est l'énergie d'anisotropie induite uniforme et $E_{\lambda\sigma}$ est l'énergie d'anisotropie magnétoélastique.

Selon le type de recuit que les nanocristallins subissent, une énergie d'anisotropie domine sur les autres et impose une forme particulière au cycle d'hystérésis. L'énergie $\langle E_{K1} \rangle$ domine dans les matériaux recuits sans champ magnétique (cycle rond) ; l'énergie E_{Ku} domine quand les matériaux sont recuits sous champ transversal ou respectivement longitudinal (cycle linéaire ou respectivement carré) ; l'énergie $E_{\lambda\sigma}$ domine lorsque un recuit sous contraintes mécanique est appliqué (cycle très linéaire).

- **Compétition entre les énergies d'anisotropie induite uniforme et magnétocristalline aléatoire (modèle d'anisotropie aléatoire amélioré)**

Quand l'énergie d'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle E_{K1} \rangle$ est dominante dans le matériau, la constante d'anisotropie totale $\langle K \rangle$ est donnée par :

$$\langle K \rangle \approx \langle K_1 \rangle = f_x^2 \cdot \frac{K_1^4 \cdot D^6}{A^3} \quad (\text{III.3})$$

Quand l'énergie d'anisotropie induite uniforme E_{Ku} est dominante dans le matériau, la constante d'anisotropie totale $\langle K \rangle$ est donnée par :

$$\langle K \rangle \approx K_u + \frac{1}{2} \cdot f_x \cdot \sqrt{\beta \cdot K_u} \cdot K_1^2 \cdot \left(\frac{D}{\sqrt{A}} \right)^3 \quad (\text{III.4})$$

Où f_x est la fraction cristallisée en volume ; K_u est la constante d'anisotropie induite uniforme ; K_1 est la constante d'anisotropie magnétocristalline ; D est la taille moyenne des grains ; A est la constante d'échange ; β correspond à 1 si les grains ont une symétrie uniaxiale ou à 0.4 si les grains ont une symétrie cubique (voir section I.2.2.2.1 du chapitre I).

- **Energie d'anisotropie magnétoélastique presque nulle**

L'énergie d'anisotropie magnétoélastique $E_{\lambda\sigma}$ dans les matériaux recuits sans ou avec champ extérieur est presque nulle. En effet, l'optimisation des propriétés magnétiques des matériaux nanocristallins nécessite l'élimination de l'énergie d'anisotropie magnétoélastique $E_{\lambda\sigma}$ [2]. Cela est possible par l'évanouissement de la constante de magnétostriction à saturation λ_s car l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ en dépend selon l'équation suivante :

$$E_{\lambda\sigma} \left(\frac{\text{J}}{\text{m}^3} \right) \approx -\frac{3}{2} \cdot \lambda_s \cdot \sigma_i \cdot \sin(\varphi) \quad (\text{III.5})$$

La constante σ_i correspond à la contrainte interne. Cette dernière est le résultat de l'équilibre entre la phase amorphe et la phase cristalline.

L'énergie d'anisotropie totale E_K est fonction de la direction de propagation de l'aimantation locale définie par l'angle spatial φ comme suit : $E_K = \langle K \rangle \cdot \sin^2 \varphi$; où φ est l'angle entre l'aimantation spontanée et l'axe de facile aimantation. Dans le reste du chapitre on considère que l'aimantation spontanée suit la direction de difficile aimantation ($\varphi = 90^\circ$) afin d'évaluer le maximum d'énergie d'anisotropie introduite durant le vieillissement.

III.3.1.2 Quantification de l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ avant vieillissement

Afin d'établir un bilan des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement, il est nécessaire de quantifier la valeur de $E_{\lambda\sigma}$ avant vieillissement dans nos matériaux.

Pour une composition de matériau nanocristallin avec une teneur en silicium donnée, la valeur de λ_s diminue linéairement en fonction de la fraction cristallisée f_x jusqu'à s'annuler [3], [4]. Cette évolution est modélisée par :

$$\lambda_s = f_x \cdot \lambda_s^{\text{FeSi}} + (1 - f_x) \cdot \lambda_s^{\text{am}} \quad (\text{III.6})$$

λ_s^{FeSi} représente la constante de magnétostriction de la phase cristalline ; λ_s^{am} représente la constante de magnétostriction de la phase amorphe et f_x représente la fraction cristallisée.

La figure III-20 de [4] présente l'évolution de λ_s en fonction de la fraction cristallisée pour un matériau nanocristallin $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$.

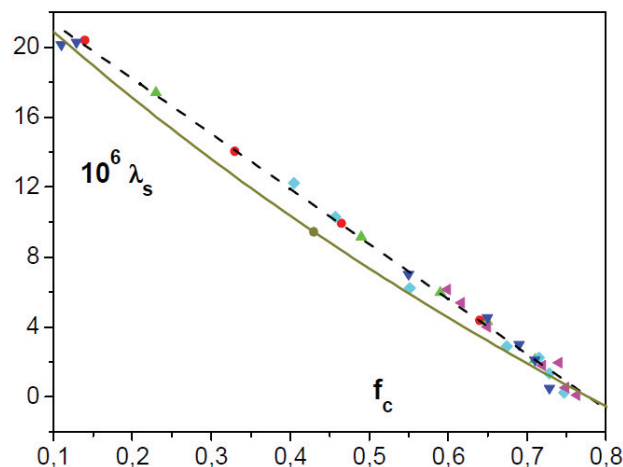


Figure III-20 Evolution de λ_s selon la fraction cristallisée pour un nanocristallin $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$. La courbe en pointillés représente le fitting des points expérimentaux avec l'équation (III.6) [4] p.40.

Selon [4], l'identification paramétrique des constantes de l'équation (III.6) avec les points expérimentaux donne : $\lambda_s^{\text{am}} = 24.4 \cdot 10^{-6}$ et $\lambda_s^{\text{FeSi}} = -7 \cdot 10^{-6}$. Par ailleurs, les mesures initiales (avant vieillissement) de λ_s sur le banc SAMR (Small Angle Magnétisation Rotation) du laboratoire SATIE donnent :

- Sur un ruban précurseur amorphe $\lambda_s^{\text{am}} = 24.9 \cdot 10^{-6}$ (proche de $24.4 \cdot 10^{-6}$)
- Sur un ruban nanocristallin $\mu_{500000} \lambda_s = 0.15 \cdot 10^{-6}$

Utilisant l'équation (III.6), les constantes sont identifiées et la mesure de λ_s permet de trouver la fraction cristallisée des nanocristallins μ_{500000} avant vieillissement. Après calcul, la fraction cristallisée f_x est estimée de 0.77.

La figure III-21 présente l'évolution de l'énergie $E_{\lambda\sigma}$ en fonction de la fraction cristallisée pour un nanocristallin $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$.

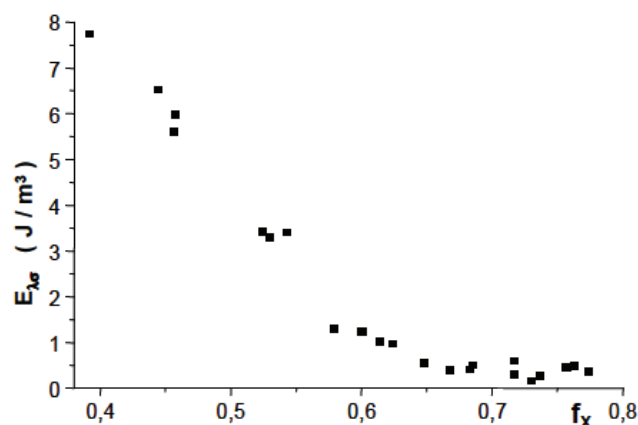


Figure III-21 Evolution de l'énergie $E_{\lambda\sigma}$ en fonction de la fraction cristallisée pour un nanocristallin $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$ [5].

Utilisant la courbe de l'évolution de l'énergie $E_{\lambda\sigma}$ en fonction de f_x de [5] (figure III-21), on peut estimer la valeur de $E_{\lambda\sigma}$ avant vieillissement. Pour $f_x = 0.77$, l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}^{0h}$ est égale à environ 0.4 J/m^3 .

III.3.2 Evolution des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement

Les résultats de vieillissement concernant l'évolution des propriétés magnétiques, ont montré un comportement différent entre les matériaux nanocristallins $\mu 500000$ et $\mu 30000$. De ce fait, l'étude de l'évolution des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement sera menée séparément pour les deux nuances de matériaux.

III.3.2.1 Matériaux haute perméabilité $\mu 500000$ nus avec et sans désaimantation

L'évolution de l'énergie d'anisotropie totale E_K , en fonction du vieillissement, est calculée en appliquant l'intégrale de l'équation (III.2) sur les courbes de première aimantation. Ces courbes sont obtenues à partir des caractérisations statiques effectuées à 1 Hz à la température ambiante. La figure III-22 présente plusieurs courbes de première aimantation relatives aux temps de vieillissement de 0, 66, 132, 904 et 2080 heures pour le matériau $\mu 500000$ vieilli à 240°C avec désaimantation.

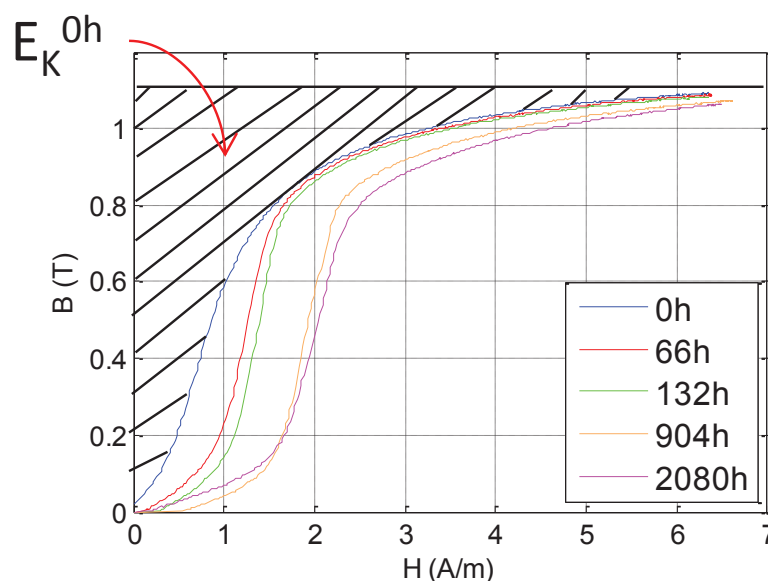


Figure III-22 Courbes de première aimantation du $\mu 500000$ pour plusieurs temps de vieillissement VAD à 240°C .

La figure III-23 présente l'évolution de l'énergie d'anisotropie totale en fonction du temps pour les 4 températures de vieillissement des échantillons $\mu 500000$ vieillis avec et sans désaimantation.

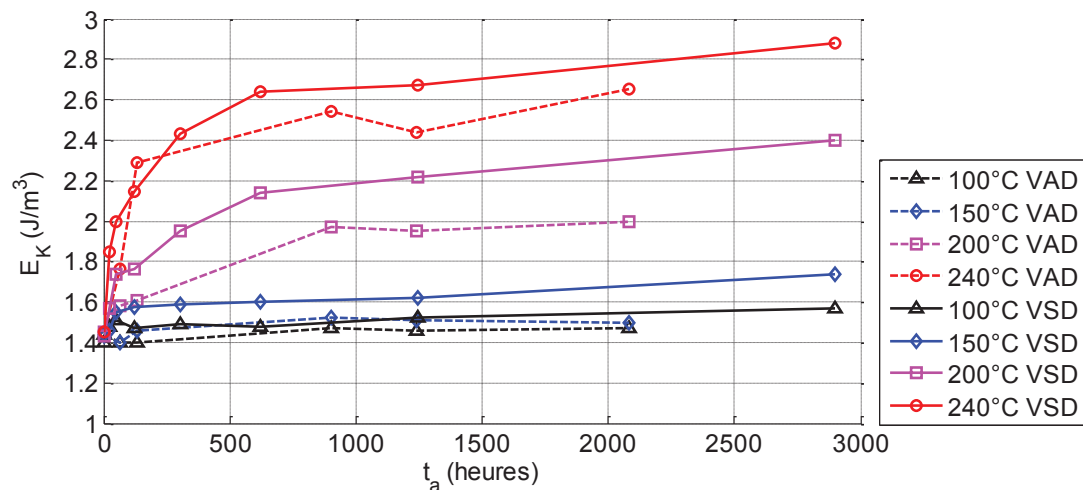


Figure III-23 Evolution de E_K en fonction du vieillissement VSD et VAD du $\mu 500000$ pour les quatre températures. VAD : Avec Désaimantation ; VSD : Sans Désaimantation.

Les courbes de la figure III-23 montrent une forte augmentation de l'énergie d'anisotropie E_K au départ des vieillissements accélérés à 200 et 240 °C. Cela veut dire que le phénomène lié à l'augmentation de l'énergie E_K s'active thermiquement au tout début des traitements de vieillissement à hautes températures. Selon l'équation (III.2), l'énergie E_K est composée, généralement, de trois termes $\langle E_{K1} \rangle$, E_{Ku} et $E_{\lambda\sigma}$. Par conséquent, son évolution durant le vieillissement est probablement liée à l'évolution de l'une ou plusieurs de ces trois énergies d'anisotropie. Une autre hypothèse envisagée est l'apparition durant le vieillissement d'une ou plusieurs nouvelles énergies d'anisotropie. Une interrogation pourrait aussi être faite à l'échelle microscopique, concernant la variation de la fraction cristallisée f_x ce qui entrainerait la variation de la taille de grain D et de la constante de magnétostriction λ_s en l'occurrence les trois énergies d'anisotropie [5], [6].

III.3.2.1 Evolution de l'énergie d'anisotropie $\langle E_{K1} \rangle$ en fonction du vieillissement

Comme expliqué dans la section I.4.4.1 du chapitre I, la version étendue du modèle RAM propose une loi en D^6 pour l'énergie d'anisotropie $\langle E_{K1} \rangle$ pour les matériaux nanocristallins recuits sans champ magnétique tels que le $\mu 500000$. L'énergie d'anisotropie $\langle E_{K1} \rangle$ sera proportionnelle à la constante $\langle K_1 \rangle$ donnée par l'équation (III.3). Pour évaluer la variation de $\langle E_{K1} \rangle$ en fonction du vieillissement il faut donc évaluer la variation de chaque paramètre de l'équation (III.3) en fonction du vieillissement.

- **Variation de la fraction cristallisée f_x et de la taille de grain D**

Afin de répondre à cette interrogation, des mesures de DRX (Diffraction aux Rayons X) sont faites sur ce matériau. La figure III-24 présente deux diffractogrammes DRX avant et après 1320 heures de vieillissement à 240 °C du nanocristallin $\mu 500000$.

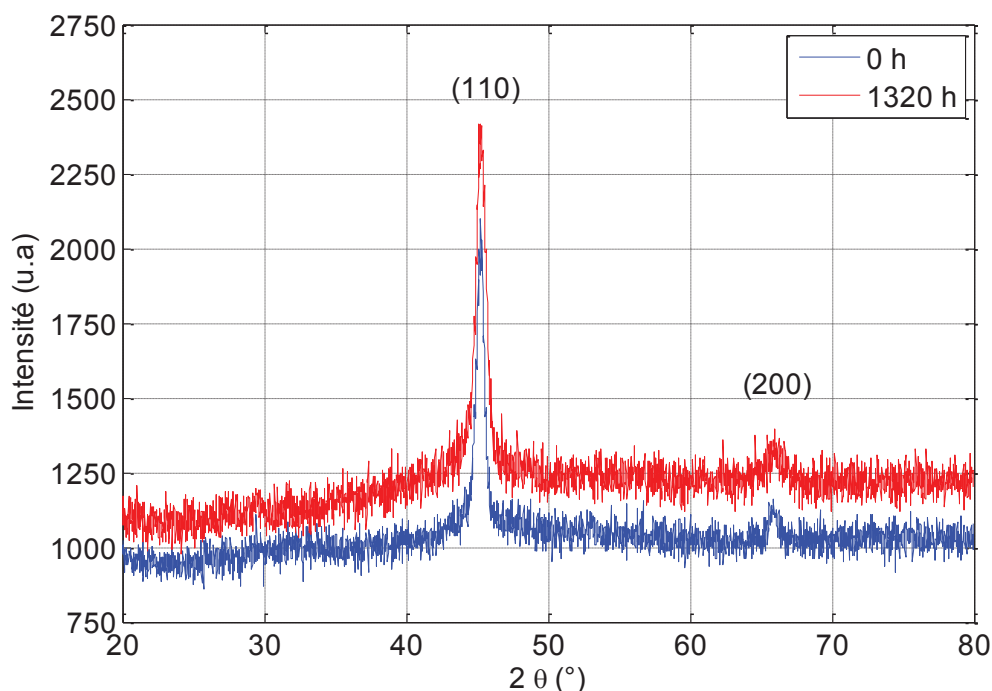


Figure III-24 Diffractogrammes DRX du $\mu 500000$ non vieilli et vieilli à 240°C pendant 1320 heures.

Aucun nouveau pic n'apparaît lors du vieillissement à 240 °C, ce qui exclut l'apparition d'une nouvelle phase à 240 °C et aussi aux températures de vieillissement inférieures (100, 150 et 200 °C). Le pic de grande amplitude correspond au plan cristallin (110) et le pic de petite amplitude correspond au plan cristallin (200). Le calcul de la largeur à mi-hauteur du pic (110) avant et après vieillissement renseigne sur l'évolution des domaines cristallins (ce qui correspond à la taille des grains D dans le cas du matériau étudié) en l'occurrence sur l'évolution de la fraction cristallisée f_x . La figure III-25 présente deux histogrammes, avant et après 1320 heures de vieillissement à 240 °C, de la largeur à mi-hauteur du pic (110).

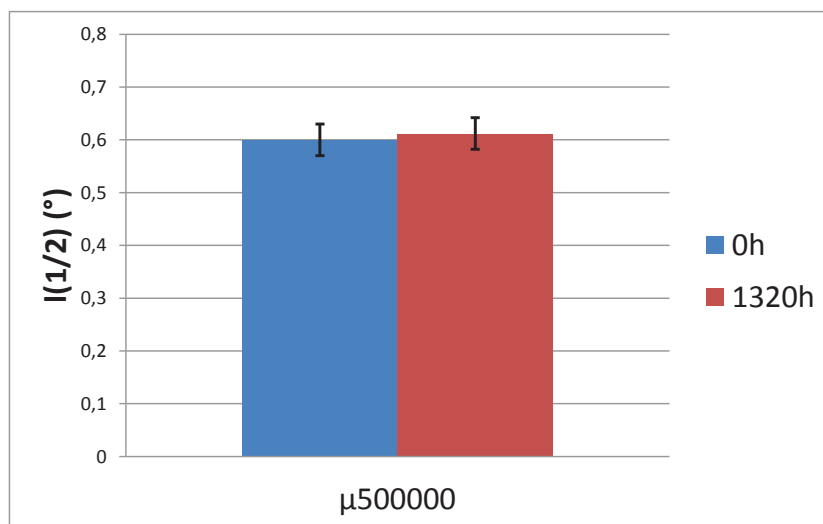


Figure III-25 Changement de la largeur à mi-hauteur du pic (110) par vieillissement à 240 °C.

Après vieillissement, la largeur à mi-hauteur a augmenté de l'ordre de 2%. L'augmentation de la largeur à mi-hauteur irait dans le sens d'une diminution de la taille moyenne des grains

selon la formule de Scherrer expliquée dans [7], [8]. Or, les vieillissements thermiques appliqués sont, plutôt, favorables à une augmentation de la taille moyenne des grains par diffusion atomique du Silicium de la phase amorphe vers les nano-grains (les vieillissements appliqués sont comparables à des recuits basses températures de long terme). Cette augmentation de la largeur à mi-hauteur, serait plutôt liée à l'incertitude de mesure de l'appareil (voir les barres d'incertitudes dans la figure III-25).

Le calcul de D peut se faire grâce à la formule de Scherrer, qui relie la taille des grains D à la largeur à mi-hauteur. Elle est donnée comme suit :

$$D = \frac{k.\lambda}{\beta.\cos\theta} \quad (\text{III.7})$$

Où λ est la longueur d'onde des rayons X égale à 1.54 Å, β est la largeur à mi-hauteur en radian, θ est l'angle de diffraction des rayons X selon le (110) en radian et k est la constante de Scherrer estimée de 0.9

Avant vieillissement de l'échantillon $\mu 500000$, β est égale à 0.6 et passe à 0.612 après 1320 h de vieillissement à 240 °C. Le calcul de D selon l'équation (III.7) donne 14,35 nm avant vieillissement et 14.06 nm après vieillissement. Comme expliqué précédemment, cette variation est noyée dans l'incertitude de mesure.

En conclusion la taille des grains D et la fraction cristallisée f_x n'auraient pas évolué durant les vieillissements étudiés.

- **Variation de la constante d'anisotropie K_1**

La constante K_1 est intrinsèque aux cristaux FeSi et sa valeur dépend de la température de mesure et de la composition chimique. Etant donné que la composition chimique n'a pas changé en fonction du vieillissement (pas de changement au niveau des pics de DRX) et que les caractérisations magnétiques sont faites à la température ambiante, la constante K_1 peut être considérée comme constante.

- **Variation de la constante d'échange A**

La constante d'échange varie en fonction de la polarisation à saturation J_s selon l'équation (I.3) du chapitre I. D'après la section III.2.1.1.4, l'induction à saturation B_{sat} (pratiquement égale à J_s pour le matériau étudié), mesurée pour un champ d'excitation magnétique élevé (100 A/m), reste constante après un vieillissement de 4200 heures à 240°C. Donc, selon l'équation (I.3) du chapitre I, la constante d'échange A n'aurait pas évolué durant les vieillissements étudiés.

En conclusion, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle E_{K1} \rangle$ n'aurait pas évolué en fonction du vieillissement.

Les matériaux haute perméabilité étudiés ont au départ du vieillissement E_K^{0h} égale à environ 1.44 J/m³ (d'après la figure III-23) et la quantification de l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}^{0h}$ est de 0.4 J/m³ (section III.3.1.2.1). De plus, avant vieillissement, ces matériaux ne présentent pas d'anisotropie uniforme macroscopique ($E_{Ku} = 0$ J/m³). Cependant, d'après l'équation (III.2), $\langle E_{K1} \rangle$ est d'environ 1.04 J/m³ ($\langle E_{K1} \rangle = E_K^{0h} - E_{\lambda\sigma}^{0h}$).

III.3.2.1.2 Evolution de l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ en fonction du vieillissement

Selon l'équation (III.5), la variation de l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ est possible si la contrainte interne σ_i et/ou si la constante λ_s varient en fonction du vieillissement. Les vieillissements appliqués sur les échantillons n'ont pas été faits sous contraintes mécaniques, en conséquence, il est peu probable que σ_i évolue (pas d'effet back stress [9], [10]). En supposant que la contrainte interne σ_i ne varie pas en fonction du vieillissement, la variation de l'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ serait alors proportionnelle à celle de λ_s (selon l'équation III.5). La figure III-26 présente l'évolution de λ_s en ppm en fonction du temps de vieillissement pour deux séries de ruban plats du $\mu 500000$ vieillis à 240 °C. Les mesures de λ_s sont faites avec le banc SAMR du laboratoire SATIE (Small Angle Magnetization Rotation).

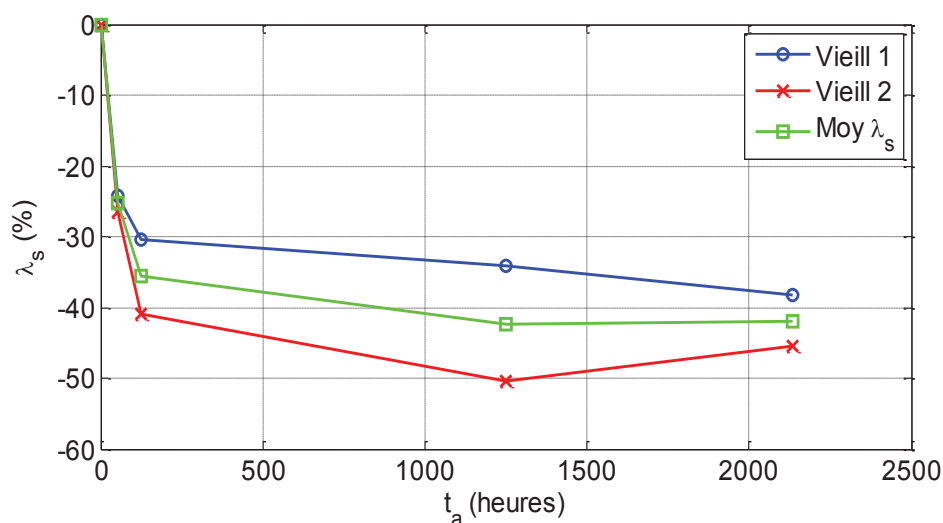


Figure III-26 Evolution de la constante de magnétostriction λ_s du $\mu 500000$ en fonction du vieillissement à 240 °C.

La diminution de la constante de magnétostriction en fonction du vieillissement à 240 °C est vérifiée pour les deux échantillons testés (vieill 1 et 2) et une moyenne d'évolution de λ_s est considérée (moy λ_s). Après 2100 heures de vieillissement accéléré à 240 °C, λ_s a diminué de 42% donc $E_{\lambda\sigma}$ aurait diminué d'autant. Cela correspond à $E_{\lambda\sigma}^{2100h} = 0.23 \text{ J/m}^3$ ($E_{\lambda\sigma}^{0h} = 0.4 \text{ J/m}^3$).

III.3.2.1.3 Evolution de l'énergie d'anisotropie E_{Ku} en fonction du vieillissement

L'instauration d'une énergie d'anisotropie E_{Ku} « cohérente » pendant le vieillissement est exclusivement contrôlée par la structure d'aimantation du matériau (directions locales de l'aimantation dans les domaines magnétiques) et aussi par le temps et la température du vieillissement. Cependant, selon le type de vieillissement appliqué VAD ou VSD, le constat suivant peut être fait :

- Dans le cas du vieillissement VAD, les échantillons $\mu 500000$ sont désaimantés après chaque étape de caractérisations magnétiques. Cependant, les échantillons $\mu 500000$ vieillissent avec leur structure en domaine initiale (avant vieillissement) c'est-à-dire : une structure en domaines dont les directions locales d'aimantation sont complètement aléatoires. Cela ne laisse aucune chance à l'instauration d'une

anisotropie K_u macroscopique, en l'occurrence une énergie d'anisotropie E_{Ku} « cohérente ».

- Dans le cas du vieillissement VSD, la dernière caractérisation magnétique est faite à induction imposée de 0.8 T avant de remettre les échantillons dans les fours. Cependant, les échantillons $\mu 500000$ vieillissent avec une aimantation résiduelle ($B \approx 0.43$ T) proche de l'induction rémanente ($B \approx 0.6$ T). La structure en domaine sera principalement constituée de domaines orientés « plus au moins » selon la direction longitudinale des rubans nanocristallins. Cela permet une instauration d'une anisotropie $K_u^{semi//}$ « semi-cohérente » selon ces directions qui sont « plus au moins » longitudinales. L'énergie d'anisotropie correspondante est notée $E_{Ku}^{semi//}$. Ce constat explique l'allure rectangulaire des cycles d'hystérésis VSD. Le vieillissement VSD revient en définitive à faire un « mauvais recuit » sous champ longitudinal.

III.3.2.1.4 Bilan des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement

Le fait qu'il n'y ait pas de variation de l'énergie d'anisotropie $\langle E_{K1} \rangle$ d'une part, et la diminution de l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ en fonction du vieillissement d'autre part, vont dans le sens de l'amélioration des propriétés magnétiques. Or, les caractérisations magnétiques des vieillissements VAD et VSD démontrent le contraire avec une dégradation, pratiquement de toutes les propriétés magnétiques (pertes, champ coercitif, perméabilité, ...). L'explication est liée au fait que, la constance de $\langle E_{K1} \rangle$ et la diminution de $E_{\lambda\sigma}$ en fonction du vieillissement sont largement compensées par l'instauration d'une nouvelle énergie d'anisotropie :

- Dans le cas du vieillissement VAD, la nouvelle énergie d'anisotropie s'instaure localement autour de chaque domaine magnétique. Elle est incohérente à l'échelle macroscopique et est appelée énergie d'anisotropie uniforme locale, notée E_{Ku}^{loc} .
- Dans le cas du vieillissement VSD, la nouvelle énergie d'anisotropie est $E_{Ku}^{semi//}$.

Ces deux énergies d'anisotropie sont instaurées à cause d'un phénomène de diffusion à courte distance [11]. L'augmentation de l'énergie d'anisotropie totale E_K , serait donc liée principalement à l'augmentation de E_{Ku}^{loc} et $E_{Ku}^{semi//}$. Dans ce cas, l'équation (III.2) dépendrait d'un terme supplémentaire lié au vieillissement :

$$\begin{cases} E_K(t_a, T_a) = \langle E_{K1} \rangle + E_{\lambda\sigma}(t_a, T_a) + E_{Ku}^{loc}(t_a, T_a) & \text{pour VAD} \\ E_K(t_a, T_a) = \langle E_{K1} \rangle + E_{\lambda\sigma}(t_a, T_a) + E_{Ku}^{semi//}(t_a, T_a) & \text{pour VSD} \end{cases} \quad (III.8)$$

Avec, t_a et T_a temps et température de vieillissement respectivement.

En utilisant l'équation (III.8) on peut tracer un bilan énergétique en fonction du temps de vieillissement. La figure III-27 présente un bilan d'évolution des énergies d'anisotropie en fonction du temps de vieillissement à 240 °C pour les deux types de vieillissement VSD et VAD.

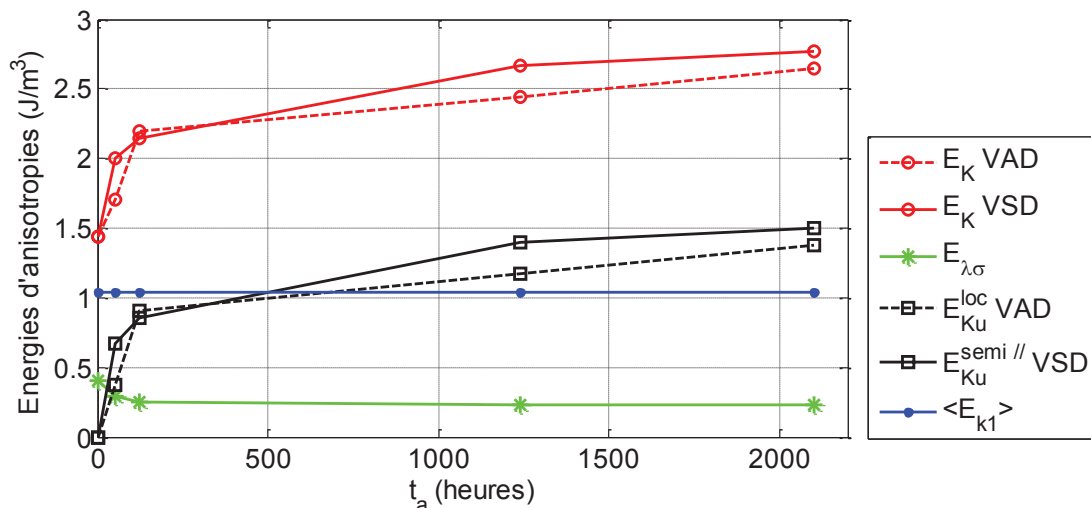


Figure III-27 Evolution des énergies d'anisotropie en fonction du temps de vieillissement à 240 °C. VAD : avec désaimantation ; VSD : sans désaimantation.

Afin de connaître la nature de la diffusion qui est à l'origine du vieillissement des échantillons $\mu 500000$, les courbes de la figure III-28 sont tracées. Cette figure présente les courbes de $\ln(E_{Ku}^{loc/semi//})$ en fonction de $1/T_a$ pour les trois derniers temps de vieillissement VSD et VAD. Les courbes peuvent être approximées par des droites. Par conséquent, cette diffusion suit bien une diffusion de type d'Arrhenius (équation III.9).

$$\ln(PM) = -\left(\frac{Q}{R}\right) \cdot \frac{1}{T_a} + \ln([PM]_0) \quad (III.9)$$

Où PM est la propriété magnétique, Q est l'énergie d'activation de la diffusion, $R=8.32$ J/K et $[PM]_0$ est le coefficient de diffusion de PM quand T_a tend vers l'infini. L'équation (III.9) et le fitting (courbes en rouge) des courbes de diffusion de la figure III-28 permettent l'identification de Q et $[E_{Ku}^{loc/semi//}]_0$.

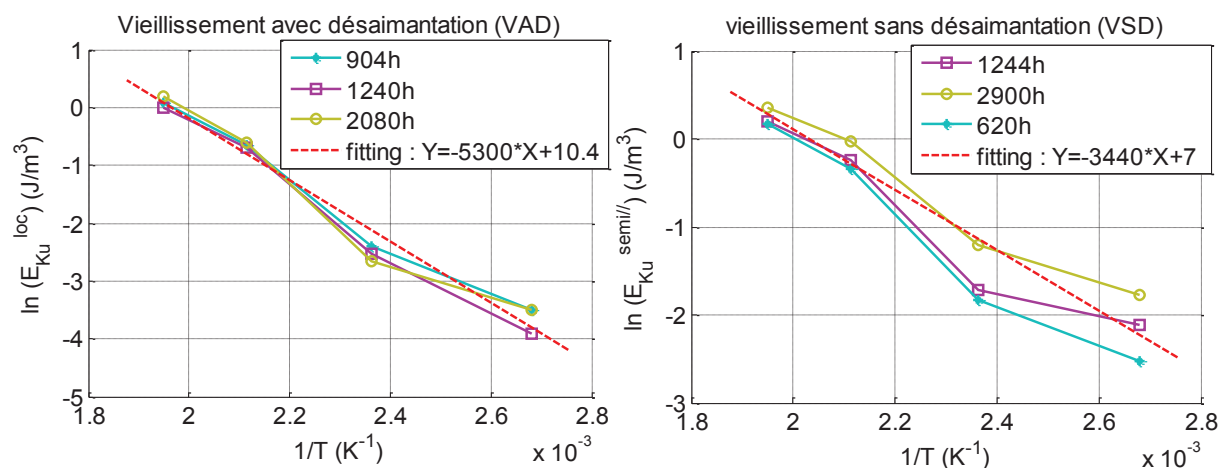


Figure III-28 Représentation de l'évolution de $\ln(E_{Ku}^{loc})$ selon le modèle de diffusion d'Arrhenius pour VAD et VSD.

L'identification de l'énergie d'activation réduite (Q/R) du vieillissement VAD et VSD donne, respectivement, 5300 ± 300 K et 3440 ± 300 K. Les échantillons qui vieillissent sans désaimantation ont besoin de moins d'apport d'énergie pour vieillir. Cela confirme les

résultats présentés dans la section III.2.1 où, pratiquement à chaque fois, le vieillissement VSD présente plus de dégradations que le vieillissement VAD.

En fait, le vieillissement VAD instaure E_{Ku}^{loc} sur une structure en domaines dont l'induction est nulle. Par contre, le vieillissement VSD instaure $E_{Ku}^{semi//}$ sur une structure en domaines dont l'induction résiduelle est proche de $B_r \approx 0.6$ T. Donc, pendant la caractérisation statique à 1 Hz, le processus d'aimantation des échantillons VAD trouve moins de difficulté à revenir à l'induction nulle que dans le cas des échantillons VSD (car ces derniers favorisent l'état d'aimantation de presque $B_r \approx 0.6$ T). Cependant, les échantillons VAD dépensent moins d'énergie électrique pendant le processus d'aimantation donc développent moins de champ H_c et de pertes P_{hys} que les échantillons VSD.

III.3.2.2 Matériaux moyenne perméabilité $\mu 30000$ nus

La figure III-29 présente plusieurs courbes de première aimantation relatives aux temps de vieillissement 0, 123, 1244 et 4933 heures du matériau $\mu 30000$ vieilli à 240 °C.

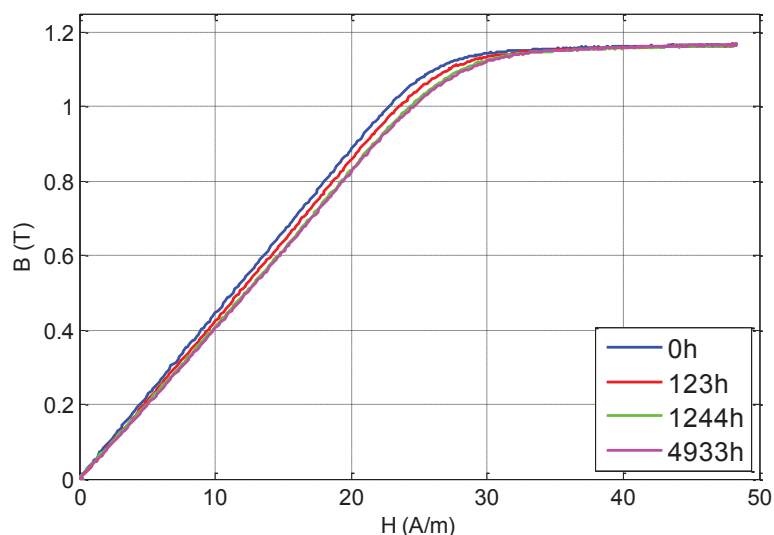


Figure III-29 Courbes de première aimantation du matériau $\mu 30000$ nu pour plusieurs temps de vieillissement à 240 °C.

La figure III-30 présente l'évolution de l'énergie E_K des échantillons du matériau $\mu 30000$, en valeur absolue et en pourcentage, en fonction du temps pour les 4 températures de vieillissement.

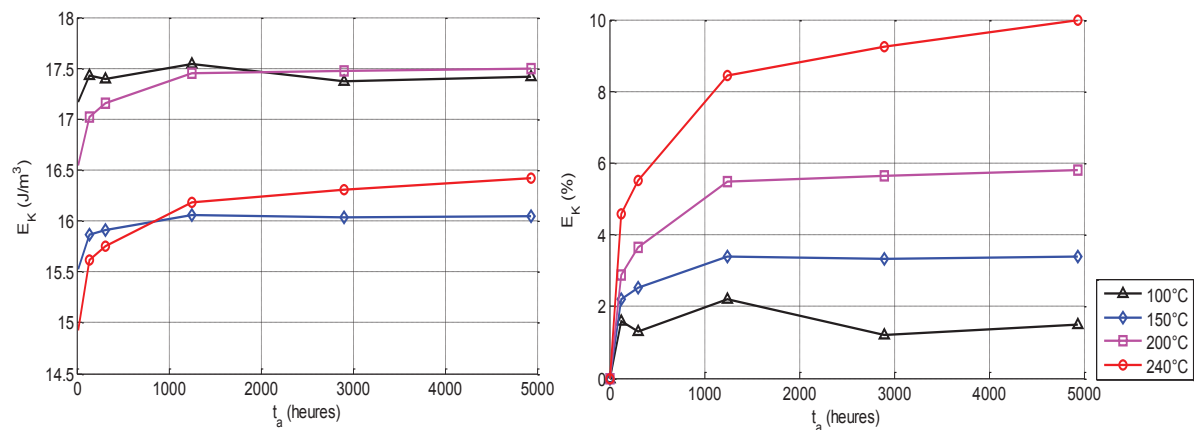


Figure III-30 Evolution de E_K du $\mu 30000$ en absolue et en pourcentage en fonction du temps de vieillissement pour les quatre températures de vieillissement.

Pour les nanocristallins recuits sous champ transverse, l'énergie d'anisotropie prédominante est E_{Ku} ($E_{\lambda\sigma}$ et $\langle E_{Kl} \rangle$ sont faibles). Il est à remarquer qu'à $t_a = 0$ h, E_K^{0h} présente des disparités non négligeables entre les échantillons du matériau $\mu 30000$ (voir figure III-30 de gauche). En effet, pendant le recuit sous champ transverse, il n'est pas facile de contrôler l'induction de E_{Ku} [4].

En fonction du vieillissement, E_K présente une faible augmentation. Seulement 10 % d'augmentation après 5000 heures de vieillissement à 240°C. Au-delà de 1200 heures de vieillissement, E_K présente une tendance de stabilisation pour les températures 100, 150 et 200 °C. Par contre, pour le vieillissement à 240 °C, E_K présente une tendance d'augmentation mais avec une faible pente. L'évolution de l'anisotropie E_K est peut être liée à une ou à plusieurs des trois énergies d'anisotropie de l'équation (III.2). Ou bien, carrément, à une ou plusieurs nouvelles énergies d'anisotropie qui prennent naissance durant le vieillissement. De même que pour les échantillons $\mu 500000$, une investigation est faite sur l'évolution de chaque terme de l'équation (III.2).

III.3.2.2.1 Evolution de l'énergie d'anisotropie E_{Ku} en fonction du vieillissement

Les échantillons $\mu 30000$ présentent une structure en domaines complètement différente de celle des échantillons $\mu 500000$. Dans le cas des échantillons $\mu 30000$, une forte énergie d'anisotropie E_{Ku} a été instaurée de façon « cohérente » et parallèle au sens transversal du champ magnétique de recuit (les directions d'aimantation des différents domaines sont parallèles au sens transversal). Pendant le recuit, sous l'effet du champ magnétique, le matériau est mono domaine et une anisotropie $K_u^{\perp}$ s'instaure avec une direction égale à la direction transversale du tore (voir la figure III-31.a)

Lorsqu'on revient à la température ambiante, puisqu'il n'y a plus de champ pour aimanter le matériau de façon uniforme comme lors du recuit sous champ, une structure en domaines magnétiques se forme à la fois pour :

- Respecter l'anisotropie macroscopique $K_u^{\perp}$ « cohérente » (les directions des domaines principaux sont parallèles à la direction transversale),

- Et pour minimiser au mieux l'énergie magnétostatique (le flux magnétique doit se refermer sur lui-même à l'intérieur du tore).

On en arrive à la structure en domaines magnétiques présentant de « gros » domaines dans le sens transversal et des domaines de fermeture dans le sens longitudinal (voir figure III-31.b).

En fonction du vieillissement, cette structure favorise le renforcement et la continuité de l'instauration de l'anisotropie $K_u^\perp$ de façon « cohérente » dans toute la structure en domaines transversaux (majoritaires). Cependant, l'énergie d'anisotropie E_{K_u} augmente malgré l'absence d'une aimantation globale, transversale. C'est d'ailleurs ce qui explique la baisse des perméabilités $\mu_{\max}$ et μ_i en fonction du vieillissement (respectivement, figure III-14 et III-18).

En parallèle, il s'instaure peu à peu aussi de « façon cohérente » une anisotropie longitudinale $K_u^\parallel$ dans toutes les structures de domaines de fermeture triangulaire (figure III-31.c). Cela va dans le sens d'une expansion des domaines de fermeture et va progressivement gêner le mouvement des parois de Bloch. Cette hypothèse est tout à fait plausible car le champ coercitif H_c augmente en fonction du vieillissement (il atteint presque 60 % après 5000 h de vieillissement à 240 °C).

En conclusion l'énergie d'anisotropie E_{K_u} augmente en fonction du vieillissement suite à l'augmentation des deux constantes d'anisotropie $K_u^\perp$ et $K_u^\parallel$.

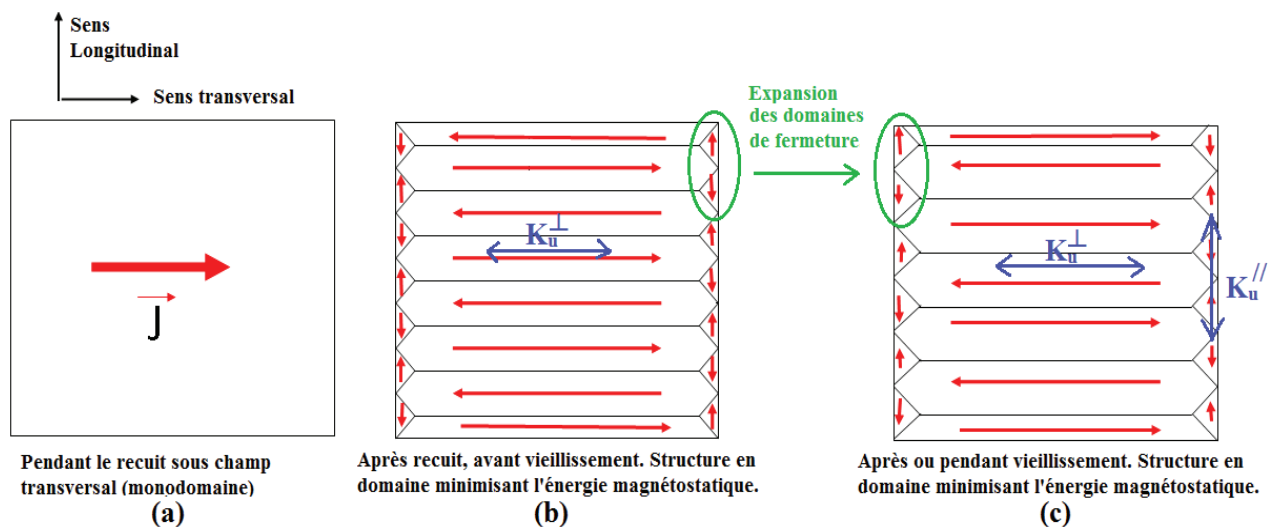


Figure III-31 Représentation de la structure en domaines ainsi que les constantes d'anisotropie dans le cas d'un ruban nanocristallin $\mu 30000$ nu pendant le recuit, avant et pendant le vieillissement.

III.3.2.2 Evolution de l'énergie d'anisotropie $\langle E_{K_1} \rangle$ en fonction du vieillissement

Comme expliqué dans la section I.4.4.1 du chapitre I, la version étendue du modèle RAM propose une loi en D^3 pour l'énergie d'anisotropie $\langle E_{K_1} \rangle$ pour les nanocristallins recuits sous champ magnétique, tels que le $\mu 30000$. Cette loi est proportionnelle au deuxième terme de l'équation (III.4). Pour évaluer la variation de $\langle E_{K_1} \rangle$ en fonction du vieillissement il faut donc évaluer la variation de chaque paramètre en fonction du vieillissement.

- **Variation de la fraction cristallisée f_x et de la taille des grains D**

La figure III-32 présente deux diffractogrammes DRX avant et après 5000 heures de vieillissement à 240 °C du matériau nanocristallin $\mu 30000$.

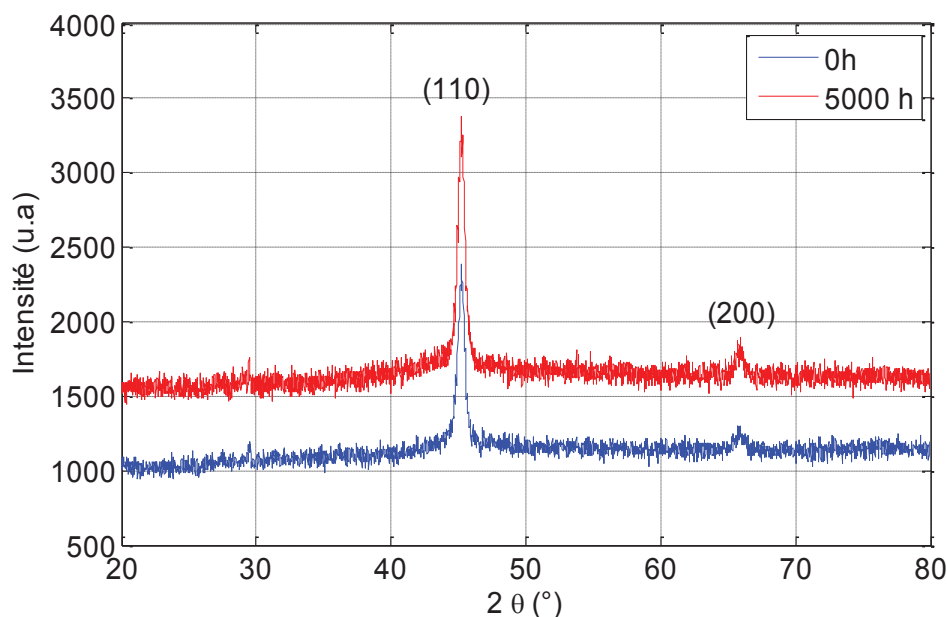


Figure III-32 Diffractogrammes DRX du $\mu 30000$ non vieilli et vieilli à 240°C pendant 5000 heures.

De même que pour le matériau nanocristallin $\mu 500000$, aucun nouveau pic n'apparaît lors du vieillissement à 240 °C, ce qui exclut l'apparition d'une nouvelle phase à 240°C et aussi aux températures de vieillissement inférieures (100, 150 et 200 °C). Le pic de grande amplitude correspond au plan cristallin (110) et le pic de faible amplitude correspond au plan cristallin (200). Le calcul de la largeur à mi-hauteur du pic (110) avant et après vieillissement renseigne sur l'évolution des domaines cristallins et sur l'évolution de la fraction cristallisée f_x . La figure III-33 présente deux histogrammes, avant et après 5000 heures de vieillissement à 240 °C, de la largeur à mi-hauteur du pic (110).

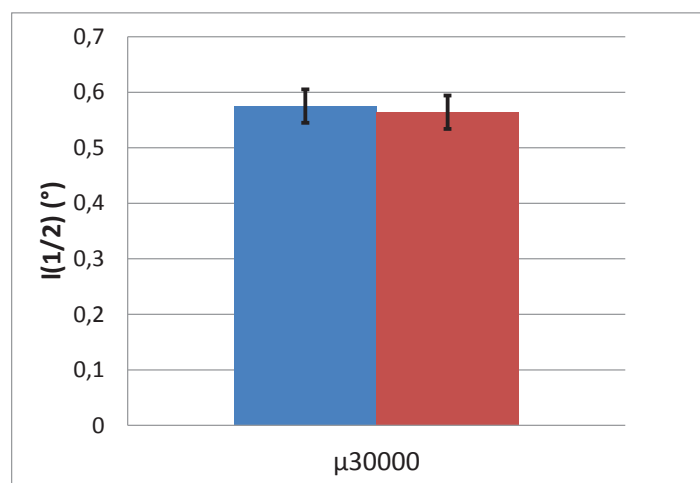


Figure III-33 Changement de la largeur à mi-hauteur du pic (110) par vieillissement à 240 °C.

Après vieillissement, la largeur à mi-hauteur a diminué de l'ordre de 2%. La diminution de la largeur à mi-hauteur irait dans le sens d'une augmentation de la taille moyenne des grains (par conséquence de l'augmentation de f_x) selon la formule de Scherrer expliquée dans [7], [8]. Ce résultat est tout à fait cohérent avec ce qui est attendu d'un vieillissement thermique. Cependant, la diminution de la largeur à mi-hauteur constatée est noyée dans l'incertitude de mesure exprimée par les barrettes d'incertitude (figure III-33). En utilisant l'équation de Scherrer (équation (III.7)) avec la largeur à mi-hauteur de 0.575° avant vieillissement et 0.564° après 5000 h de vieillissement à 240°C , la taille de grain D évolue de 15 nm à 15.3 nm.

En conclusion, la taille des grains D et la fraction cristallisée f_x , n'auraient pas évolué durant les vieillissements étudiés. Ce résultat est cohérent avec ce qui a été conclu sur les échantillons $\mu 500000$ car les cycles thermiques de nanocristallisation des deux nuances sont très proches.

- **Variation de la constante d'anisotropie K_1 et de la constante d'échange A**

En suivant la même approche d'analyse que celle du matériau $\mu 500000$ (section III.3.2.1.1), on peut conclure que K_1 et A n'auraient pas évolué en fonction du vieillissement des échantillons $\mu 30000$ nus.

- **Variation de la constante d'anisotropie K_u**

Comme expliqué précédemment dans la section III.3.2.2.1, il y a eu augmentation de $K_u^\perp$ et de $K_u^{\parallel}$ en fonction du vieillissement. Par ailleurs, l'instauration de ces deux constantes d'anisotropie est liée au même phénomène de diffusion à courte distance. Cela permet d'écrire l'égalité suivante :

$$E_{K_u} = E_{K_u}^\perp + E_{K_u}^{\parallel} = (K_u^\perp + K_u^{\parallel}) \cdot \sin^2 \varphi = K_u \cdot \sin^2 \varphi \quad (\text{III.10})$$

Cependant, l'anisotropie uniforme K_u a augmenté en fonction du vieillissement.

En conclusion, l'énergie d'anisotropie $\langle E_{K_1} \rangle$ aurait augmenté en fonction du vieillissement car elle dépend de $\sqrt{K_u}$.

III.3.2.2.3 Evolution de l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ en fonction du vieillissement

Les mesures de magnétostriction effectuées sur le banc SAMR (Small Angle Magnetization Rotation) de la nuance $\mu 30000$ montrent une diminution de 10 % du coefficient λ_s après 7250 heures de vieillissement à 240°C . Jusqu'au temps de vieillissement de 5000 heures (dernier point de vieillissement des échantillons $\mu 30000$), λ_s aurait diminué au maximum de 10 %. En conséquence, l'énergie d'anisotropie magnétoélastique $E_{\lambda\sigma}$ aurait diminué du même pourcentage (avec la supposition que la contrainte interne σ_i reste constante). La même constatation a été faite sur la nuance $\mu 500000$, mais avec davantage de diminution de $E_{\lambda\sigma}$ (section III.3.2.1.2).

Avant vieillissement, $E_{\lambda\sigma}$ est faible car E_{K_u} domine largement dans les nanocristallins $\mu 30000$. Du fait que l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ diminue en fonction du vieillissement, elle reste donc faible face à E_{K_u} . Cependant, l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ ne contribue pas à l'augmentation de l'énergie d'anisotropie totale E_K en fonction du vieillissement.

III.3.2.2.4 Evolution de l'énergie d'anisotropie totale E_K en fonction du vieillissement

L'augmentation de l'énergie totale d'anisotropie E_K avec le vieillissement est donc liée à l'augmentation des deux termes $\langle E_{K1} \rangle$ et E_{Ku} . L'évolution de ces énergies d'anisotropie se fait par diffusion à courte distance. Ainsi, en fonction du vieillissement, l'équation (III.2) devient :

$$E_K(t_a, T_a) = \langle E_{K1} \rangle(t_a, T_a) + E_{Ku}(t_a, T_a) \quad (\text{III.11})$$

La figure III-34 présente l'évolution de différence d'énergie d'anisotropie totale ΔE_K ($\Delta E_K = E_K(0h, T_a) - E_K(t_a, T_a)$) en fonction du temps de vieillissement pour les températures étudiées.

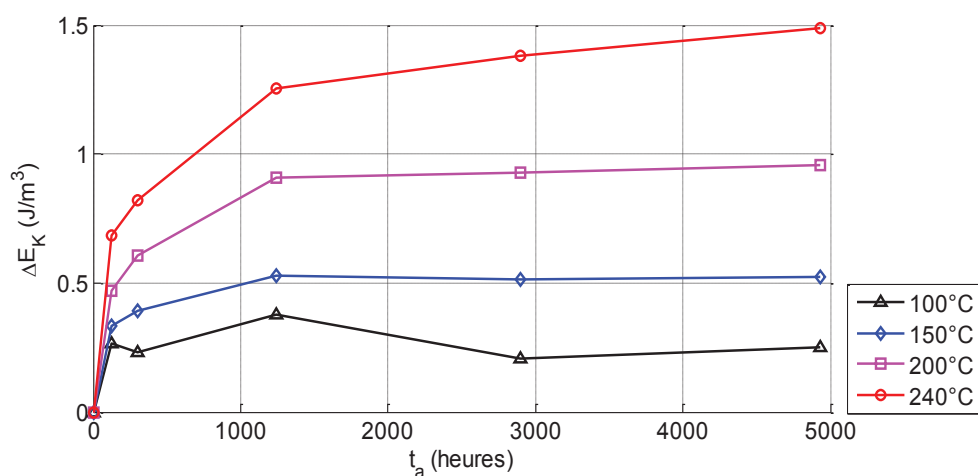


Figure III-34 Evolution de ΔE_K du $\mu 30000$ en fonction du temps pour les quatre températures de vieillissement.

La différence ΔE_K suit une loi de diffusion de courte distance de type Arrhenius. Les courbes en fonction de $\ln(\Delta E_K)$ et en fonction de $1/T$ suivent bien l'équation (III.9).

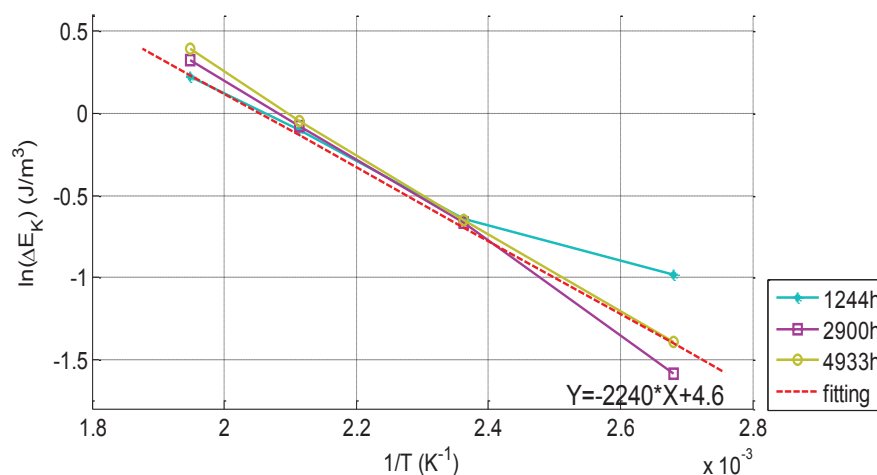


Figure III-35 Représentation de l'évolution de $\ln(E_K^{loc})$ selon le modèle de diffusion d'Arrhenius du $\mu 30000$.

III.3.3 Impact de l'évolution des énergies d'anisotropie sur l'évolution des propriétés macroscopiques

III.3.3.1 Nanocristallins $\mu 500000$

Selon G. Herzer [2], [12], [13], pour les nanocristallins dont l'aimantation est gérée principalement par l'anisotropie aléatoire, le champ coercitif H_c et la perméabilité initiale μ_i sont directement reliés à la constante d'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$ comme suit :

$$\begin{aligned} H_c &\approx p_c \cdot \frac{\langle K_1 \rangle}{J_s} \\ \mu_i &\approx p_\mu \cdot \frac{J_s^2}{\mu_0 \cdot \langle K_1 \rangle} \end{aligned} \quad (\text{III.12})$$

Où J_s est la polarisation à saturation du nanocristallin, p_c et p_μ sont des facteurs sans dimension de l'ordre de l'unité et μ_0 est la perméabilité absolue du vide.

En conséquence H_c et μ_i varient en fonction de la taille des grains : $H_c \propto D^6$ et $\mu_i \propto 1/D^6$ (en première approximation). Ce résultat est validé expérimentalement par une variété d'alliages nanocristallins. La figure III-36 présente l'évolution de H_c et de μ_i de plusieurs alliages nanocristallins en fonction de leur taille de grains D .

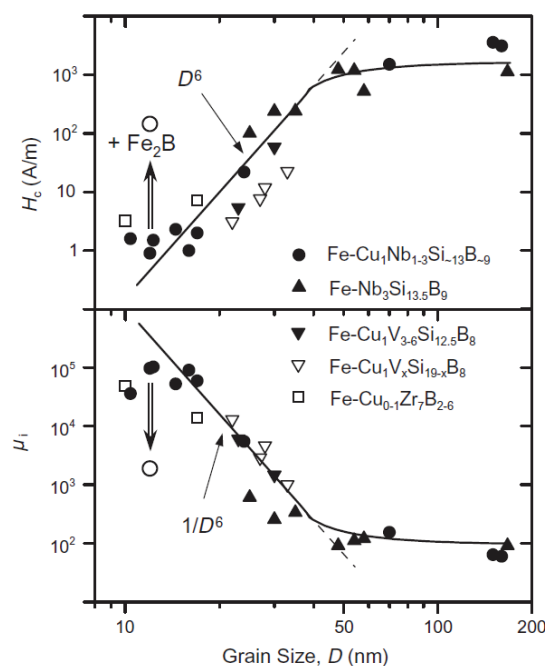


Figure III-36 H_c et μ_i des alliages nanocristallins en fonction de la taille de grains D . Les cercles vides correspondent à un sur-recuit de nanocristallin Fe73.5Cu1Nb3Si13.5B9 avec une petite fraction (moins de 10 %) de précipités Fe2B [12].

Ces larges dispersions sont dues aux circonstances de mesures qui nécessitent la variation de la composition et/ou les conditions de recuit afin de faire varier la taille de grains. Par conséquent, la fraction cristallisée, la composition des précipités cristallites et de la phase amorphe résiduelle changent à chaque fois. Cependant, il n'est pas évident, avec ce modèle, de quantifier avec précision le champ coercitif et la perméabilité initiale d'un nanocristallin donné. En effet, les mesures que nous avons effectuées sur 8 échantillons du nanocristallin

μ_500000 , avant vieillissement, donnent les valeurs moyennes suivantes : $H_c = 0.66$ A/m ; $\mu_i = 187000$; $\langle E_{K1} \rangle = 1$ J/m³ ; J_s (100 A/m) = 1.17 T. Or, en appliquant le modèle d'Herzer (équation III.12), on trouve $H_c = 0.89$ A/m et $\mu_i = 109000$ soit 35 % et -42 % d'erreurs relatives par rapport aux valeurs moyennes mesurées de H_c et μ_i respectivement.

De même, en fonction du vieillissement, le modèle d'Herzer (équation III.12) ne permet pas d'expliquer les évolutions de H_c et de μ_i des échantillons du nanocristallin μ_500000 . Selon ce modèle, pour qu'il y ait variation de H_c ou de μ_i il faut qu'il y ait variation de $\langle K_1 \rangle$ en fonction du vieillissement. Or, cette dernière n'aurait pas évolué comme expliqué dans la section III.3.2.1.1. En fait, le modèle d'Herzer est un modèle empirique qui donne une tendance mais ne permet pas de définir une quantification précise. A notre stade de compréhension, la corrélation entre l'évolution des énergies d'anisotropie et les dégradations des propriétés magnétiques macroscopiques ne peut se faire que qualitativement.

III.3.3.1 Evolution des propriétés magnétiques en fonction de l'évolution de E_{Ku}^{loc} dans le cas du vieillissement VAD

Le vieillissement a détérioré pratiquement toutes les propriétés magnétiques macroscopiques à savoir : H_c , μ_i , P_{hys} et P_{tot} . La raison est liée au fait que, E_{Ku}^{loc} est introduite autour de chaque domaine magnétique ce qui générerait le déplacement des parois (formation des gros domaines) et la rotation des domaines magnétiques. La figure III-37 présente deux courbes de première aimantation avant et après 2000 heures de vieillissement VAD à 240°C d'un μ_500000 .

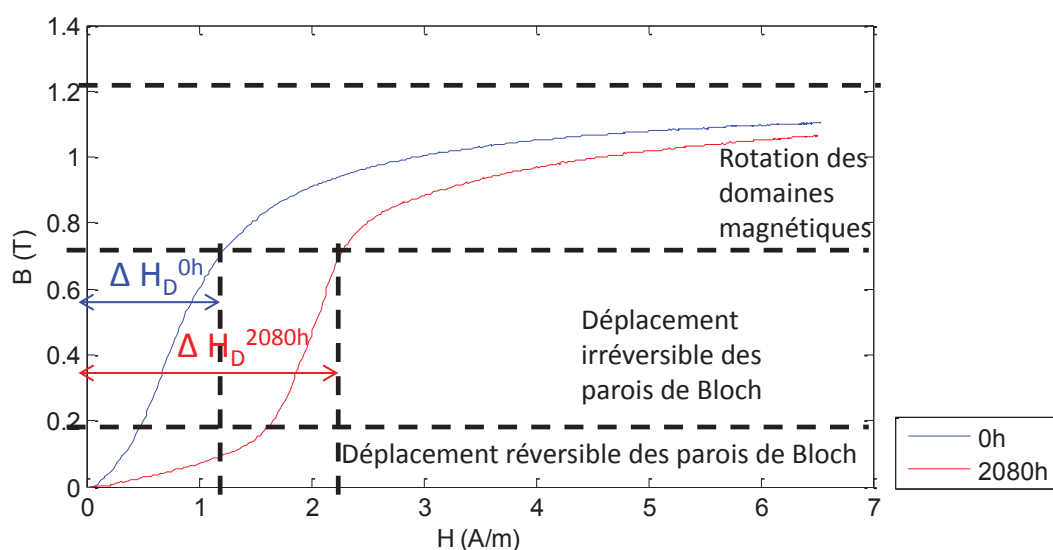


Figure III-37 Représentation des régions de déplacement des parois de Bloch et de rotation des domaines magnétiques sur les courbes de première aimantation avant et après 2080 heures de vieillissement VAD à 240 °C. Cette représentation est expliquée dans [14] p. 480.

En effet, après vieillissement de 2080 heures à 240 °C, le matériau dépense beaucoup plus d'énergie pour la formation des « gros » domaines magnétiques (déplacement des parois de Bloch). Il lui faut environ le double en terme d'excitation pour finir cette première étape d'aimantation ($\Delta H_D^{2080h} \approx 2 \cdot \Delta H_D^{0h}$). Il faut aussi également plus d'énergie dans la phase de rotation pour atteindre la saturation initiale de 1.17 T (la courbe rouge atteint la saturation

pour des champs d'excitation élevés de valeurs supérieures à 50 A/m alors que la courbe bleue l'atteint pour des champs nettement plus faibles).

- **Cas des pertes magnétiques.**

Le principe de décomposition des pertes magnétiques selon Bertotti [15] est exprimé par l'équation (III.13) :

$$P_{tot} = P_{hys} + P_{class} + P_{exc} \quad (III.13)$$

Avec P_{class} : pertes par courants de Foucault et P_{exc} : pertes excédentaires, P_{hys} : pertes statiques (à très faible fréquence).

Etant donné que la résistivité n'évolue pas lors du vieillissement thermique (d'après le suivi de la résistivité en utilisant la méthode des quatre pointes), les pertes par courants de Foucault ou pertes classiques P_{class} peuvent être considérées comme constantes. Donc l'augmentation des pertes totales, en fonction du vieillissement est due à la part des pertes statiques et des pertes excédentaires.

En effet, les pertes statiques sont dues à l'interaction des parois en mouvement avec les obstacles (défauts, joint de grains, précipités, directions de difficile aimantation, ...). Le mouvement des parois est suffisamment lent pour qu'il y ait apparition de courants induits locaux. Le vieillissement a provoqué l'amplification des interactions parois-obstacles à cause de l'introduction de E_{Ku}^{loc} autour de chaque domaine magnétique. L'augmentation des pertes excédentaires P_{exc} est liée aux mêmes interactions parois-obstacles qui augmenteraient les pertes locales harmoniques.

III.3.3.2 Nanocristallins $\mu 30000$

Selon G. Herzer [2], [13], [16], si l'aimantation est contrôlée par une anisotropie macroscopique uniforme la dépendance de H_c et μ_i aux énergies d'anisotropies devient plus complexe. D'une manière générale, H_c dépend de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline aléatoire comme suit :

$$H_c \approx \frac{\langle K_1 \rangle}{J_s} \cdot \frac{L_{ex}}{l_K} \quad (III.14)$$

Où, L_{ex} est la longueur d'échange exprimée dans l'équation (I.18) du chapitre I et l_K est la longueur des fluctuations d'anisotropie aléatoire. Dans le cas des matériaux polycristallins c'est-à-dire : $D > L_{ex}$, on a $l_K \approx D$ et $\langle K_1 \rangle \approx K_1$ de telle sorte que l'équation (III.14) permet de définir : $H_c \propto (K_1^{1/2}/D)$ (dépendance en $1/D$ de H_c des matériaux magnétiques conventionnels). Dans le cas des nanocristallins avec une forte anisotropie macroscopique uniforme K_u (cas du $\mu 30000$) on a : $D < L_{ex}$, $l_K \approx L_{ex}$ et $\langle K_1 \rangle \approx (\langle K \rangle - K_u)$. Donc l'équation (III.14) permet d'obtenir : $H_c \propto (\langle K_1 \rangle / J_s)$ où $\langle K_1 \rangle$ dépend de D^3 . Ceci est vrai en considérant que l'anisotropie macroscopique induite K_u est parfaitement uniforme. Or, il n'est pas évident de garantir cette condition durant les recuits sous champ⁶. En réalité, la longueur

⁶ La figure III-30 montre bien à $t=0$ h que les différents échantillons $\mu 30000$ n'ont pas eu la même quantité d'énergie d'anisotropie E_{Ku} . Cela représente la difficulté que les fabricants retrouvent pour aligner parfaitement les moments magnétiques pendant le recuit sous champ transversal.

de fluctuation d'anisotropie l_k est plus grande que L_{ex} et peut aller de quelques micromètres à quelques centaines de micromètres. Il en résulte que le champ coercitif H_c devient indépendant de la taille de grains D : $H_c \propto (K_u^{1/2}/l_k)$.

La perméabilité initiale μ_i quant à elle, est inversement proportionnelle à l'anisotropie totale $\mu_i \propto (1/\langle K \rangle)$ si l'aimantation du matériau nanocristallin est perpendiculaire à K_u . Par contre, si l'aimantation est longitudinale à K_u , μ_i varie inversement à l'anisotropie aléatoire $\langle K_1 \rangle$ ($\mu_i \propto (1/\langle K_1 \rangle)$).

En fonction du vieillissement, H_c et μ_i varient indépendamment de la taille des grains donc tous les modèles qui font intervenir la taille des grains D ne peuvent pas expliquer les évolutions de H_c et μ_i en fonction du vieillissement. Cependant, les corrélations entre anisotropies et propriétés magnétiques peuvent se faire seulement pour les cas $H_c \propto (K_u^{1/2}/l_k)$ et $\mu_i \propto (1/\langle K \rangle)$.

- **Cas de $H_c \propto (K_u^{1/2}/l_k)$**

Les résultats de vieillissement du $\mu 30000$ ont montré que H_c augmente pour les températures de vieillissement de 150, 200 et 240 °C et diminue pour la température de 100 °C (figure III-12). Étant donné que K_u augmente en fonction du vieillissement, le modèle peut, donc, justifier l'augmentation de H_c dans le cas des vieillissements 150, 200 et 240 °. Cela est cohérent en considérant que l_k reste constante ou plutôt diminue. Pour que le modèle soit applicable sur le vieillissement de 100 °C, il faut que la longueur l_k augmente d'avantage que K_u en fonction du vieillissement.

- **Cas de $\mu_i \propto (1/\langle K \rangle)$**

Les résultats de vieillissement montrent bien que μ_i diminue et l'énergie d'anisotropie totale E_K , en l'occurrence $\langle K \rangle$, augmentent pour toutes les températures de vieillissement (figure III-30). Qualitativement, le modèle suit bien la tendance de la diminution de μ_i quand $\langle K \rangle$ augmente.

III.3.4 Comparaison des comportements en vieillissement entre $\mu 50000$ et $\mu 30000$

La figure III-38 présente un schéma illustratif qui compare l'influence des énergies d'anisotropies instaurées durant le vieillissement sur le processus d'aimantation avant et après les vieillissements des deux nuances étudiées.

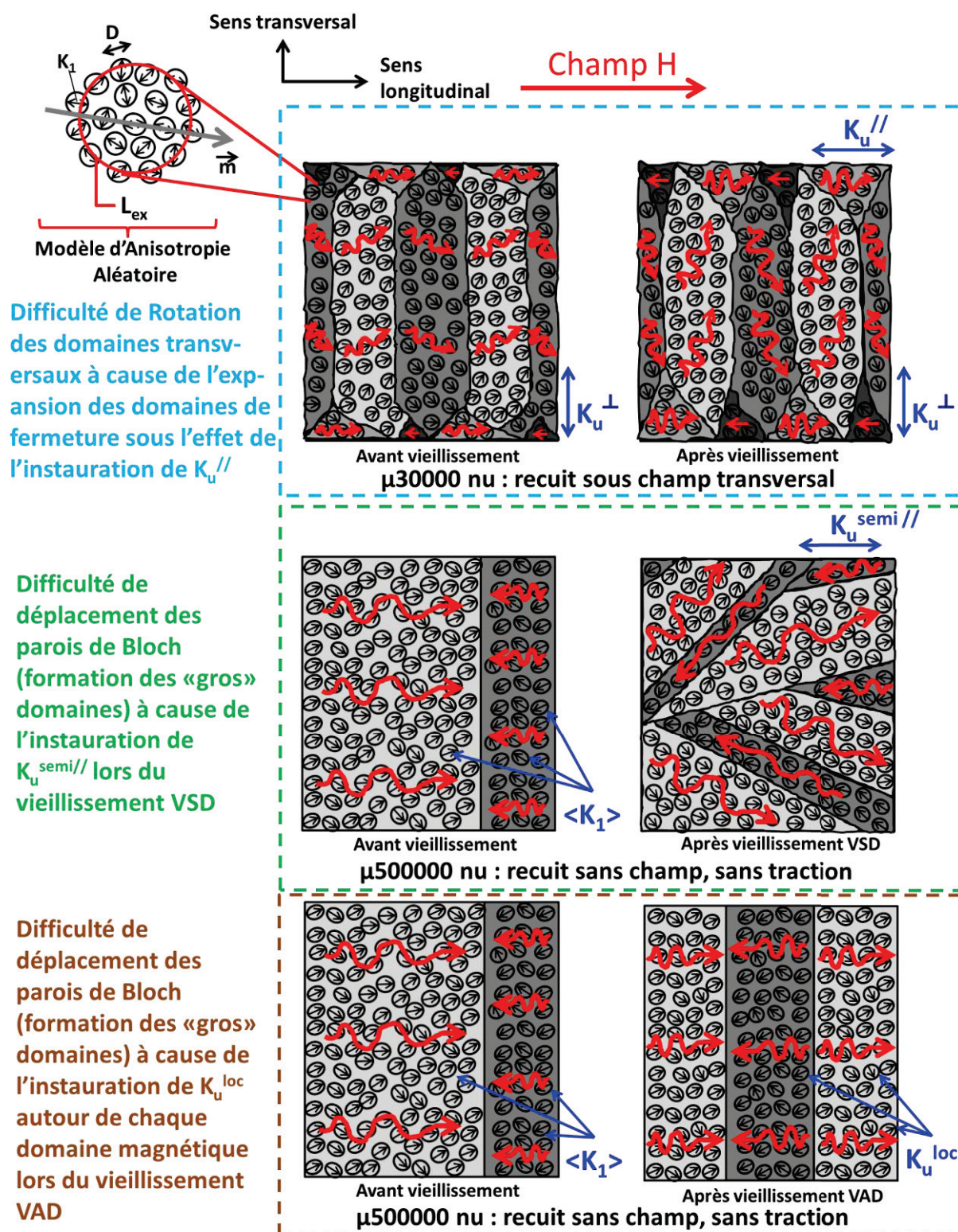


Figure III-38 Schéma illustratif du modèle RAM et de l'influence des énergies d'anisotropie sur les orientations des domaines magnétiques lors de l'aimantation avant et après vieillissement des nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$.

Les matériaux nanocristallins $\mu 30000$ nus montrent peu de variations de leurs propriétés macroscopiques (H_c , B_r et μ_i) lors du vieillissement contrairement aux matériaux nanocristallins $\mu 500000$ nus. En particulier, les pertes magnétiques varient peu pour les

matériaux nanocristallins $\mu 30000$. Cela est expliqué par le fait de la dominance de l'énergie d'anisotropie E_{Ku} sur $\langle E_{K1} \rangle$. Quand E_{Ku} est importante, les moments magnétiques sont forcés de s'aligner parallèlement à la direction de K_u [17]. Lors du vieillissement, avec le peu d'instauration de l'anisotropie $K_u^{//}$ et de $\langle K_1 \rangle$ (augmente en $\sqrt{K_u}$), l'alignement parallèle des moments magnétiques dans le sens transversal se désoriente peu. De plus, l'expansion des domaines de fermeture n'est pas très efficace pour gêner la rotation des domaines transversaux, en conséquence, les propriétés magnétiques varient peu.

La dégradation importante des propriétés magnétiques du matériau nanocristallin $\mu 500000$ est liée à la faible énergie d'anisotropie $\langle E_{K1} \rangle$ (1 J/m^3) qui gère l'aimantation.

- Avec le vieillissement VSD, $K_u^{semi//}$ augmente et devient rapidement concurrente à $\langle E_{K1} \rangle$ et finit, d'ailleurs, par dominer dans tout le matériau (voir figure III-27). Donc $K_u^{semi//}$ impose durant le vieillissement une structure en domaine qui est celle d'une induction égale à B_r qui empêche, principalement, la formation des « gros » domaines magnétiques. En conséquence, les propriétés magnétiques se détériorent fortement.
- Avec le vieillissement VAD, K_u^{loc} augmente et devient rapidement concurrente à $\langle E_{K1} \rangle$ et finit, d'ailleurs, par dominer dans tout le matériau (voir figure III-27). En effet, K_u^{loc} s'instaure autour de chaque domaine magnétique ce qui empêche, principalement, la formation des « gros » domaines magnétiques. En conséquence, les propriétés magnétiques se détériorent fortement.

La figure III-39 présente l'évolution de l'énergie d'anisotropie instaurée par le vieillissement ΔE_K dans les nuances $\mu 500000$ VSD et $\mu 30000$ nus pour les quatre températures.

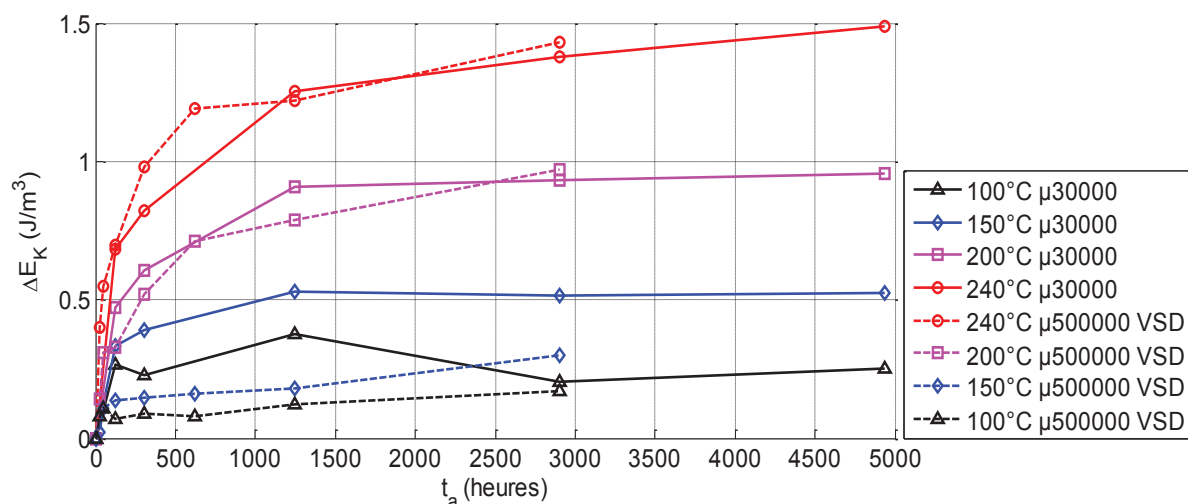


Figure III-39 Comparaison des évolutions de ΔE_K entre les deux nuances $\mu 500000$ (Vieillissement VSD) et $\mu 30000$.

La figure III-39 montre bien, pour les températures de 200 et 240 °C, que l'évolution de ΔE_K instaurée dans les deux nuances est presque identique. Pour les températures inférieures, de 100 et 150 °C, les évolutions de l'anisotropie ΔE_K ne sont pas tout à fait semblables mais sont du même ordre de grandeur. Cependant, la quantité d'énergie d'anisotropie introduite dans les matériaux magnétiques nanocristallins ne dépend pas de leur nuance mais des conditions de leur vieillissement (temps, température, sous aimantation, sous champ, ...).

III.4 Interprétation des mesures de microstructure

L'étude des changements au niveau structurel peut permettre d'établir un lien avec l'évolution des anisotropies responsables du vieillissement magnétique. C'est l'objectif de cette partie. Des mesures de PTE (Pouvoir Thermo Electrique), de DSC (Differential Scanning Calorimetry) et de DRX (Diffraction de Rayons X) sont présentées et analysées.

III.4.1 Changement de phase des deux nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$

III.4.1.1 Mesures PTE (Pouvoir Thermo-Electrique)

Les mesures PTE des deux nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$ ne montrent pas de variations franches alors que, pour les mêmes temps et températures de vieillissement, ces deux nuances présentent des changements au niveau des propriétés macroscopiques magnétiques. Ces mesures sont données dans les tableaux III-1 et III-2.

Temps (heures)	0h	500h	1320 h
PTE(nV/°C)/240°C	-2960,75	-2979,25	-2975,25
PTE(nV/°C)/150°C	-2960,75	-2960,25	-2942,5

Tableau III-1 Mesures PTE du $\mu 500000$ pour le vieillissement 150 et 240 °C.

Temps (heures)	0	4992h
PTE(nV/°C)/240 °C	-3026	-3016,25

Tableau III-2 Mesures PTE du $\mu 30000$ pour le vieillissement 240 °C.

Les dispersions de mesures observées à chaque étape de vieillissement pour plusieurs échantillons de même nuance (4 échantillons à chaque fois) est de l'ordre de dizaines de nV/°C. Les différences observées sur les mesures PTE en fonction du vieillissement, qui sont aussi de l'ordre de dizaines de nV/°C, sont liées au fait que plusieurs échantillons ont été utilisés pour les différents temps de vieillissement.

III.4.1.2 Mesures DSC (Differential Scanning Calorimetry)

Les premiers thermogrammes obtenus en DSC sur des échantillons non vieillis, par montée en température de 25 °C à 300 °C à la vitesse de 15 °C/min, ont indiqué qu'aucune transformation n'avait lieu lors de cette montée en température. Les températures de vieillissement étudiées étant inférieures à 250 °C, ont permis de conclure que, si thermodynamiquement des transformations sont présentes à ces températures, la vitesse du test de DSC (15 °C/min) est trop importante par rapport à la cinétique de ces transformations pour qu'elles aient lieu.

Pour observer tout de même ces transformations, deux techniques sont possibles : aller à haute température pour les accélérer, mais en risquant toutefois d'observer d'autres phénomènes, ou bien laisser le temps à la transformation de se faire à la température étudiée, en effectuant une mesure isotherme.

De nouveaux essais ont été réalisés en montant en température jusqu'à 600 °C ce qui constitue la limite supérieure imposée par le matériel expérimental. Là encore, aucune transformation de phase n'est observée (voir figure III-40 et III-41). Seul le thermogramme du matériau $\mu 500000$ laisse supposer un début de transformation vers 590 °C, mais on est alors à une température bien supérieure à celles considérées pour les vieillissements.

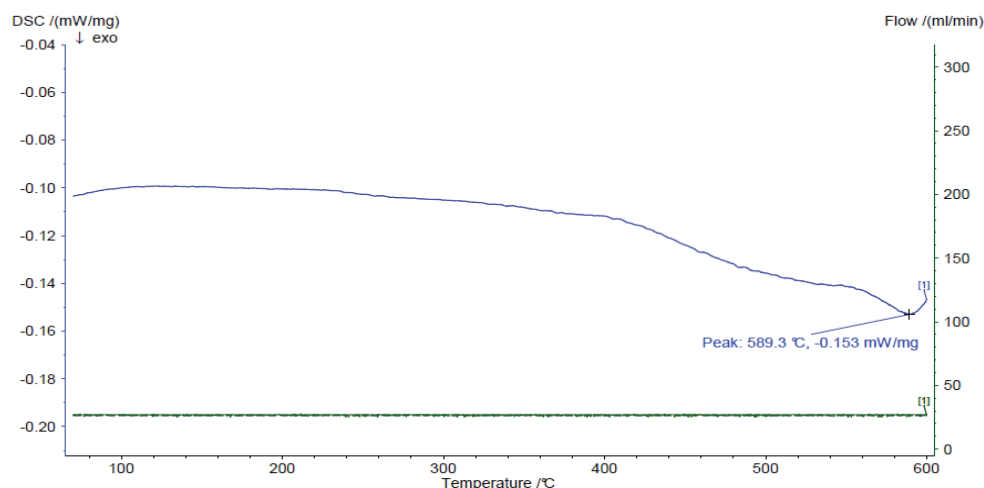


Figure III-40 Analyse thermique du $\mu 500000$ avec une montée en température de 15 °C/min.

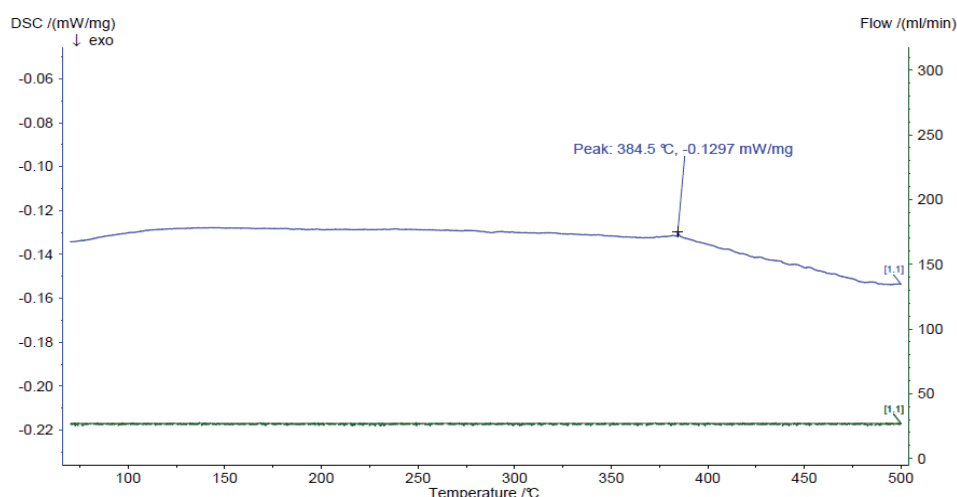


Figure III-41 Analyse thermique du $\mu 30000$ avec une montée de température de 15 °C/min.

La figure III-42 montre l'analyse thermique isotherme appliquée pendant 15 heures sur le $\mu 500000$ à 340 °C (100°C au-dessus de la plus haute température de vieillissement étudiée). Ici aussi, aucune transformation n'est observée alors que les vieillissements VSD et VAD du matériau $\mu 500000$ pendant 15 heures à 240°C ont provoqué des dégradations magnétiques notables :

Propriété magnétique	Evolution VSD (%)	Evolution VAD (%)
H_c	+ 60	+ 16
$P_{\text{statiques 1Hz}}$	+ 45	+ 14
E_K (énergie d'anisotropie totale)	+ 17	+ 5
$P_{\text{dynamiques 1kHz/0.8T}}$	+ 30	+ 12

Tableau III-3 Evolutions des propriétés magnétiques du $\mu 500000$ après 15 heures de vieillissement VSD et VAD à 240 °C.

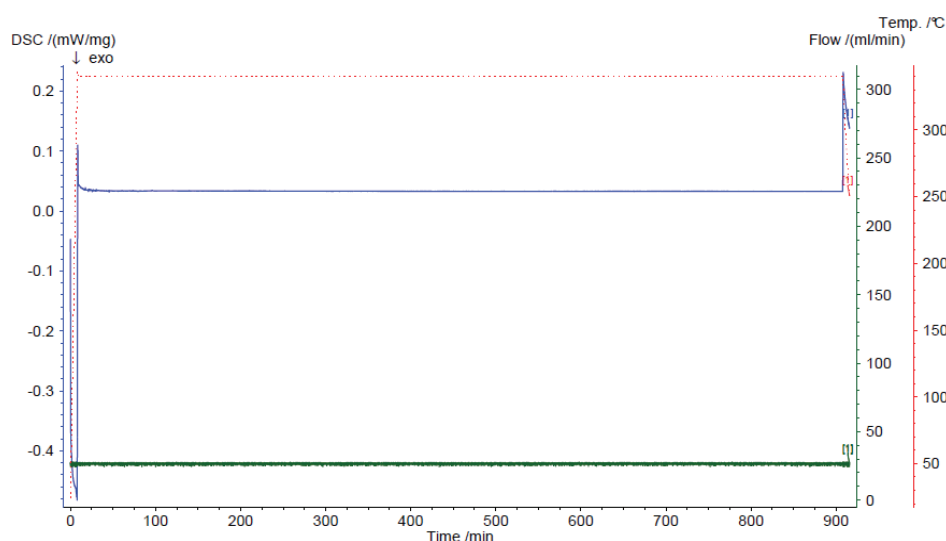


Figure III-42 Analyse thermique isotherme du $\mu 500000$ (courbe rouge discontinue). Montée en température de 20 °C à 340 °C avec la vitesse de 40 °C/min suivie d'une isotherme de 15 heures à 340 °C, puis d'une descente en température.

III.4.1.3 Mesures DRX (Diffraction de Rayons X)

Les mesures DRX sont rapportées, dans les sections III.3.2.1.1 et III.3.2.2.1 respectivement pour les matériaux de nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$. Après 1320 heures de vieillissement à 240 °C du matériau $\mu 500000$ et 5000 heures de vieillissement à 240 °C du $\mu 30000$, les mesures de DRX n'ont pas présenté de nouveaux pics. Donc les deux matériaux de nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$ n'ont pas subi de transformation de phase.

III.4.1.4 Vieillissement sous ampoule d'un échantillon $\mu 500000$

Nous avons remarqué que les échantillons magnétiques selon la température de vieillissement changent de couleur (ils brunissent). La mise des échantillons dans une ampoule (sous vide) permet de les isoler de l'atmosphère et de limiter les réactions qui peuvent avoir lieu entre celle-ci et les matériaux, par exemple l'oxydation. La figure III-43 présente la mise dans une ampoule d'un échantillon de nuance $\mu 500000$.

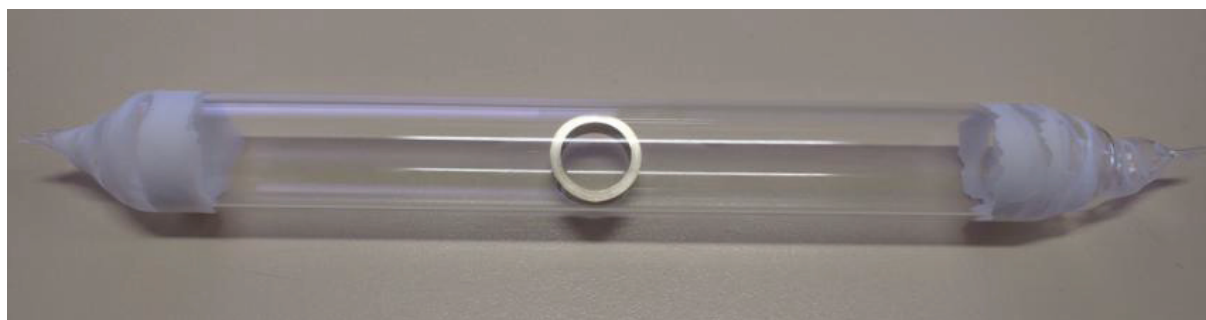


Figure III-43 Echantillon $\mu 500000$ mis dans une ampoule (l'échantillon est confiné dans le peu d'air emprisonné dans l'ampoule).

Après un vieillissement de l'échantillon $\mu 500000$ placé dans l'ampoule durant 127 heures à la température de 240 °C, le matériau présente les mêmes évolutions de ses propriétés magnétiques que celles du matériau vieilli sous atmosphère (voir figure III-44). Ce résultat est en accord avec les mesures DRX qui ne montrent pas de nouveaux pics liés à une oxydation.

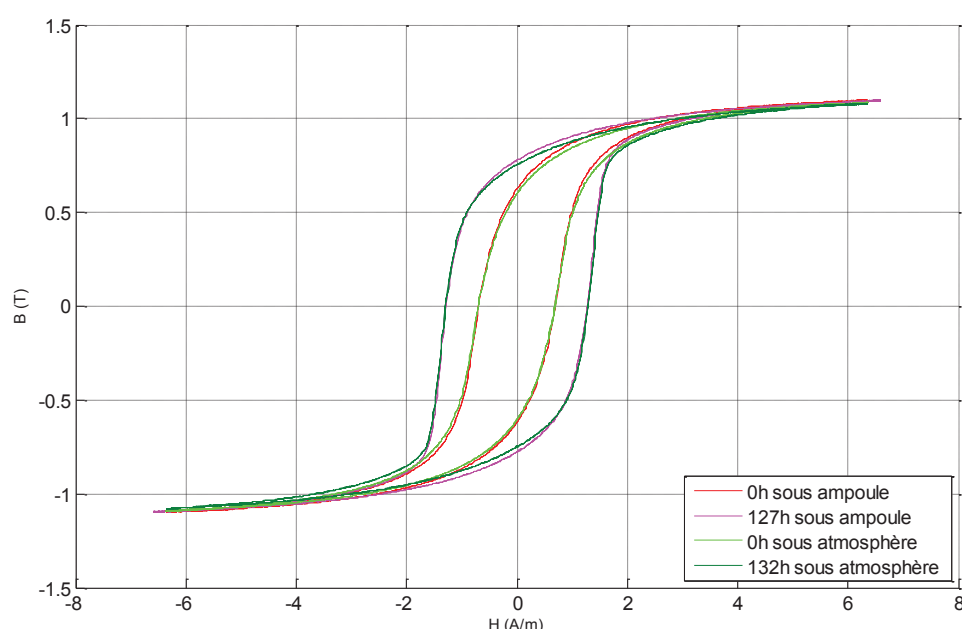


Figure III-44 Cycles d'hystérésis statiques (1 Hz) avant et après 130 heures de vieillissement à 240°C d'un échantillon $\mu 500000$ vieilli dans une ampoule (presque sous vide) et d'un échantillon $\mu 500000$ vieilli sous atmosphère.

III.4.2 Suspections de la diffusion du Silicium dans les nano-grains

III.4.2.1 Diminution de la constante de magnétostriction de la phase cristalline FeSi :

$$\lambda_s^{\text{FeSi}}$$

La constante de magnétostriction à saturation dépend de la teneur en Si dans les grains FeSi. D'après G. Herzer [13], la figure III-45 présente l'évolution de la constante de magnétostriction à saturation de plusieurs alliages $\text{Fe}_{96-z}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_x\text{B}_{z-x}$ à l'état amorphe et nanocristallin. La quantité z (Si+B) varie dans la plage de 18.5 à 23.5 at%. La magnétostriction locale FeSi (λ_s^{FeSi}) est estimée grâce aux travaux de Yamamoto [18]. D'après la figure III-45 la diminution de la constante de magnétostriction λ_s en fonction du

vieillissement des deux nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$, va dans le sens d'une augmentation de la teneur en Si dans la phase FeSi. En effet, en fonction du vieillissement, il y aurait plus de probabilités de variation de λ_s^{FeSi} que de variation de λ_s^{am} car, au-dessus de 5at% de Si comme montré dans la figure III-45, l'évolution de λ_s^{am} est indépendante de la teneur en Si alors que λ_s^{FeSi} diminue avec l'augmentation de la teneur en Si. La diminution de λ_s^{FeSi} serait faible. Afin de quantifier cette constante, on utilise l'équation (III.6) avec les valeurs de λ_s mesurées grâce au banc SAMR, un λ_s^{am} fixe de 24.4 ppm et f_x de 0.77. La fraction f_x n'aurait pas évolué en fonction du vieillissement d'après les mesures de DRX.

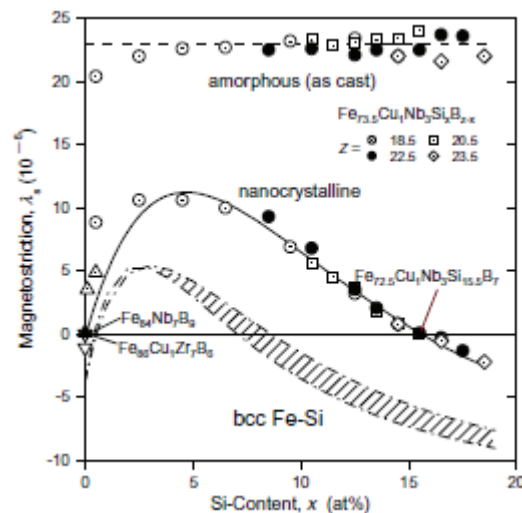


Figure III-45 Variation de la constante de magnétostriction à saturation λ_s de plusieurs alliages $\text{Fe}_{96-z}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_x\text{B}_{z-x}$ à l'état amorphe et nanocristallin. La zone hachurée montre une estimation de λ_s^{FeSi} des grains bcc avec les résultats de Yamamoto [18] [13].

La figure III-46 présente deux séries d'évolution de la constante λ_s^{FeSi} correspondant à deux échantillons de matériaux $\mu 500000$ ainsi que la moyenne de ces deux valeurs de λ_s^{FeSi} . Le calcul est effectué grâce à l'équation (III.6) et le vieillissement est d'une durée de 2100 heures à la température de 240 °C.

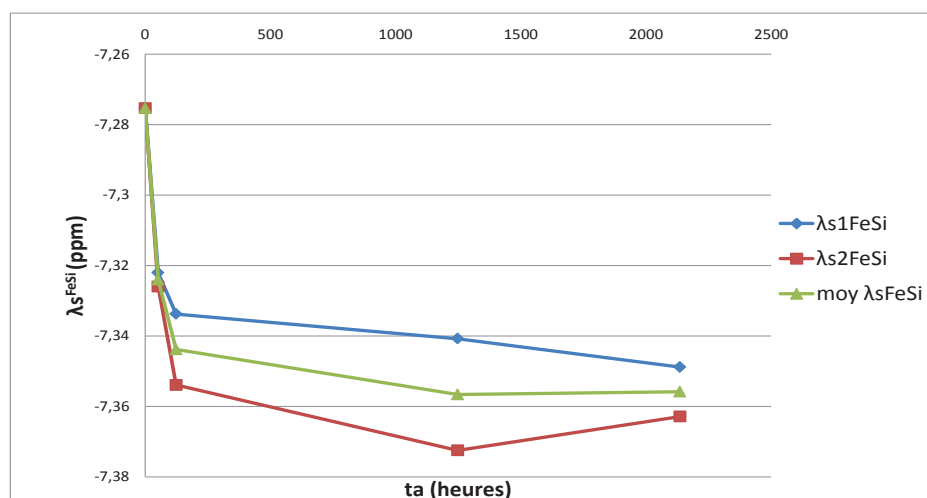


Figure III-46 Estimation de l'évolution de λ_s^{FeSi} en fonction du temps pour le vieillissement du $\mu 500000$ à 240 °C.

Selon la courbe moyenne, la magnétostriction à saturation de la phase FeSi passe de -7.27 à -7.35 ppm après 2100 heures de vieillissement à 240 °C. Pour le $\mu 30000$ la diminution de λ_s^{FeSi} est encore plus faible car sa constante λ_s a diminué d'au maximum 10 % pour 2100 heures de vieillissement à 240 °C.

III.4.2.2 Diminution des distances interréticulaires des cristaux FeSi

Une autre méthode pour confirmer cette tendance de diffusion de Si vers les nanos-grains est de calculer les distances interréticulaires des cristaux FeSi. Le calcul est fait grâce à l'équation de Bragg (équation (II.9) du chapitre II) avec l'angle de diffusion du plan concerné (hkl). La distance inter réticulaire (110) du fer pur vaut $d_{110}=2.026 \text{ \AA}$ ce qui correspond à un paramètre de maille $a=2.866 \text{ \AA}$. Par contre, la distance inter réticulaire d_{110} du FeSi pour les nuances étudiées, avant de les faire vieillir, est plus faible d'environ $d_{110}=2.000 \text{ \AA}$, ce qui correspond à un paramètre de maille de $a=2.828 \text{ \AA}$. Donc, la présence de Silicium en solution solide dans les nanocristaux de fer a bien tendance à réduire la distance inter réticulaire (en conséquence le paramètre de maille diminue aussi) comme remarqué dans [19].

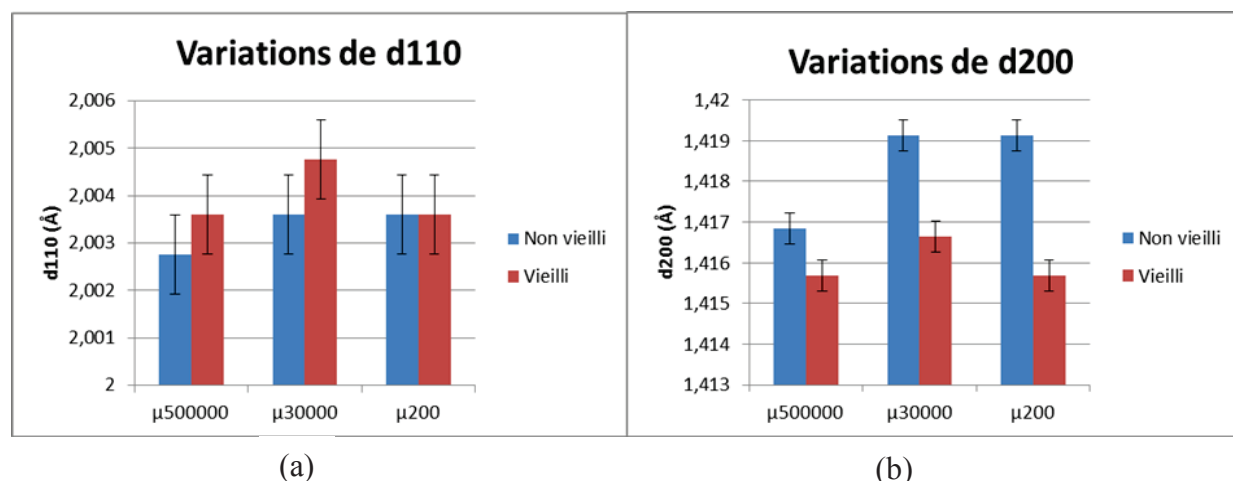


Figure III-47 Variations des distance inter réticulaires d_{110} et d_{200} en fonction du vieillissement à 240 °C. Le nanocristallin $\mu 500000$ a vieilli pendant 1300 heures, $\mu 30000$ et $\mu 200$ ont vieilli pendant 5000 heures.

Les variations de d_{110} , en fonction du vieillissement, sont de l'ordre de l'incertitude de mesure qui est de $0.00084 \text{ \AA}$ (figure III-47.a). Donc, d_{110} n'aurait pas évolué en fonction du vieillissement pour toutes les nuances. Par contre, d_{200} présente une diminution franche pour toutes les nuances (incertitude de mesure $0.00038 \text{ \AA}$) (figure III-47.b). Cela irait donc plutôt dans le sens d'une diminution du paramètre de maille et donc d'une migration du silicium vers les nanocristaux. Cette migration est forcément faible étant donné qu'on ne la voit pas sur les plans (110).

III.4.3 Conclusion

Le vieillissement magnétique n'est pas lié à des transformations de phase qui peuvent avoir lieu grâce aux mécanismes de diffusion de grande distance. Il plutôt lié aux mécanismes de diffusion de courtes distances comme par exemple la faible diffusion du Silicium vers les nano-grains. Donc, structurellement, l'augmentation des énergies d'anisotropie (E_{Ku}^{loc} ,

$E_{Ku}^{semi//}$ dans le cas du $\mu 500000$; E_{Ku} et $\langle E_{KI} \rangle$ dans le cas du $\mu 30000$) pourrait être liée à une contribution de la diffusion de courte distance du silicium vers les nano-grains.

III.5 Conclusion

Comme vu dans la littérature, les matériaux nanocristallins de hautes perméabilités vieillissent plus rapidement que les matériaux de basses perméabilités. C'est le cas des deux nuances haute et moyenne perméabilités ($\mu 500000$ et $\mu 30000$ respectivement) étudiées dans ce chapitre. Plus précisément, le vieillissement des nanocristallins n'est pas lié à la haute perméabilité mais plutôt au type de recuit que ces matériaux ont subi.

L'étude de l'évolution des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement donne un début d'explication au vieillissement magnétique. En effet, les énergies d'anisotropie instaurées pendant les traitements de vieillissements thermiques perturbent le processus d'aimantation, notamment : le déplacement des parois de Bloch dans le cas des échantillons $\mu 500000$ et la rotation des domaines magnétiques dans le cas des échantillons $\mu 30000$. Le degré de cette perturbation dépend de la compétitivité de l'énergie d'anisotropie introduite par le vieillissement par rapport à l'énergie d'anisotropie prédominante dans le matériau. Par exemple, dans le cas du vieillissement VSD des échantillons $\mu 500000$, l'énergie d'anisotropie $E_{Ku}^{semi//}$ introduite par le vieillissement est devenue rapidement compétitive par rapport à l'énergie d'anisotropie prédominante $\langle E_{KI} \rangle$. Par conséquent, les propriétés magnétiques sont endommagées drastiquement par le vieillissement thermique VSD.

La quantité de l'énergie d'anisotropie introduite lors du vieillissement dans les deux nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$ est du même ordre de grandeur. Cependant, cette dernière dépend, uniquement des conditions de traitement du vieillissement (temps, température, sous aimantation ou non ...).

En fonction du vieillissement, les mesures microscopiques n'ont pas montré de changements notables pour établir des corrélations avec les évolutions des propriétés magnétiques macroscopiques. Toutefois, grâce aux calculs des distances interréticulaires et aux mesures de magnétostriction (mesures de DRX) il y a des suspicions de diffusion du Silicium vers les nano-grains.

III.6 Références

- [1] Rainer Hilzinger and Werner Rodewald, “Magnetic Materials,” in *Magnetic Materials*, Germany: VACUUMSCHMELZE GmbH & Co, 2013.
- [2] G. Herzer, “Anisotropies in soft magnetic nanocrystalline alloys,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 294, no. 2, pp. 99–106, Jul. 2005.
- [3] K. Twarowski, M. Kuźmiński, A. Ślawska-Waniewska, H. K. Lachowicz, and G. Herzer, “Magnetostriction and its temperature dependence in FeCuNbSiB nanocrystalline alloy,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 150, no. 1, pp. 85–92, Sep. 1995.
- [4] Y. Yao, “Etudes des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB pour applications en électronique de puissance,” phd thesis, Université Grenoble Alpes, 2015.
- [5] H. Chazal, O. Geoffroy, J. L. Porteseil, and T. Waeckerlé, “Influence of magnetoelastic effects on the coercivity of ultrasoft nanocrystalline alloys,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 272–276, Part 2, pp. 1436–1438, May 2004.
- [6] K. Twarowski, M. Kuźmiński, A. Ślawska-Waniewska, H. K. Lachowicz, and G. Herzer, “Magnetostriction of Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{15.5}B₇ nanocrystalline alloy,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 140, pp. 449–450, Feb. 1995.
- [7] A. T. D’Agostino, “Determination of thin metal film thickness by x-ray diffractometry using the Scherrer equation, atomic absorption analysis and transmission/reflection visible spectroscopy,” *Analytica Chimica Acta*, vol. 262, no. 2, pp. 269–275, Jun. 1992.
- [8] V. Uvarov and I. Popov, “Metrological characterization of X-ray diffraction methods for determination of crystallite size in nano-scale materials,” *Materials Characterization*, vol. 58, no. 10, pp. 883–891, Oct. 2007.
- [9] B. Hofmann and H. Kronmüller, “Stress-induced magnetic anisotropy in nanocrystalline FeCuNbSiB alloy,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 152, no. 1–2, pp. 91–98, Jan. 1996.
- [10] T. Waeckerlé, T. Save, and A. Demier, “New stressed and continuously annealed low μ nanocrystalline FeCuNbSiB cores for watt-hour-metering or differential mode inductance applications,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 320, no. 20, pp. e797–e801, Oct. 2008.
- [11] T. Waeckerlé, A. Demier, and S. Camus, “Effect of aging on FeCuNbSiB nanocrystalline magnetic properties,” *Soft Magnetic Materials Conference*, São Paulo, Brasil, p. 4, 2015.
- [12] G. Herzer, “Nanocrystalline soft magnetic materials,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 157, pp. 133–136, May 1996.
- [13] G. Herzer, “Modern soft magnets: Amorphous and nanocrystalline materials,” *Acta Materialia*, vol. 61, no. 3, pp. 718–734, Feb. 2013.
- [14] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism*. Princeton (N.J.), Etats-Unis d’Amérique, Canada, Royaume-Uni de Grande-Bretagne et d’Irlande du Nord, 1951.

- [15] G. Bertotti, “Connection between microstructure and magnetic properties of soft magnetic materials,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 320, no. 20, pp. 2436–2442, Oct. 2008.
- [16] K. Suzuki and G. Herzer, “Magnetic-field-induced anisotropies and exchange softening in Fe-rich nanocrystalline soft magnetic alloys,” *Scripta Materialia*, vol. 67, no. 6, pp. 548–553, Sep. 2012.
- [17] S. Flohrer and G. Herzer, “Random and uniform anisotropy in soft magnetic nanocrystalline alloys (invited),” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 322, no. 9–12, pp. 1511–1514, May 2010.
- [18] T. Yamamoto, *The developments of sendust and other ferromagnetic alloys*. Chiba Japan: Committee of Academic Achievements, 1980.
- [19] S. P. Mondal, K. H. Maria, S. S. Sikder, S. Choudhury, D. K. Saha, and M. A. Hakim, “Influence of Annealing Conditions on Nanocrystalline and Ultra-Soft Magnetic Properties of Fe_{75.5}Cu₁Nb₁Si_{13.5}B₉ Alloy,” *Journal of Materials Science & Technology*, vol. 28, no. 1, pp. 21–26, Jan. 2012.

IV. Chapitre IV : Influence de l'enrobage sur le vieillissement thermique des nanocristallins moyenne et basse perméabilités.

IV.1 Introduction

Pour plusieurs raisons, les nanocristallins sont devenus très attractifs dans l'industrie notamment : la haute polarisation à saturation, la possibilité d'ajuster la perméabilité à volonté grâce aux techniques de recuit sous contraintes (mécaniques ou magnétiques) et aussi leurs faibles pertes magnétiques sur une plage de fréquence étendue à quelques centaines de kHz. Les paramètres principaux qui permettent cette performance sont la résistivité relativement haute qui est de $115 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ et surtout la faible épaisseur de ruban qui peut atteindre $18 \mu\text{m}$ voire moins. Cette deuxième caractéristique les rend très fragiles et donc vulnérables dans les environnements sévères

Minimiser la constante de magnétostriction λ_s jusqu'à son évanouissement est très important non seulement pour optimiser les performances des nanocristallins nus, mais aussi pour rendre le packaging moins contraignant compte tenu de leur fragilité. Les principaux types de packaging des nanocristallins sont l'imprégnation et l'enrobage et la mise en boîtier. L'imprégnation est un vernis mis sur les rubans nanocristallins afin d'augmenter leur ductilité. Son but principal est de rendre le découpage des circuits magnétiques possible ce qui permet d'introduire des entrefers afin de diminuer la perméabilité et aussi d'accéder à des géométries de circuits magnétiques plus complexes (des circuits en C rond, oblong ou rectangulaire, ou encore en E (= double C accolé) [1], [2]. L'enrobage est une résine d'époxy mise sur le noyau nanocristallin. Son objectif principal est la protection des circuits nanocristallins contre les vibrations et aussi des tensions de serrage des bobinages.

Dans ce chapitre, l'influence de l'enrobage sur le comportement magnétique de la nuance $\mu 30000$ durant le vieillissement thermique est étudiée. L'étude de l'influence de l'enrobage en fonction du vieillissement thermique dans le cas d'un matériau nanocristallin basse perméabilité ($\mu 200$) est aussi effectuée. Pour les deux nuances, l'étude est basée sur une comparaison du comportement magnétique en fonction du vieillissement entre les échantillons nus et enrobés. Les essais de vieillissement thermique ont été limités aux températures de 100, 150 et 200 °C.

Comme au chapitre précédent, ce chapitre va présenter en premier lieu les résultats de vieillissement les plus pertinents puis suivra une interprétation de ces résultats grâce à l'étude de l'évolution des énergies d'anisotropie et à l'aide des mesures de microstructures et de magnétostriction. A la fin de ce chapitre, une tentative visant à corréler l'évolution des énergies d'anisotropie avec l'évolution des propriétés magnétiques en fonction du vieillissement sera présentée.

IV.2 Résultats de vieillissement

Les grandeurs relevées pour chaque étape de vieillissement sont reportées en valeurs relatives par rapport aux valeurs initiales (avant vieillissement) (équation (III.1)). Les courbes de l'évolution des propriétés magnétiques sont en fonction du temps de vieillissement t_a et

paramétrées en températures de vieillissement T_a . Les courbes tracées représentent à chaque fois la moyenne de l'évolution de la propriété magnétique de deux échantillons identiques.

IV.2.1 Mesures initiales (avant vieillissement)

IV.2.1.1 Nanocristallins $\mu 30000$ nus et enrobés

Les tores nanocristallins nus et enrobés possèdent des propriétés magnétiques très douces. Les valeurs moyennes des principales propriétés magnétiques⁷ sont : $\langle H_c \rangle = 0.42$ A/m, $\langle B_r \rangle = 0.02$ T, $\langle \mu_i \rangle = 29600$ et $\langle P_{dyn} \rangle = 9.15$ W/kg pour les tores nus et $\langle H_c \rangle = 0.62$ A/m, $\langle B_r \rangle = 0.028$ T, $\langle \mu_i \rangle = 25558$ et $\langle P_{dyn} \rangle = 10.8$ W/kg pour les tores enrobés. On remarque que l'enrobage dégrade les propriétés magnétiques. Le tableau IV-1 présente les valeurs initiales de H_c , B_r , μ_i et P_{dyn} de tous les échantillons $\mu 30000$ nus et enrobés vieillis pour cette étude.

		H_c (A/m)		B_r (T)		μ_i		P_{dyn} (W/kg)	
		échan 1	échan 2	échan 1	échan 2	échan 1	échan 2	échan 1	échan 2
Tores nus	100 °C	0.37	0.49	0.017	0.019	26600	29890	8.84	9.61
	150 °C	0.49	0.41	0.027	0.019	30150	31460	10.28	9.02
	200 °C	0.38	0.37	0.020	0.019	28090	31370	8.13	9.05
Tores enrobés	100 °C	0.65	0.62	0.027	0.033	27480	28430	10.57	11.17
	150 °C	0.61	0.61	0.027	0.028	24860	22260	10.83	10.59
	200 °C	0.62	0.65	0.024	0.028	28220	22100	10.54	11.04

Tableau IV-1 Valeurs initiales des propriétés magnétiques des tores $\mu 30000$ nus et enrobés.

IV.2.1.2 Nanocristallins $\mu 200$ nus et enrobés

Les valeurs moyennes des principales propriétés magnétiques sont $\langle \mu_i \rangle = 203$ et $\langle P_{dyn} \rangle = 93$ W/kg pour les tores nus et $\langle \mu_i \rangle = 193$ et $\langle P_{dyn} \rangle = 254$ W/kg pour les tores enrobés. Compte tenu du très fort niveau d'excitation (plus de 7500 A/m) afin d'atteindre la saturation, la sensibilité du banc hystérésigraphe n'a pas été suffisante pour pouvoir extraire correctement les valeurs de H_c et de B_r . On remarque que l'enrobage détériore fortement les pertes P_{dyn} . Le tableau IV-2 présente les valeurs initiales de μ_i et P_{dyn} de tous les échantillons $\mu 200$ nus et enrobés vieillis pour cette étude.

		μ_i		P_{dyn} (W/kg)	
		échan 1	échan 2	échan 1	échan 2
Tores nus	100 °C	190	197	92	96
	150 °C	195	193	95	92
	200 °C	188	195	85	100
Tores enrobés	100 °C	206	201	295	252
	150 °C	204	208	227	234
	200 °C	196	201	271	244

Tableau IV-2 Valeurs initiales des propriétés magnétiques des tores $\mu 200$ nus et enrobés.

⁷ H_c , B_r ont été mesurés à 1 Hz, P_{dyn} a été mesuré à 10 kHz/0.8 T (sin) et μ_i a été mesuré à l'impédance mètre.

IV.2.2 Vieillissement des échantillons nanocristallins $\mu 30000$ nus et enrobés

IV.2.2.1 Mesures des cycles d'hystérésis quasi-statiques

La figure IV-1 présente deux cycles d'hystérésis quasi-statiques avant vieillissement et après environ 3000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C pour chaque finition du $\mu 30000$ (nue et enrobée). Les mesures sont faites à 1 Hz et à température ambiante.

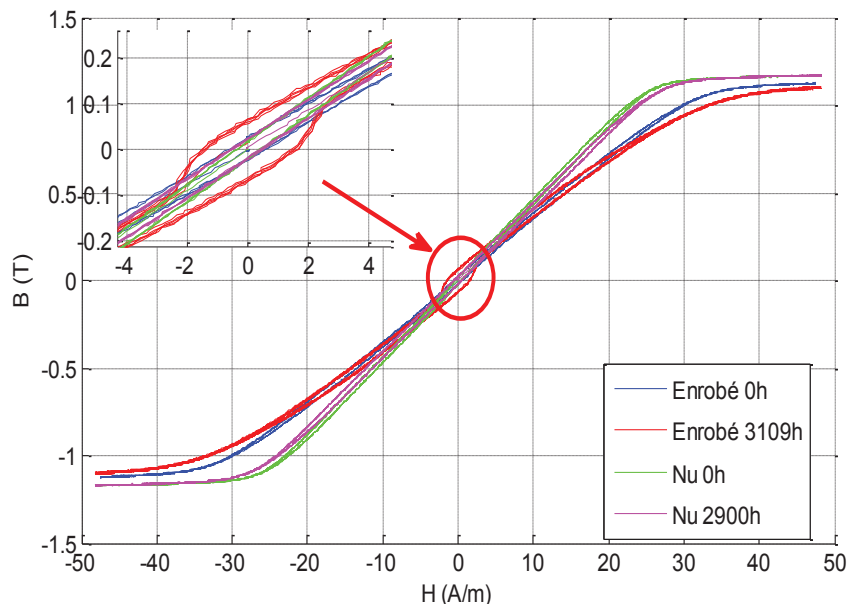


Figure IV-1 Cycles d'hystérésis quasi-statiques du $\mu 30000$ nu et enrobé mesurés à 1 Hz pour plusieurs durées de vieillissement à 200 °C.

Les cycles d'hystérésis des tores enrobés montrent, après vieillissement, un élargissement incohérent au niveau de leur centre (voir l'agrandissement). Cela engendre une augmentation excessive du champ coercitif et de l'induction rémanente. Les cycles montrent aussi une légère diminution de la perméabilité maximale mais, par contre, une diminution importante de la linéarité. Les cycles d'hystérésis des tores nus sont stables avec le vieillissement. Néanmoins, une légère diminution de la perméabilité maximale est visible. L'induction à saturation reste inchangée après vieillissement pour les deux types de finition nue et enrobée.

IV.2.2.1.1 Champs coercitif H_c et induction rémanente B_r

La figure IV-2 montre les évolutions relatives de H_c et B_r des tores nus et enrobés du $\mu 30000$ en fonction du temps de vieillissement pour les trois températures de vieillissement considérées.

Les noyaux enrobés vieillis à 200 °C présentent une stabilisation rapide de H_c et B_r jusqu'à environ 3000 heures après une importante et rapide augmentation de 120 % et 155 % respectivement au départ du vieillissement. Les évolutions des deux propriétés amorcent un changement après 3000 heures environ avec une diminution lente. Ces variations relatives de propriétés atteignent, à environ 6500 heures, 61 % d'augmentation de H_c et 63 % d'augmentation de B_r .

Le vieillissement à 150 °C des échantillons enrobés présente une augmentation lente mais monotone des deux propriétés. A environ 6500 heures, ces augmentations sont de 67 % pour H_c et de 81 % pour B_r .

Le vieillissement à 100 °C des échantillons enrobés présente des fluctuations autour de zéro pour les deux propriétés.

Les échantillons nus présentent une meilleure stabilité en fonction du vieillissement. C'est seulement pour le vieillissement accéléré de 200 °C que les variations de H_c et B_r deviennent notables. Ces évolutions présentent une stabilisation rapide avec un maximum d'augmentation de 34 % pour H_c et de 14 % pour B_r .

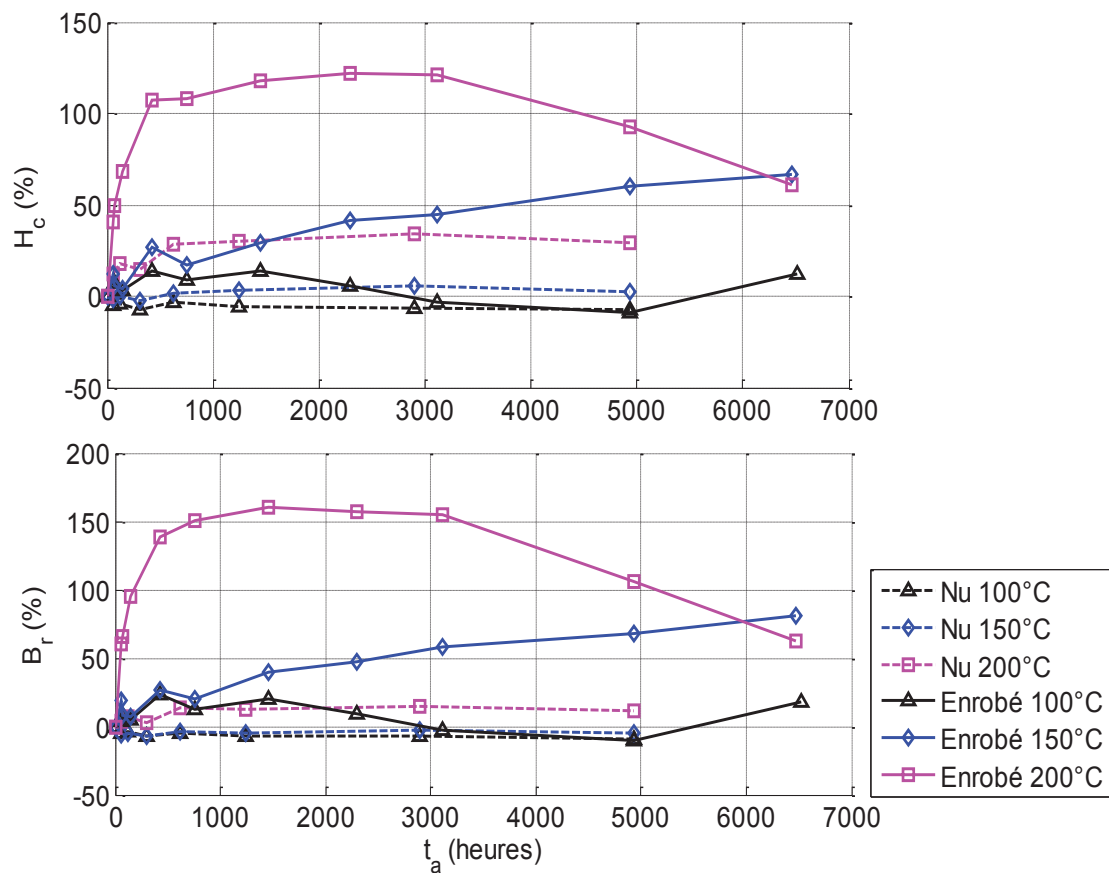


Figure IV-2 Evolutions de H_c et B_r des tores nus et enrobés du $\mu 30000$ en fonction du temps de vieillissement pour les trois températures. Les mesures sont faites à 1 Hz à la température ambiante.

IV.2.2.2 Mesures des cycles d'hystérésis dynamiques

La figure IV-3 présente deux cycles d'hystérésis dynamiques avant vieillissement et après environ 3000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C pour chaque finition du $\mu 30000$ (nue et enrobée). Les mesures sont faites à 0.8 T (sin)/10 kHz et à température ambiante.

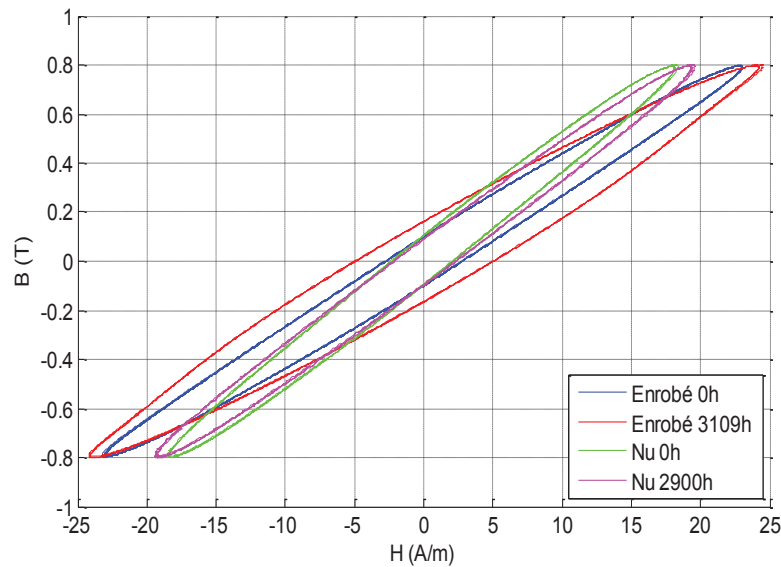


Figure IV-3 Cycles d'hystérésis dynamique du $\mu 30000$ nu et enrobé mesurés à $0.8T$ (sin)/10 kHz pour plusieurs durées de vieillissement à la température de 200°C .

Les cycles d'hystérésis dynamiques des échantillons enrobés s'élargissent en fonction du vieillissement accéléré à 200°C . Cela est synonyme d'une augmentation importante des pertes dynamiques. Les cycles d'hystérésis des échantillons nus présentent une bonne stabilité en fonction du vieillissement accéléré à 200°C .

IV.2.2.2.1 Pertes dynamiques P_{dyn}

La figure IV-4 présente l'évolution relative des pertes dynamiques des échantillons $\mu 30000$ nus et enrobés en fonction du temps pour les trois températures de vieillissement. Les mesures sont faites à induction sinusoïdale imposée de 0.8 T à 10 kHz et à la température ambiante.

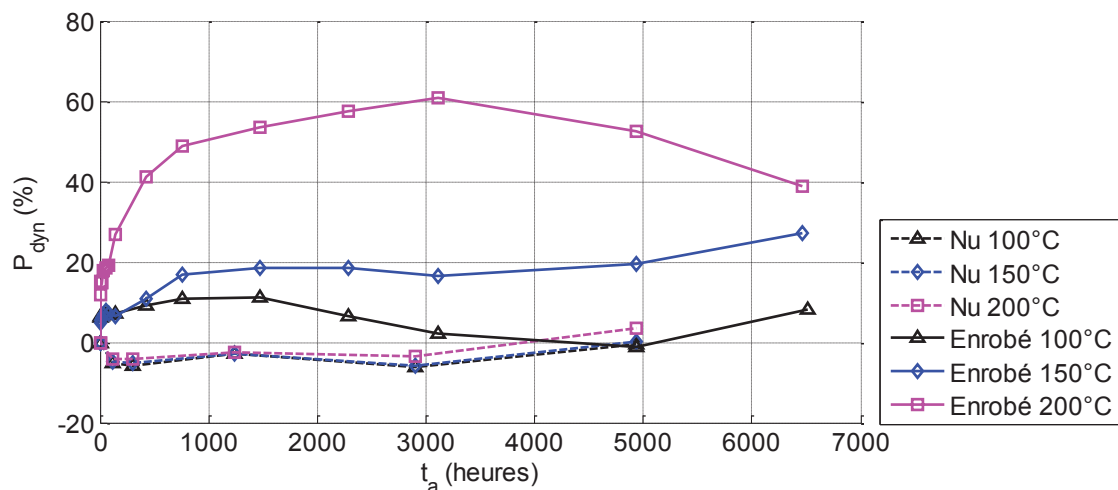


Figure IV-4 Evolutions de P_{dyn} des tores nus et enrobés du $\mu 30000$ en fonction du temps de vieillissement pour les trois températures de vieillissement. Les mesures sont faites à 0.8 T (sin)/10 kHz à la température ambiante.

Le vieillissement accéléré des tores enrobés à 200°C présente une augmentation rapide de 60 % des pertes dynamiques jusqu'à environ 3000 heures. Après cet intervalle de temps, les

perles dynamiques présentent une diminution lente pour atteindre à environ 6500 heures 40 % d'augmentation.

Le vieillissement à 150 °C des tores enrobés montre une stabilité des pertes P_{dyn} aux alentours de 18 % d'augmentation entre environ 900 et 5000 heures. Après 5000 heures, les pertes P_{dyn} amorcent une nouvelle augmentation pour atteindre 27 % vers 6500 heures de vieillissement. Le vieillissement à 100 °C des tores enrobés montre des fluctuations des pertes P_{dyn} aux alentours de 7 % d'augmentation.

Les tores nus présentent, quelle que soit la température de vieillissement, une légère diminution des pertes P_{dyn} durant une longue durée de vieillissement jusqu'à environ 3000 heures. Après cette durée, les pertes P_{dyn} augmentent pour atteindre le niveau initial.

Il est à noter que la résistivité n'a pas changé pendant le vieillissement (y compris après 7300 heures de vieillissement accéléré à 240 °C). Cela signifie que les pertes par courants de Foucault ne contribuent pas à l'évolution de P_{dyn} au cours du vieillissement. La seule contribution est liée aux pertes excédentaires (les pertes par hystérésis sont négligeables).

IV.2.2.3 Mesures à l'impédance mètre

La figure IV-5 présente la perméabilité complexe μ' (partie réelle) et μ'' (partie imaginaire) en fonction de la fréquence (en échelle logarithmique) de deux échantillons $\mu 30000$ nu et enrobé avant et après environ 3000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C.

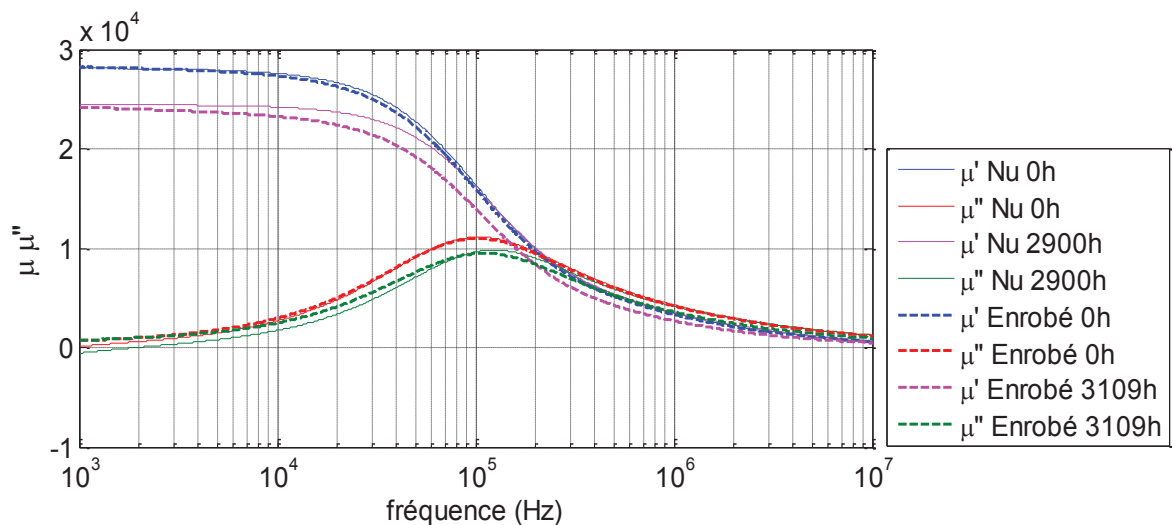


Figure IV-5 Perméabilité complexe du $\mu 30000$ nu et enrobé (partie réelle : μ' et partie imaginaire : μ'') avant et après environ 3000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C.

Le plateau de perméabilité μ' semble décroître de la même quantité pour les nanocristallins nus et enrobé. La perméabilité μ'' semble aussi décroître de la même quantité pour les deux échantillons.

IV.2.2.3.1 Perméabilité initiale μ_i

La perméabilité initiale μ_i considérée correspond à μ' à la fréquence de 1 kHz. La figure IV-6 présente l'évolution de μ_i des échantillons $\mu 30000$ nus et enrobés en fonction du temps de vieillissement pour les trois températures de vieillissement.

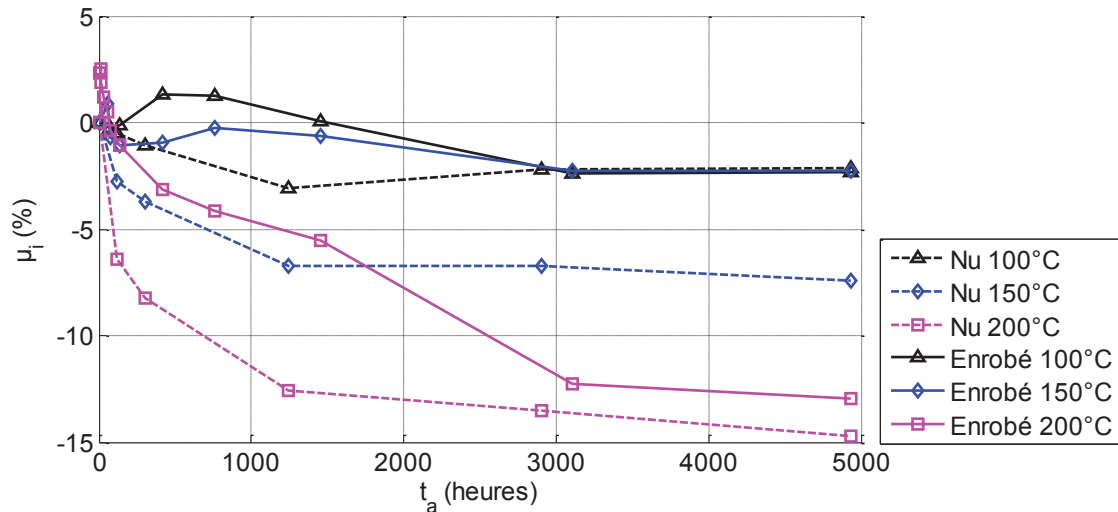


Figure IV-6 Evolutions de μ_i des tores $\mu 30000$ nus et enrobés en fonction du temps de vieillissement pour les trois températures de vieillissement.

Les tores nus présentent une diminution monotone de μ_i pour les trois températures de vieillissement. La réduction maximum est de 15 % après environ 5000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C. Les tores enrobés présentent des évolutions non-monotones en fonction des trois températures de vieillissement. Les vieillissements à 100 et 150 °C des tores enrobés montrent des évolutions similaires de μ_i . Les évolutions sont très faibles avec seulement 2 % de réduction après environ 5000 heures de vieillissement. Le vieillissement accéléré des tores enrobés à 200 °C présente une diminution notable de μ_i qui rattrape (presque) celle des tores nus après environ 3000 heures de vieillissement.

IV.2.2.3.2 Fréquence de coupure f_c

La fréquence de coupure f_c est relevée à la crête que présente μ'' . La figure IV-7 montre l'évolution de f_c des deux nuances $\mu 30000$ nue et enrobée en fonction du temps pour les trois températures de vieillissement. Les vieillissements à 100 et à 150 °C des échantillons $\mu 30000$ nus présentent une évolution faible de f_c avec une tendance rapide de stabilisation autour de 4 % et 10 % pour les vieillissements à 100 et à 150 °C respectivement. Le vieillissement accéléré à 200 °C montre une évolution de f_c plus importante qui ne semble pas tendre vers une stabilisation. L'augmentation atteint 23 % après environ 5000 heures de vieillissement. L'évolution de f_c des échantillons $\mu 30000$ enrobés n'est pas monotone en fonction des trois températures de vieillissement, néanmoins, elle montre une augmentation faible (au maximum 8 %) au cours des vieillissements.

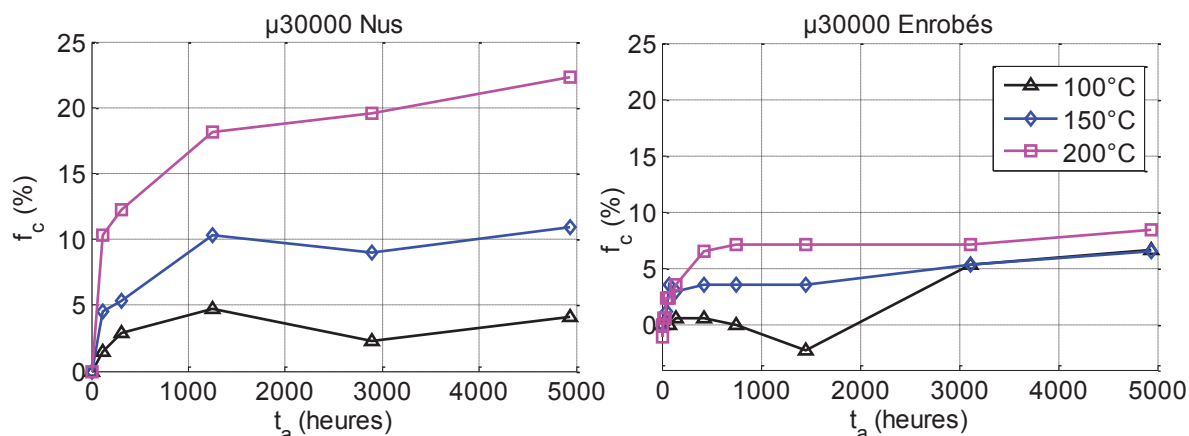


Figure IV-7 Evolution de f_c des échantillons $\mu 30000$ en fonction du temps et températures de vieillissement (à droite pour les échantillons nus et à gauche pour les échantillons enrobés).

IV.2.3 Vieillissement des échantillons nanocristallins $\mu 200$ nus et enrobés

IV.2.3.1 Mesures des cycles d'hystérésis quasi-statiques

La figure IV-8 présente deux cycles d'hystérésis quasi-statiques avant vieillissement et après environ 3000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C pour chaque finition du $\mu 200$ (nue et enrobée). Les mesures sont faites à 1 Hz et à la température ambiante.

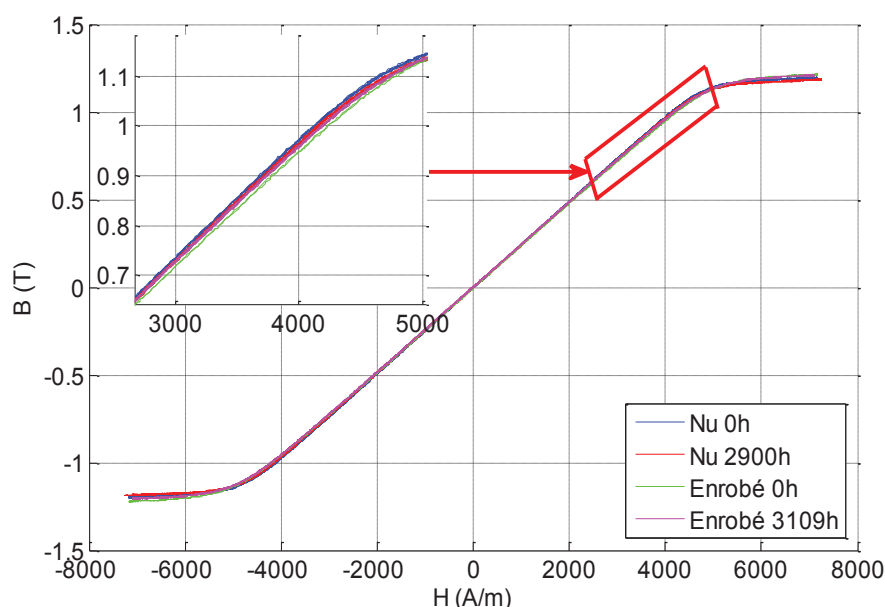


Figure IV-8 Cycles d'hystérésis quasi-statiques du $\mu 200$ nu et enrobé mesurés à 1 Hz pour plusieurs durées de vieillissement à la température de 200 °C.

En fonction du vieillissement à 200 °C les cycles d'hystérésis quasi-statiques des échantillons nus et enrobés ne montrent pas de changements visibles. Néanmoins, on remarque une légère variation de la perméabilité (voir l'agrandissement dans la figure IV-8). L'extraction du champ coercitif H_c et de l'induction rémanente B_r n'était pas possible avec ces cycles d'hystérésis. La raison est liée au fait que les cycles sont très linéaires et que l'hystérésisgraphe ne donne pas une bonne précision au niveau du H_c et de B_r lorsqu'on monte aussi haut en

champ imposé (plus de 7500 A/m). On observe une légère variation de l'induction pour le champ maximum imposé de 7500 A/m. Pour des champs imposés supérieurs à 7500 A/m l'induction à saturation B_{sat} présenterait des variations encore plus faibles en fonction du vieillissement.

IV.2.3.1.1 Perméabilité μ

Du fait de l'excellente linéarité des cycles d'hystérésis quasi-statiques des échantillons μ 200 nus et enrobés, les perméabilités initiale et maximale sont désormais confondues. En conséquence, on parle tout simplement de perméabilité en quasi-statique. La figure IV-9 présente l'évolution de μ des échantillons μ 200 nus et enrobés en fonction du temps de vieillissement pour les trois températures de vieillissement. Les variations de μ en fonction du vieillissement sont chaotiques au départ puis présentent une légère diminution. Cela est plus marqué pour les échantillons μ 200 nus. Cependant, ces variations demeurent très faibles pour une durée de vieillissement de plus de 6000 heures pour les nus et plus de 8000 heures pour les enrobés. Donc la perméabilité μ des deux finitions de μ 200 reste stable en fonction du vieillissement.

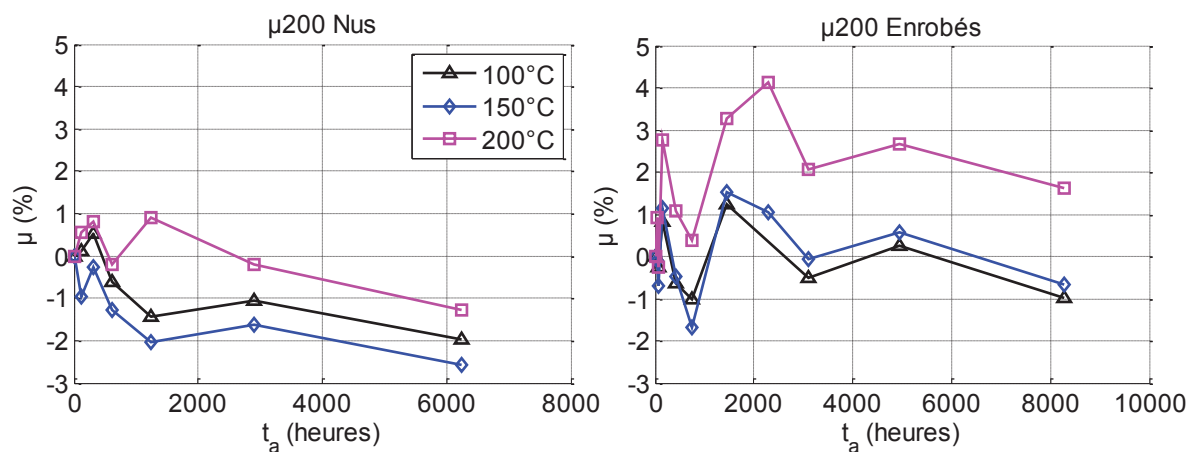


Figure IV-9 Evolution de μ des échantillons μ 200 en fonction du temps et de la température de vieillissement (à droite pour les échantillons nus et à gauche pour les échantillons enrobés).

IV.2.3.2 Mesures des cycles d'hystérésis dynamiques.

La figure IV-10 présente deux cycles d'hystérésis dynamiques avant vieillissement et après environ 3000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C pour chaque finition du μ 200 (nue et enrobée). Les mesures sont faites à B sinus 0.8 T/10 kHz et à la température ambiante.

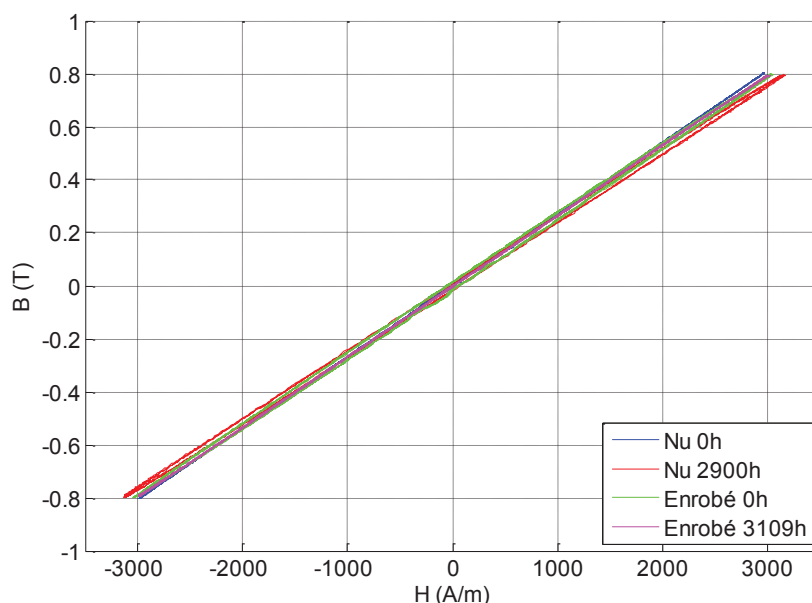


Figure IV-10 Cycles d'hystérésis dynamiques du $\mu 200$ nu et enrobé mesurés à $0.8T$ (sin)/10 kHz pour plusieurs durées de vieillissement à la température de 200°C .

Après 3000 heures de vieillissement accéléré à 200°C , les cycles d'hystérésis dynamiques des échantillons enrobés s'amincissent et ceux des échantillons nus s'élargissent sensiblement. Donc, les pertes diminuent pour les échantillons enrobés et augmentent pour les échantillons nus.

IV.2.3.2.1 Pertes dynamiques P_{dyn}

La figure IV-11 présente l'évolution relative des pertes dynamiques P_{dyn} des échantillons $\mu 200$ nus et enrobés en fonction du temps pour les trois températures de vieillissement.

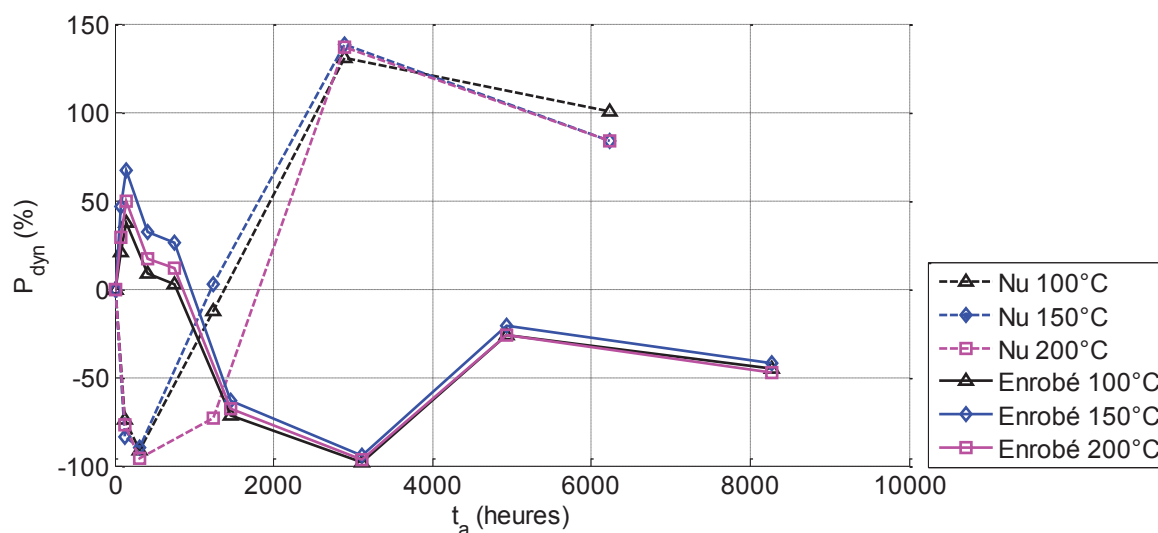


Figure IV-11 Evolution des pertes P_{dyn} des échantillons $\mu 200$ nus et enrobés en fonction du temps pour les trois températures de vieillissement. Les mesures sont faites à $0.8 T$ (sin)/10 kHz à la température ambiante.

On remarque que le changement de température de vieillissement sur la plage 100 - 200 °C n'influe pas sur l'évolution des pertes dynamiques P_{dyn} et pour les deux finitions du $\mu 200$ nue et enrobée. Pour les trois vieillissements thermiques, à 300 heures environ, les pertes P_{dyn} semblent atteindre un maximum pour les échantillons enrobés et un minimum pour les échantillons nus. A 3000 heures environ de vieillissement, c'est l'inverse qui se produit, à savoir les pertes P_{dyn} atteignent le minimum pour les enrobés et le maximum pour les nus. Sur le dernier point de vieillissement, les pertes P_{dyn} atteignent environ 42 - 48 % de diminution pour les échantillons enrobés et 80 - 100 % d'augmentation pour les échantillons nus tout en suivant la même tendance.

IV.2.4 Effet de l'enrobage sur les propriétés magnétiques

L'optimisation des propriétés magnétiques des nanocristallins nécessite en particulier l'annulation de la constante de magnétostriction λ_s . Le matériau devient alors insensible d'un point de vue mécanique aux interactions avec l'environnement extérieur [1], [3]. Cet aspect est important pour limiter les dégradations des performances magnétiques suite aux opérations de packaging (enrobage, imprégnation..) et de mise en œuvre du matériau (manipulation, enroulage sous traction, collage sous boîtier).

Dans [3], [4], G. Hezer montre bien que la constante de magnétostriction dépend fortement de la combinaison température de recuit/teneur en Si. Pour une composition à 15.5 at% en Si, recuite à 540°C pendant 1 heure, λ_s s'annule. Il faut signaler qu'il est difficile à l'échelle industrielle, de garantir les performances magnétiques et une magnétostriction nulle car la maîtrise de la teneur en Si est délicate. Cela semble le cas pour les nanocristallins étudiés car les tores enrobés présentent des performances magnétiques moindres par rapport aux tores nus, ce qui confirme une valeur non nulle de λ_s . La figure IV-12 présente des courbes de première aimantation avant vieillissement d'un échantillon nu et enrobé pour les nuances $\mu 30000$ et $\mu 200$.

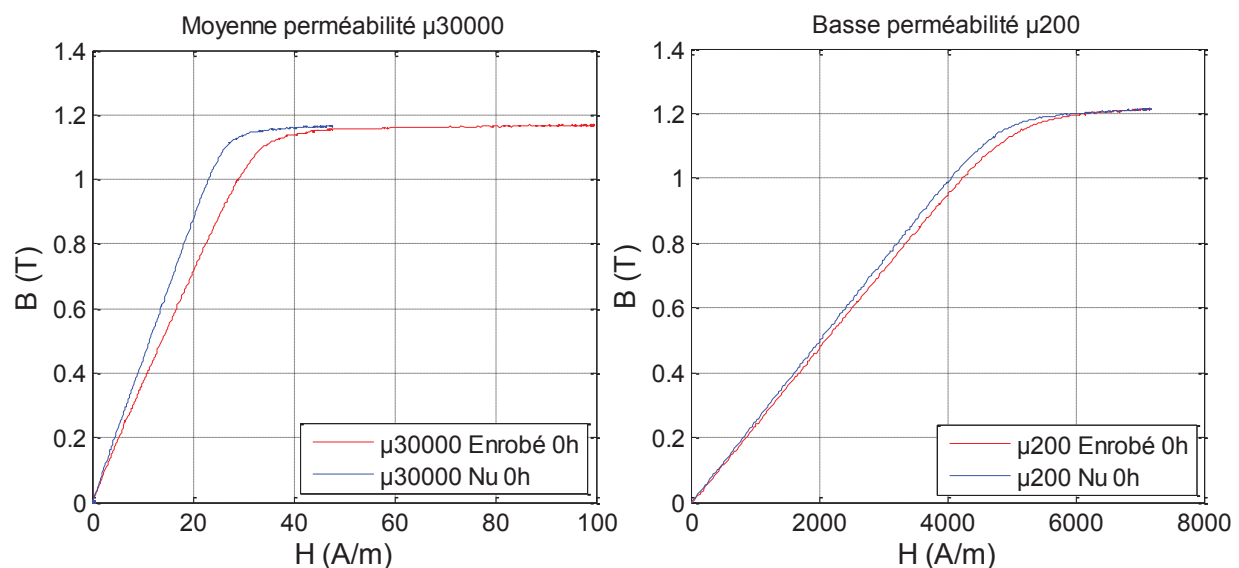


Figure IV-12 Courbes de première aimantation de tores nus et enrobés avant vieillissement (à gauche pour les tores $\mu 30000$ et à droite pour les tores $\mu 200$).

La différence entre les deux courbes correspondant aux finitions nue et enrobée est liée à l'énergie d'anisotropie magnétoélastique notée $\Delta E_{\lambda\sigma}$. Elle est introduite lors de la polymérisation de l'enrobage qui a amené des contraintes mécaniques sur le noyau magnétique. Le calcul de cette différence donne $\Delta E_{\lambda\sigma}^{\mu 30000} \approx 4 \text{ J/m}^3$ ($\Delta\sigma_{\text{polymé}} \approx 9 \text{ MPa}$) pour la nuance $\mu 30000$ et $\Delta E_{\lambda\sigma}^{\mu 200} \approx 150 \text{ J/m}^3$ ($\Delta\sigma_{\text{polymé}} \approx 0.7 \text{ MPa}$) pour la nuance $\mu 200$. Cela est tout à fait cohérent avec les résultats de caractérisation magnétiques avant vieillissement (section IV.2.1). En effet, après enrobage, les échantillons $\mu 200$ présentent une forte augmentation des pertes P_{dyn} dépassant les 100 % alors que les échantillons $\mu 30000$ enrobés présentent une augmentation d'à peine 20 %. Cet écart dans l'introduction de $\Delta E_{\lambda\sigma}$ pour les deux nuances est lié, directement, à leurs constantes de magnétostriction à saturation λ_s respectives lors de l'étape de polymérisation. En effet, les mesures de λ_s sur le banc SAMR des deux nuances donnent une constante $\lambda_s^{\mu 200} \approx 1.45 \text{ ppm}$ nettement plus élevée que la constante $\lambda_s^{\mu 30000} \approx 0.3 \text{ ppm}$.

IV.3 Interprétation des résultats de vieillissement

IV.3.1 Echantillons $\mu 30000$ nus et enrobés

Dans le chapitre III, l'analyse des résultats de vieillissement des échantillons $\mu 30000$ nus est faite à l'aide de l'étude de l'évolution de leurs énergies d'anisotropie. Dans ce chapitre, l'étude de comparaison entre les résultats de vieillissement des échantillons nus et enrobés suit une démarche similaire.

IV.3.1.1 Evolution des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement

La forte dégradation des propriétés magnétiques (PM) des matériaux nanocristallins enrobés par rapport à celle des matériaux nanocristallins nus est liée à l'enrobage (car la composition chimique et le recuit des deux finitions de matériaux sont les mêmes) qui se déforme avec l'augmentation de la température et le temps d'application. La dégradation des PM des matériaux enrobés est due au fait que les coefficients de dilatation de l'époxy et du noyau magnétique (métal) sont différents. Avec l'augmentation de la température et le temps de vieillissement, l'époxy se dilate et puis se rétracte fortement après refroidissement des échantillons (mise hors four). Cela crée une compression perpendiculaire et transversale sur le noyau magnétique comme le montre la figure IV-13 suivante :

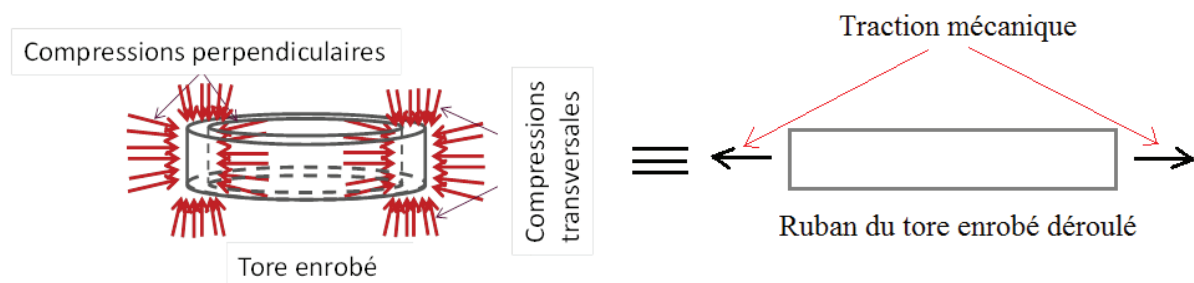


Figure IV-13 Schéma illustratif des forces de compression à l'origine de la déformation de l'enrobage.

Le vieillissement à 200 °C des nanocristallins enrobés est assimilable à un recuit basse température (200 °C) de longue durée sous contraintes mécaniques. Le surplus d'anisotropie introduit dans les nanocristallins enrobés par rapport aux nus, pendant le vieillissement, peut

être expliqué par ce type de recuit. La figure IV-14 montre les courbes de première aimantation avant et après environ 3000 heures de vieillissement accéléré à la température de 200 °C pour un nanocristallin de finition nue et enrobée.

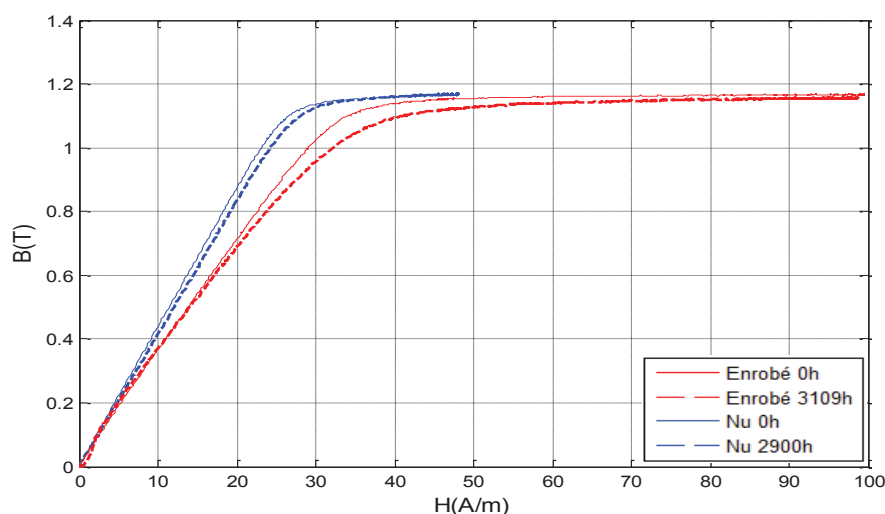


Figure IV-14 Courbes de première aimantation d'un $\mu 30000$ nu et enrobé avant et après environ 3000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C.

Quantitativement, après environ 3000 heures de vieillissement à 200 °C, l'énergie totale d'anisotropie du nanocristallin nu E_K^N a augmenté de 5 % (courbes en bleu) et celle du nanocristallin enrobé E_K^E a augmenté de plus de 15 % (courbes en rouge). Le tableau IV-3 présente les valeurs numériques des énergies d'anisotropie totales des échantillons $\mu 30000$ nu et enrobé avant et après environ 3000 heures de vieillissement à 200 °C ainsi que leurs évolutions relatives.

	0 heure	Environ 3000 heures	Différence relative (%)
E_K^N (J/m ³)	15.85	16.65	5
E_K^E (J/m ³)	20	23.1	15.2
Différence relative (%)	26.2	/	/

Tableau IV-3 Valeurs des énergies d'anisotropie totales d'un $\mu 30000$ nu et enrobé avant et après vieillissement à 200 °C

IV.3.1.1.1 Evolution de l'énergie d'anisotropie totale E_K^N en fonction du vieillissement des échantillons $\mu 30000$ nus

Durant le vieillissement des $\mu 30000$ nus (à 200 °C même à 150 °C), l'activation thermique de la diffusion à courte distance a renforcé de « façon cohérente » dans le sens transversal l'anisotropie induite uniforme initiale $K_u^\perp$ (instaurée lors du recuit sous champ transverse) mais, également, elle a instauré une anisotropie « cohérente » $K_u^{\parallel}$ dans le sens longitudinal suivant les domaines de fermeture triangulaires. Cette dernière gêne la rotation des domaines transversaux et également le mouvement des parois de Bloch (juste au départ du processus d'aimantation) et se traduit par une augmentation du champ H_c et de l'induction B_r en

fonction du vieillissement. Ces deux grandeurs ont augmenté de 34 % et 14 % respectivement dans le cas du vieillissement à 200 °C (voir section IV.2.2.1.1). Les nanocristallins nus n'ont pas subi de vieillissement sous contraintes (absence de l'enrobage). Cependant, l'augmentation de l'énergie d'anisotropie totale ΔE_K^N de 5 % (environ 3000 heures de vieillissement à 200 °C) serait liée seulement au renforcement de l'anisotropie $K_u^\perp$ et à l'instauration de l'anisotropie $K_u^{\parallel}$. En effet, comme démontré dans le chapitre III dans les sections « III.3.2.2.1 » et « III.3.2.2.2 » à l'aide des mesures de DRX et de magnétostriction, l'augmentation de l'énergie d'anisotropie E_K^N est liée probablement à l'augmentation de E_{Ku} et $\langle E_{K1} \rangle$ (car elle dépend de $\sqrt{K_u}$). L'évolution de l'énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ quant à elle reste négligeable même après le vieillissement accéléré de 240 °C.

IV.3.1.1.2 Evolution de l'énergie d'anisotropie totale E_K^E en fonction du vieillissement des échantillons $\mu 30000$ enrobés

L'augmentation de plus de 15 % de l'énergie d'anisotropie totale des $\mu 30000$ enrobés E_K^E (vieillissement accéléré à 200 °C pendant environ 3000 heures), correspond d'une part, à l'évolution de l'énergie d'anisotropie du matériau nanocristallin « seul ». Cette évolution serait la même que celle observée dans les nanocristallins nus ($\Delta E_K^N \approx 5\%$) car la seule différence entre ces deux matériaux est l'enrobage. D'autre part, la différence entre les énergies d'anisotropie « $\Delta E_K^E - \Delta E_K^N \approx 10\%$ », serait forcément liée au vieillissement de l'enrobage « lui-même » qui applique des contraintes sur les rubans nanocristallins comme illustré dans la figure IV-13. Cette augmentation d'énergie d'anisotropie de 10 % est de nature magnéto-élastique étant donné qu'elle est engendrée suite aux contraintes appliquées par l'enrobage pendant le vieillissement ($\Delta \sigma_{\text{vieill}} \approx 4.4$ MPa). L'évolution de cette énergie d'anisotropie est pénalisante sur les propriétés magnétiques des nanocristallins enrobés.

IV.3.1.2 Impact de l'évolution des énergies d'anisotropie sur l'évolution des propriétés magnétiques en fonction du vieillissement

Les propriétés magnétiques des tores enrobés à savoir : pertes dynamiques P_{dyn} , champ coercitif H_c , induction rémanente B_r sont fortement dégradées par rapport à celles des tores nus. Par contre, la perméabilité initiale μ_i présente une diminution faible et comparable entre ces deux matériaux.

IV.3.1.2.1 Vieillissement des échantillons $\mu 30000$ nus

Les propriétés magnétiques des nanocristallins nus sont relativement stables car l'énergie d'anisotropie induite durant leur recuit E_{Ku} reste dominante pendant le vieillissement [5]. En effet, le changement de la structure en domaines dans le sens d'une expansion des domaines de fermeture s'est faiblement opéré après environ 5000 heures de vieillissement accéléré à 200 °C. Cependant, après plusieurs mois et années de vieillissement des matériaux à basses températures (100, 150 et 200 °C), l'anisotropie $K_u^{\parallel}$ peut devenir significative (expansion des domaines de fermeture) et par conséquent compétitive devant l'anisotropie $K_u^\perp$ (induite par recuit sous champ transversal et renforcée par le vieillissement). Cela peut conduire à une dégradation considérable des propriétés magnétiques.

IV.3.1.2.2 Vieillissement des échantillons $\mu 30000$ enrobés

Le vieillissement accéléré à 200 °C des tores enrobés est caractérisé par un comportement magnétique particulier. Les propriétés magnétiques à savoir : le champ coercitif H_c , l'induction rémanente B_r et les pertes dynamiques P_{dyn} présentent une forte augmentation au départ de ce vieillissement puis une sorte de stabilisation jusqu'à environ 3000 heures. Par la suite, les trois propriétés présentent une diminution lente. Ce changement de comportement coïncide avec la disparition de l'enrobage (l'époxy résiste à un maximum de 120-150 °C). La figure IV-15 montre une photo d'un tore $\mu 30000$ enrobé après 3109 heures de vieillissement à 200 °C. La photo montre la disparition totale de l'enrobage. Par ailleurs, les échantillons $\mu 30000$ enrobés qui subissent le vieillissement à 100 et à 150 °C ne montrent pas de dégradations visibles de leur enrobage et ne présentent pas de changement d'évolution de leur comportement magnétique en fonction du vieillissement. Cette constatation présuppose que la disparition totale de l'enrobage est à l'origine du changement de comportement magnétique des échantillons $\mu 30000$ enrobés dans le cas du vieillissement accéléré à 200 °C.



Figure IV-15 Casse totale de l'enrobage après 3109 heures de vieillissement accéléré à 200 °C

D'un point de vue scientifique le vieillissement accéléré à 200 °C nous a intéressé car il permet de simuler deux vieillissements :

- **Un vieillissement sous contraintes extérieures de 0 à environ 3000 heures :**

Dans le cas des tores enrobés, la structure en domaines est « perturbée » avant le vieillissement. En effet, l'enrobage amène des contraintes sur le noyau nanocristallin durant la polymérisation et, par défaut de magnétostriction non nulle, le matériau stocke une énergie d'anisotropie magnétoélastique notée $\Delta E_{\lambda\sigma}$ comme vu dans la section IV.2.4 de ce chapitre.

Durant la phase de polymérisation, l'enrobage se contracte et applique des contraintes selon l'épaisseur et la largeur du tore nanocristallin exactement comme illustré dans la figure IV-13. Cela revient à appliquer une traction dans le sens longitudinal du ruban nanocristallin. Cependant, une anisotropie $K_{\lambda\sigma}''$ est instaurée dans le sens longitudinal favorisant l'augmentation de $\Delta E_{\lambda\sigma}$ et l'expansion des domaines de fermeture. Quantitativement cette énergie d'anisotropie représente plus de 25 % de l'énergie totale d'anisotropie E_K^E (voir tableau IV-3). Elle est donc, compétitive par rapport à l'énergie d'anisotropie induite lors du recuit transversal E_{Ku} .

En fonction du vieillissement, la structure en domaines est encore plus perturbée à cause de la déformation de l'enrobage qui applique plus de contraintes, autrement dit, plus de traction sur le ruban enroulé du tore dans le sens longitudinal. Cela favorise ainsi l'augmentation de $\Delta E_{\lambda\sigma}$ et donc l'expansion des domaines de fermeture. En effet, selon [6] l'augmentation de B_r (plus de 150 % pour le vieillissement accéléré à 200 °C) va dans le sens de l'augmentation de la fraction volumique des domaines de fermeture. Ces derniers empêchent et ralentissent la rotation des domaines transversaux. Cela se traduit par une dégradation des propriétés magnétiques avant vieillissement et encore plus pendant le vieillissement.

La dégradation des propriétés magnétiques des tores enrobés qui vieillissent à 150 °C est expliquée également par ce phénomène. Leurs propriétés continuent à se dégrader même après 3000 h de vieillissement car les contraintes de l'enrobage (traction dans le sens longitudinal) sont toujours présentes.

La dégradation des propriétés magnétiques des tores enrobés qui vieillissent à 100 °C est très faible. Cela est dû à l'anisotropie magnétoélastique instaurée dans le sens longitudinal qui est également faible pour pouvoir gêner la rotation des domaines transversaux.

La figure IV-16 illustre la structure en domaines et les constantes d'anisotropie d'un tore nu et enrobé à la température ambiante (après vieillissement) ou pendant le vieillissement.

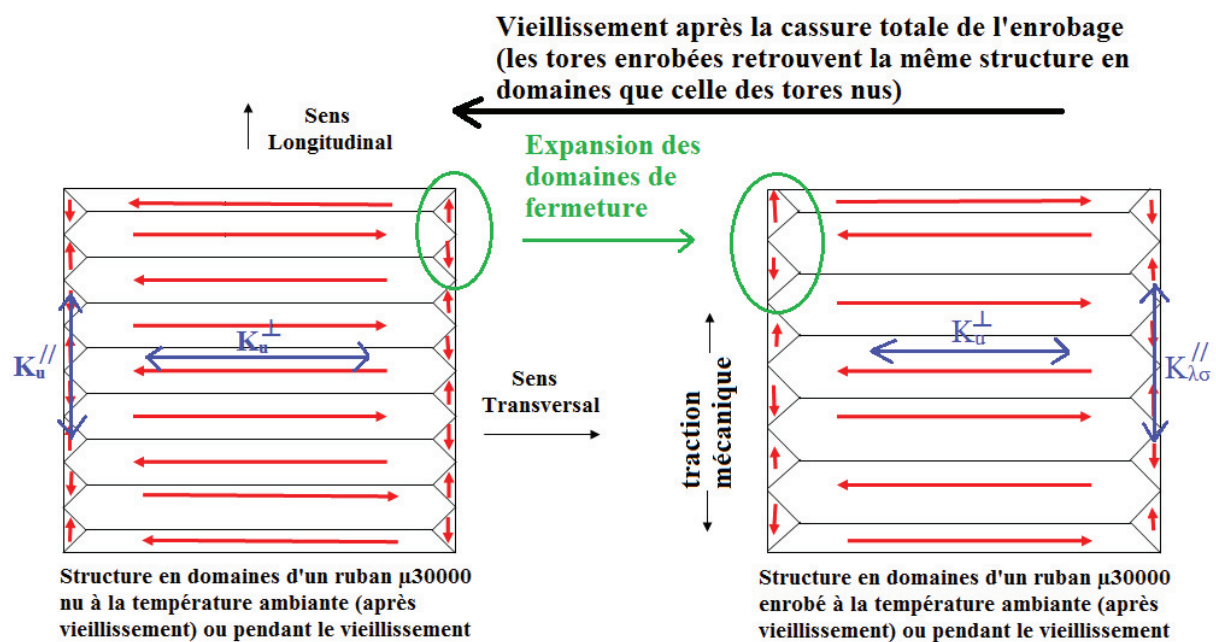


Figure IV-16 Représentation des domaines transversaux et de fermeture ainsi que les constantes d'anisotropie dans le cas d'un ruban nanocristallin $\mu 30000$ nu et enrobé pendant le vieillissement.

- **Un vieillissement sans contrainte extérieure (après la cassure totale de l'enrobage) pour une durée allant de 3000 jusqu'à environ 6500 heures.**

Après la cassure totale de l'enrobage après environ 3109 heures de vieillissement, les propriétés magnétiques se sont améliorées avec une diminution notable de H_c , B_r et P_{dyn} . Après la disparition de l'enrobage (aux alentours de 3109 heures) le noyau magnétique n'est plus contraint et par conséquent, l'instauration de l'anisotropie magnéto-élastique $K_{\lambda\sigma}^{//}$ est

arrêtée. La seule énergie d'anisotropie qui continue d'augmenter très lentement est E_K^N car la perméabilité continue de diminuer en fonction du vieillissement. L'amélioration des propriétés magnétiques est expliquée par la disparition progressive de l'anisotropie $K_{\lambda\sigma}''$ (en l'occurrence $\Delta E_{\lambda\sigma}$) et donc la diminution progressive de la fraction volumique des domaines de fermeture.

Un effet marquant est aussi identifié grâce au grossissement des cycles d'hystérésis statique à bas champs (le « ventre » au niveau du centre du cycle hystérésis). En effet, dans cette partie de vieillissement à 200 °C sans contraintes extérieures, le « ventre » disparaissait progressivement. En réalité, les évolutions de H_c et B_r sont à l'image de l'évolution du « ventre », par conséquent sa disparition progressive est liée à la disparition progressive de $\Delta E_{\lambda\sigma}$. La figure IV-17 montre le centre des cycles d'hystérésis quasi-statiques d'un $\mu 30000$ enrobé pour plusieurs temps du vieillissement à 200 °C (avant vieillissement, au moment de la disparition de l'enrobage et après environ 6500 heures).

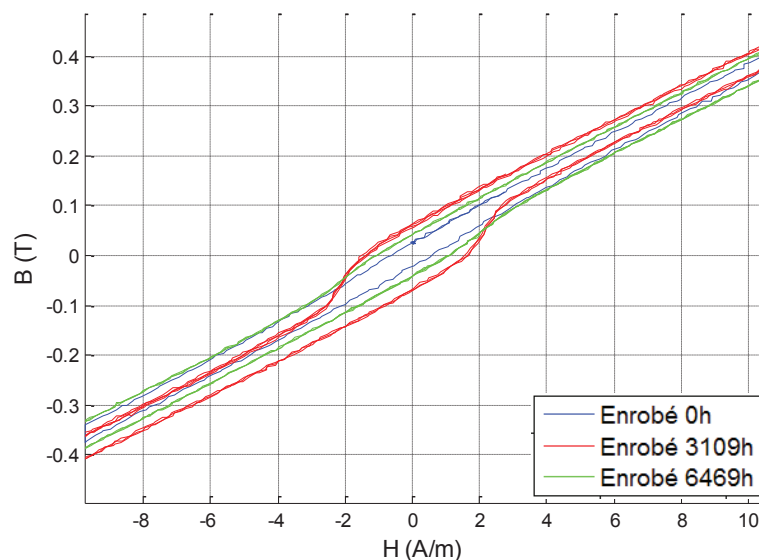


Figure IV-17 Disparition du ventre après de vieillissement sans contraintes extérieures.

Avec plus de temps de vieillissement à 200 °C sans contraintes extérieures, les évolutions des propriétés magnétiques des tores enrobés vont rejoindre celles des tores nus (la structure en domaines des tores enrobés retrouve celle des tores nus, voir la figure IV-16).

IV.3.2 Echantillons $\mu 200$ nus et enrobés

Les caractérisations magnétiques des échantillons $\mu 200$ nus et enrobés ne donnent pas de mesures fiables concernant H_c et B_r ainsi que les pertes statiques à cause des limites de précision du banc hystérésigraphe. Les seuls paramètres magnétiques dont les mesures sont fiables sont :

- la perméabilité μ (mesurée soit à l'impédance mètre ou bien à l'hystérésigraphe en quasi-statique),
- Les pertes dynamiques P_{dyn} mesurées à 10 kHz à induction sinusoïdale imposée de 0.8 T.

La perméabilité est un indicateur fiable de l'évolution des énergies d'anisotropie du nanocristallin $\mu 200$ nus et enrobés car ses cycles d'hystérésis sont très linéaires. La variation des énergies d'anisotropie pour ce matériau nanocristallins ne serait pas possible car l'évolution de sa perméabilité fluctue autour de zéro pourcent (voir figure IV-9).

Après le refroidissement des rubans nanocristallins qui ont subi le recuit sous contrainte de traction, leur structure composée trouve un équilibre mécanique où la phase amorphe résiduelle se met en compression pour compenser la contrainte de traction que la phase cristalline a subi durant ce recuit [7]. C'est l'effet « back stress » que Herzer a proposé [4]. Cet effet est traduit par l'apparition d'une anisotropie magnétoélastique uniforme, transversale, positive K_u^σ dans ces matériaux.

Par conséquent, en fonction du vieillissement, on s'attendait à avoir une diminution monotone de l'énergie E_K^σ synonyme d'une relaxation de contrainte dans la structure des nanocristallins. Cela ne s'est pas produit malgré une longue durée de vieillissement (plus de 6000 heures pour les nus et plus de 8000 heures pour les enrobés). Même avec un vieillissement accéléré à 240 °C (température maximum étudiée), pendant plus de 6000 heures la relaxation de contraintes n'a pas été constatée.

En fait le seuil en température de l'activation thermique de ce phénomène n'est pas atteint. Des études similaires ont été faites dans [8] et [9] montrant bien ce phénomène de relaxation de contraintes mais à des températures avoisinant celles utilisées pendant les recuits (480, 520 et 540 °C).

IV.3.2.1 Interprétation des mesures de microstructures ($\mu 200$ nus)

Dans cette partie des mesures de PTE (Pouvoir Thermo Electrique), de DSC (Differential Scanning Calorimetry) et de DRX (Diffraction aux Rayons X) sont présentées et analysées.

IV.3.2.1.1 Mesures PTE

Le tableau IV-4 présente les mesures PTE pour trois temps de vieillissement à 240°C.

Temps (h)	0	500	5000
PTE (nV/°C)	-3014	-2984,75	-2983,75

Tableau IV-4 Mesures PTE du $\mu 200$ pour le vieillissement à 240 °C.

Les mesures PTE de la nuance $\mu 200$ nue montrent une légère augmentation mais cela reste non significatif pour conclure sur un changement de phase. Pour les mêmes temps de vieillissement les pertes P_{dyn} présentent des variations importantes (les pertes P_{dyn} à 200 °C évoluent de la même manière qu'à 240 °C).

IV.3.2.1.2 Mesures de DRX

- **Formation d'une nouvelle phase**

La figure IV-18 présente deux diffractogrammes DRX avant et après environ 5000 heures de vieillissement à 240 °C du nanocristallin $\mu 200$.

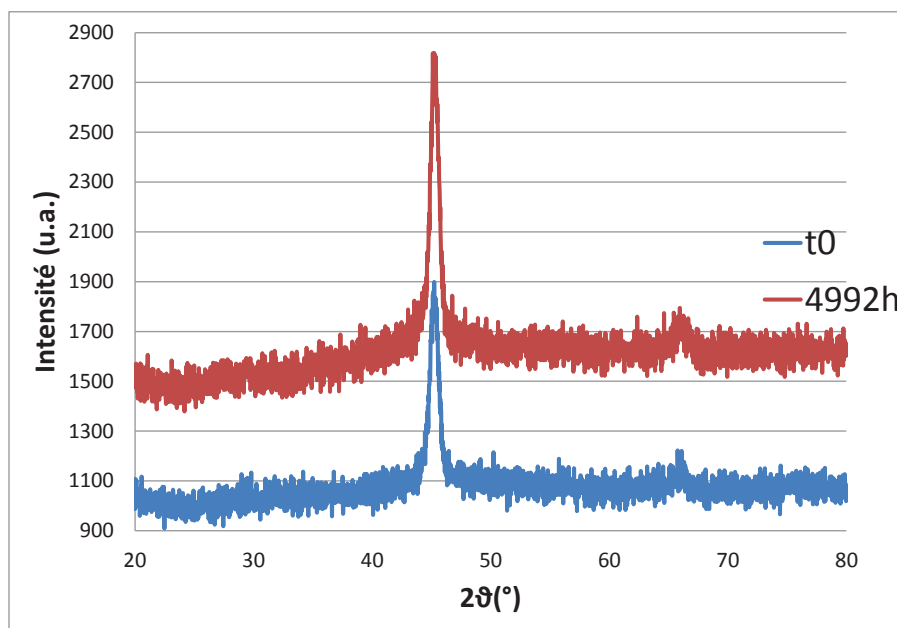


Figure IV-18 Diffractogrammes DRX du $\mu 200$ non vieilli et vieilli à 240°C pendant 5000 heures.

Aucun nouveau pic n'apparaît lors du vieillissement à 240 °C, ce qui exclut l'apparition d'une nouvelle phase à 240 °C et aussi aux températures de vieillissement inférieures (100, 150 et 200 °C). La même conclusion est faite pour les nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$ dans le chapitre III.

- **Variation de la taille moyenne des grains D et de la fraction cristallisée f_x**

Le calcul de la largeur à mi-hauteur du pic (110) avant et après vieillissement renseigne sur l'évolution des domaines cristallins (ce qui correspond à la taille des grains D dans le cas du matériau étudié) en l'occurrence sur l'évolution de la fraction cristallisée f_x . La figure IV-19 présente deux histogrammes, avant et après 5000 heures de vieillissement à 240 °C, de la largeur à mi-hauteur du pic (110).

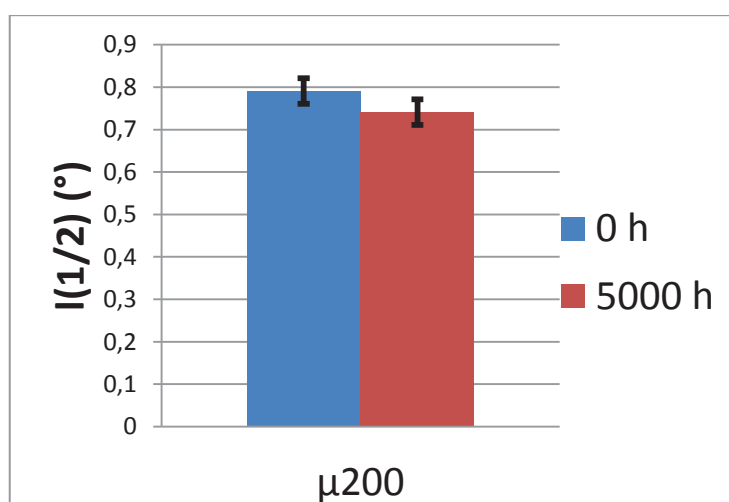


Figure IV-19 Largeurs à mi-hauteur du pic (110) du $\mu 200$ non vieilli et après 5000 heures de vieillissement à 240 °C.

Après vieillissement, la largeur à mi-hauteur a diminué de l'ordre de 6 %. Cette diminution est du même ordre de grandeur que l'incertitude de mesure estimée de l'ordre de 7 %.

Cependant, il y a une faible probabilité sur l'évolution de la taille moyenne des grains et de la fraction cristallisée.

En utilisant la formule de Scherrer donnée par l'équation (III.7) du chapitre III on peut calculer l'évolution de la taille des grains D du nanocristallin $\mu 200$. Le calcul donne 10.8 nm avant vieillissement et 11.6 nm après vieillissement.

- **Diffusion du Silicium vers les nano-grains**

La figure IV-20 présente des histogrammes de la variation de la distance interréticulaire d_{110} et d_{200} du $\mu 200$ après vieillissement de 5000 heures à 240 °C.

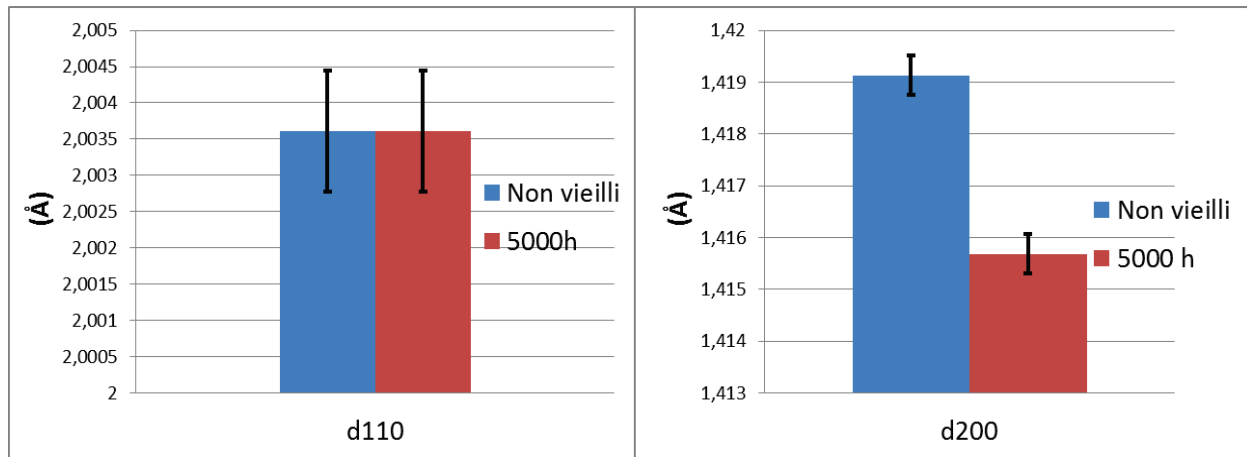


Figure IV-20 Variations des distance interréticulaires d_{110} et d_{200} du $\mu 200$ en fonction du vieillissement à 240 °C.

Comme vu dans le chapitre III, les distances interréticulaires des cristaux bcc-FeSi donnent des informations sur la diffusion du Silicium vers les nano-grains. En effet, comme souligné dans [10], la diminution du Silicium en solution solide dans les nanocristaux de Fer tend à réduire les distances interréticulaires.

Les variations de d_{110} , en fonction du vieillissement, sont de l'ordre de l'incertitude de mesure qui est de 0.00084 Å (figure IV-20-gauche). Donc, d_{110} n'aurait pas évolué en fonction du vieillissement. Par contre, d_{200} présente une diminution franche en fonction du vieillissement (incertitude de mesure 0.00038 Å) (figure IV-20-droite). Cela irait donc plutôt dans le sens d'une diminution du paramètre de maille, et donc d'une migration du silicium vers les nanocristaux.

IV.3.2.1.3 Mesures DSC

La figure IV-21 présente le thermogramme DSC du $\mu 200$ avec une montée en température de 15 °C/min jusqu'à 600 °C.

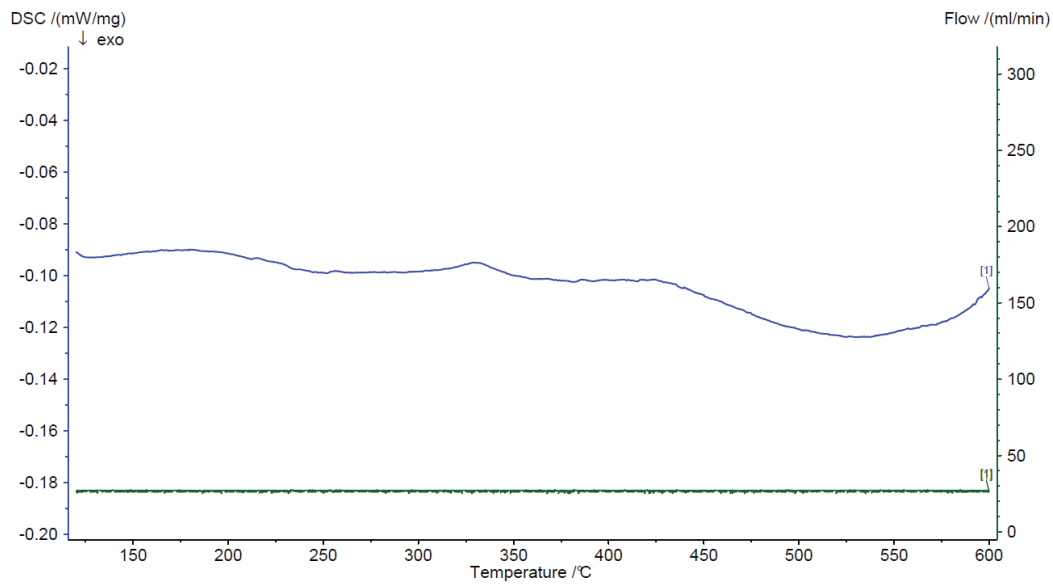


Figure IV-21 Analyse thermique du $\mu 200$ avec une montée en température de 15 °C/min.

Ce thermogramme ne montre pas de pics francs ce qui est synonyme d'une réaction exo ou endothermique possible. Par ailleurs, aucune transformation de phase n'avait eu lieu lors de cette montée en température. Ce résultat confirme bien le fait qu'il n'y a pas eu l'apparition de nouveaux pics dans les diffractogrammes des mesures DRX.

IV.3.2.2 Variation des pertes magnétiques en fonction du vieillissement

Le comportement des pertes magnétiques dynamiques P_{dyn} des nuances $\mu 200$ nue et enrobée en fonction du vieillissement est particulier par rapport aux variations des nuances $\mu 500000$ et $\mu 30000$. En effet, l'évolution de ces pertes présente un minimum et un maximum mais le plus marquant c'est qu'elle semble ne pas dépendre de la température de vieillissement appliquée. De plus, le fait que les pertes évoluent à la température de 100 °C signifie que la température de l'activation thermique est bien inférieure à cette dernière. En se basant sur ces constatations on peut poser l'hypothèse suivante : le phénomène de vieillissement du point de vue des pertes dynamiques est largement activé de telle sorte qu'augmenter la température au-delà de 100 °C ne change rien. Afin de confirmer cette hypothèse, d'autres vieillissements à des températures inférieures à 100 °C doivent être effectués.

Afin de pouvoir expliquer l'évolution des pertes P_{dyn} en fonction du vieillissement et indépendamment de la température, la décomposition des pertes dynamiques selon Bertotti présentée dans le chapitre III par l'équation (III.13) est utilisée [11]. Les pertes dynamiques se décomposent en pertes hystérésis (statiques), pertes classiques (par courant de Foucault) et pertes excédentaires (pertes locales harmoniques).

Le suivi de la résistivité durant le vieillissement à l'aide de la méthode des quatre pointes ne montre pas de changement. Les mesures PTE confirment également de leur côté cette constance de la résistivité. Par conséquent, les pertes classiques n'évoluent pas durant la durée du vieillissement. De ce fait, l'évolution des pertes P_{dyn} est liée à l'évolution des pertes hystérésis et des pertes excédentaires. Par ailleurs, le calcul des pertes hystérésis (mesurées à

1 Hz à température ambiante) tout le long du vieillissement donne des valeurs négligeables par rapport aux valeurs des pertes P_{dyn} (100 fois inférieures).

Les interactions entre le mouvement des parois de Bloch et les défauts ou bien entre la rotation des domaines magnétiques et les défauts constituent l'origine des pertes hystérésis quand le champ est suffisamment lent (quasi-statique). Ces mêmes interactions sont à la base des pertes excédentaires si le champ magnétique a des fréquences élevées. Dans le cas des échantillons $\mu 200$, les propriétés magnétiques procèdent directement par rotation cohérente des domaines magnétiques à cause de la forte anisotropie induite durant le recuit sous traction [12], [13]. Cette anisotropie est d'origine magnétoélastique induite uniformément dans le sens transversal à l'axe de facile aimantation [14], [15].

L'évolution des pertes P_{dyn} en fonction du vieillissement, autrement dit des pertes excédentaires, est liée à des changements au niveau des interactions entre la rotation des domaines magnétiques et les défauts.

IV.3.2.2.1 Interactions domaines magnétiques / défauts

Ces interactions peuvent avoir lieu avec plusieurs types de défauts à savoir :

- La phase résiduelle amorphe entre chaque nano-grains dont on fait l'analogie avec les joints de grains dans les matériaux polycristallins selon certain auteurs [16], [17].
- La divergence des orientations magnétiques à chaque joint de grains où bien ce que Herzer a défini par l'anisotropie magnétocristalline aléatoire.
- La divergence des orientations magnétiques entre les gros domaines transversaux formés grâce à l'importante anisotropie magnétoélastique uniforme K_u^σ .
- L'anisotropie locale (incohérente) qui s'oppose à l'anisotropie magnéto-élastique transversale (dans le cas du $\mu 200$).
- Les défauts de surface (par exemple : rugosité du ruban).
- Les dislocations au niveau des nano-grains.
- Les gros atomes interstitiels (Bohr, Carbone etc.).
- Les précipités intermétalliques ou autres (oxydes, nitrures, sulfures....).

En procédant par élimination, on peut cerner les défauts qui sont susceptibles d'évoluer au cours du vieillissement dans les échantillons $\mu 200$ nus et enrobés. Les mesures de microstructures permettent, déjà, d'éliminer plusieurs cas.

- **La phase résiduelle, $\langle E_{K1} \rangle$**

En s'appuyant sur les conclusions de mesures de microstructures, la phase résiduelle (les joints de grains) ainsi que l'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle E_{K1} \rangle$ ne sont pas susceptibles de varier.

- **Les précipités, les interstitiels**

Des précipités intermétalliques ou des gros atomes ne sont pas formés car les mesures DRX n'ont pas montré de nouveaux pics relatifs à l'apparition de nouvelles phases.

- **Les défauts de surface**

L'état de surface ou rugosité des rubans des échantillons $\mu 200$ nus n'a pas de raison d'évoluer car les vieillissements sont faits sans contraintes extérieures. Les échantillons $\mu 200$ enrobés subissent, sous l'effet de la déformation de l'enrobage, des contraintes extérieures mais elles restent très faibles pour infliger de nouveaux défauts de surface.

- **Anisotropie incohérente (locale)**

La constance de l'anisotropie totale des deux nuances $\mu 200$, montre qu'aucune anisotropie n'a été introduite durant le vieillissement.

- **Les dislocations**

La technique de recuit dynamique sous contraintes (anciennement appelé recuit flash [13], [14]), permet au matériau nanocristallin, non seulement l'accès aux basses perméabilités, mais aussi une amélioration assez importante de sa friabilité. Dans [12], une série de mesures du rayon de courbure de plusieurs rubans nanocristallins relatifs à plusieurs niveaux de contraintes appliquées durant le recuit dynamique a été faite (figure IV-22). Le rayon de courbure minimum obtenu par le recuit statique est de 4 mm, le recuit dynamique permet la diminution du rayon de courbure sur une grande plage de perméabilité autrement dit de contrainte appliquée durant le recuit. La raison selon [12], [13] serait liée au fait que le recuit dynamique favorise la nucléation de nouveaux nano-grains sur leur grossissement alors que le recuit statique sous contraintes favorise nettement moins la nucléation. Les mesures de taille moyenne de nano-grains présentées dans [15] montrent bien qu'après un recuit statique sous contrainte et un recuit statique sans contrainte la taille moyenne de grains est sensiblement la même et est estimée à environ 13 nm. Les mesures DRX faites sur nos nanocristallins montrent une diminution notable de la taille moyenne des grains entre le recuit statique sans contrainte que les échantillons $\mu 500000$ ont subi et le recuit dynamique sous contrainte de traction que les $\mu 200$ ont subi. La taille moyenne des grains passe d'environ 14 nm pour les $\mu 500000$ à environ 11 nm pour les $\mu 200$ confirmant ainsi la favorisation de la nucléation des nano-grains sur leur grossissement avancée dans [12], [13].

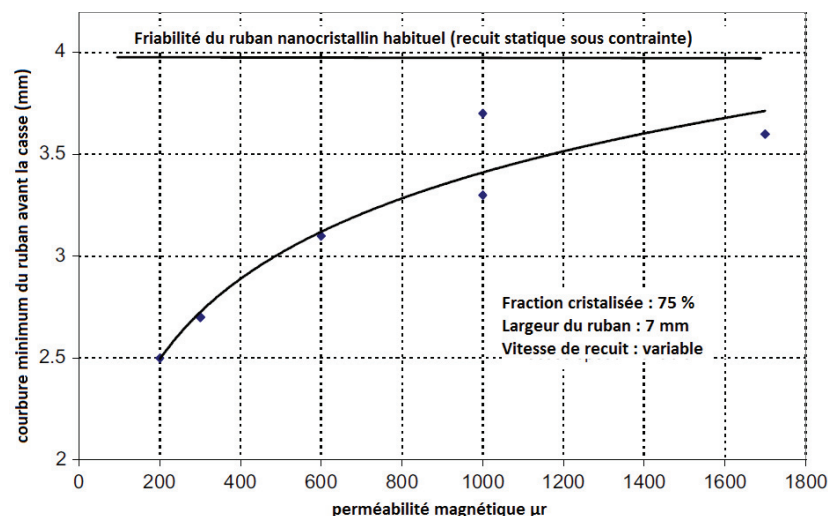


Figure IV-22 Rayon de courbure minimum en fonction de la perméabilité relative (copiée de [12]).

Un autre phénomène responsable de cette amélioration mécanique serait lié à l'instauration des dislocations dans les nano-grains sous l'effet de la traction mécanique [18]–[20]. Il est à noter qu'aucune des techniques expérimentales exploitées ne peut renseigner sur l'évolution des dislocations pendant le vieillissement.

L'évolution des dislocations en fonction du vieillissement ne serait pas possible car les nanocristallins $\mu 200$ n'ont pas subi de relaxation de contrainte, autrement dit, l'anisotropie K_u^σ n'a pas diminué en fonction du vieillissement. En effet, il est plus facile de varier les contraintes internes dans les nanocristallins que de déplacer, par exemple, les dislocations vers l'interface grains/phase amorphe.

- **La divergence des orientations magnétiques causée par les fluctuations d'orientations spatiales et d'amplitudes des contraintes internes**

L'anisotropie magnétoélastique K_u^σ induite lors du recuit dynamique sous contrainte de traction, est supposée parfaitement uniforme, transversale dans le matériau. Or, au niveau des nano-grains les contraintes internes présentent des fluctuations d'orientations spatiales et d'amplitude. En effet, à l'issue d'un tel recuit dynamique sous contraintes, la répartition des forces de traction au niveau local n'est pas tout à fait uniforme. Cependant, en fonction du vieillissement, il serait probable que les contraintes internes trouvent un état minimum d'énergie qui est celui de l'homogénéisation de leur répartition à l'échelle macroscopique dans le matériau. La figure IV-23 illustre ce phénomène d'homogénéisation des contraintes internes en fonction du vieillissement.

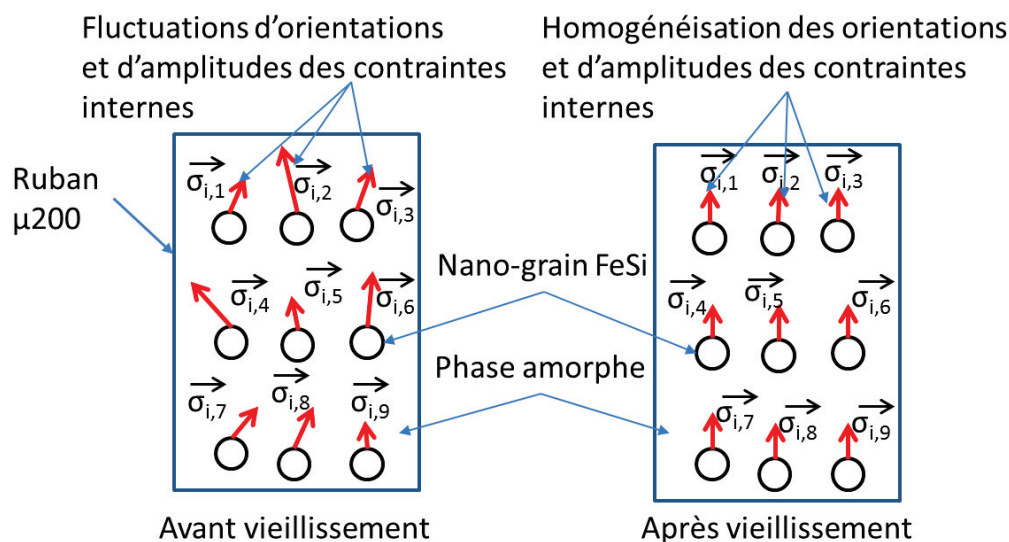


Figure IV-23 Schéma illustratif de la répartition des contraintes internes avant et après vieillissement.

IV.3.2.2 Effet de l'enrobage et des dislocations sur l'évolution des pertes magnétiques en fonction du vieillissement

La figure IV-24 présente l'évolution logarithmique des pertes dynamiques P_{dyn} des échantillons $\mu 200$ nus et enrobés en fonction du temps pour les trois températures de vieillissement. Les mesures sont faites à induction sinusoïdale imposée de 0.8 T à 10 kHz et à température ambiante. Les résultats sont intéressants car ils montrent qu'au bout de

5000 heures de vieillissement les pertes des échantillons nus et enrobés sont identiques et ce, quelle que soit la température de vieillissement. Ceci ne peut pas être expliqué par la cassure complète de l'enrobage que les échantillons $\mu 200$ enrobés ont subi durant le vieillissement accéléré à 200 °C car ce constat est aussi fait pour les échantillons qui n'ont pas subi de cassure complète de leur enrobage (échantillons vieillis à 100 et à 150 °C).

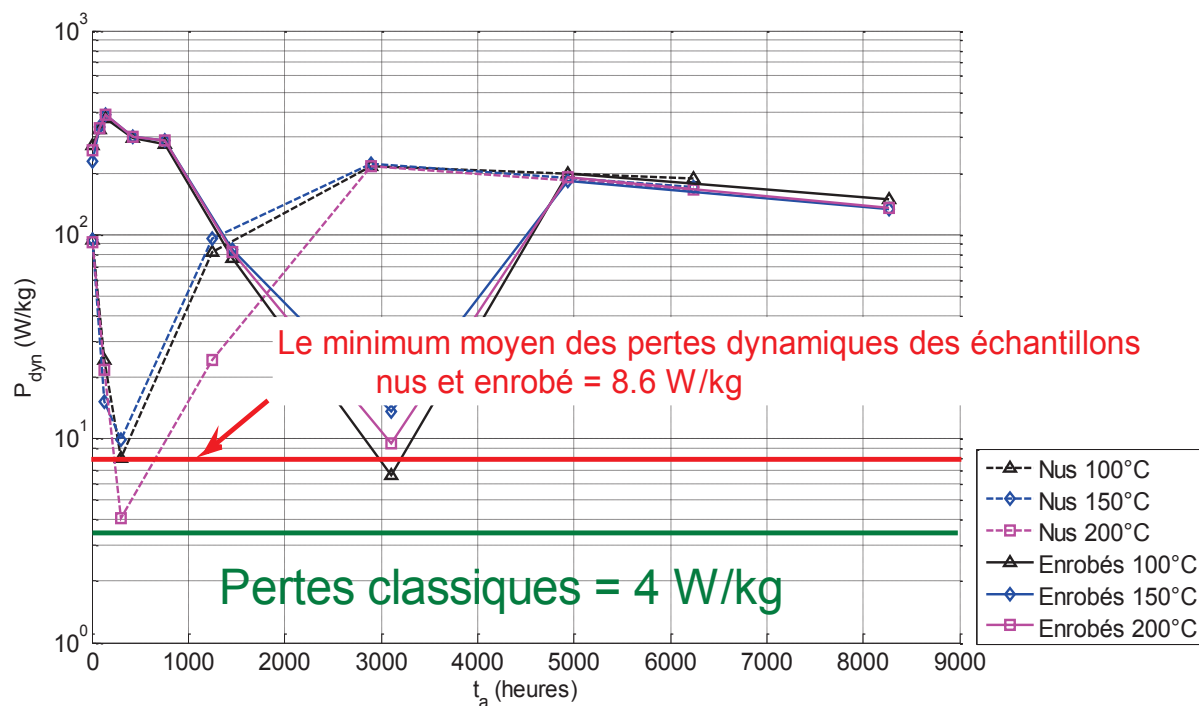


Figure IV-24 Evolution semilog des pertes P_{dyn} des échantillons $\mu 200$ nus et enrobés en fonction du vieillissement.

La figure IV-25 présente une image d'un échantillon $\mu 200$ enrobé vieilli à 200 °C pendant 5000 heures et un autre échantillon $\mu 200$ enrobé vieilli à 150 °C pendant 5000 heures.

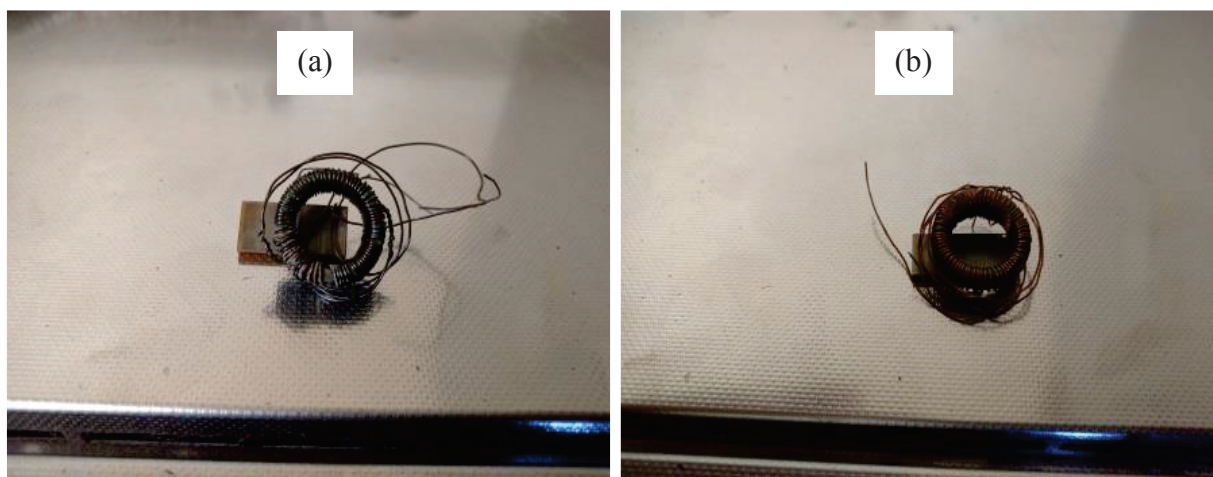


Figure IV-25 Images de l'état d'enrobage du $\mu 200$. (a) : tore vieilli à 200 °C, (b) : tore vieilli à 150 °C.

A travers les 70 spires du primaire et les 10 spires du secondaire, nécessaires aux caractérisations magnétiques, on voit des fragments décollés de l'enrobage dans l'échantillon vieilli à 200 °C (figure IV-25.a) alors que celui vieilli à 150 °C montre un enrobage toujours

solidaire au noyau magnétique (figure IV-25.b). En fait, l'enrobage semble avoir juste retardé l'apparition de certains phénomènes comme le passage par le minimum des pertes ou bien le phénomène cité ci-dessus sur le jumelage de l'évolution des pertes des échantillons nus et enrobés vers environ 5000 heures de vieillissement.

Le minimum moyen des pertes des échantillons nus et enrobés est estimé à 8.6 W/kg ce qui représente le double des pertes classiques (estimées par l'équation (I.11) du chapitre I) qui sont d'environ 4 W/kg (voir figure IV-24).

Ce minimum de pertes est attribué à un maximum de réduction des interactions défauts / domaines magnétiques. Il est très probable qu'à ce moment, les seules contributions aux pertes dynamiques seraient celles des pertes classiques et peu des pertes excédentaires. En fait, toutes les interactions susceptibles d'évoluer en fonction du vieillissement ont été diminuées au maximum. Les divergences des orientations magnétiques au niveau des nanograins (phénomène d'homogénéisation des contraintes internes expliqué précédemment) auraient disparu très rapidement pour les échantillons nus (environ 300 heures) et moins rapidement pour les échantillons enrobés (environ 3000 heures).

Au-delà de ce minimum, une forte augmentation des pertes P_{dyn} est notée et serait liée à un autre phénomène. Considérant, qu'il n'y a plus de divergence des orientations magnétiques, l'augmentation notée serait désormais liée à l'augmentation des interactions avec les défauts faisant intervenir la taille moyenne des grains (phase amorphe résiduelle, $\langle E_{KI} \rangle$). Or, en fonction des vieillissements, les variations de microstructure sont faibles et ne peuvent pas justifier une telle augmentation des pertes P_{dyn} . D'autres défauts dont on ne connaît pas l'existence, doivent se manifester durant le vieillissement.

IV.4 Conclusion

Ce chapitre présente une étude de vieillissement thermique de deux nuances de matériaux nanocristallins : basse et moyenne perméabilité ($\mu 200$ et $\mu 300000$) avec les deux finitions nue et enrobée.

- **Nanocristallins $\mu 300000$ nus et enrobés**

Les $\mu 300000$ nus ont montré un bon comportement pendant près de 5000 heures de vieillissement thermique. La faible dégradation des propriétés magnétiques est due à une faible instauration de l'anisotropie K_u'' par diffusion atomique de courte distance. Les noyaux enrobés ont montré un bon comportement des propriétés magnétiques au cours du vieillissement pour les températures de vieillissement (100 °C) inférieures à la température de fonctionnement maximale du revêtement (estimé entre 120 °C et 150 °C par le fabricant). Les vieillissements aux températures de 150 et 200 °C ont été effectués pour simuler une contrainte externe à l'aide de la déformation de l'enrobage provoqué par la haute température. Les résultats de ces deux traitements de vieillissement sont très intéressants. Le vieillissement à 150 °C a montré une dégradation lente et continue des propriétés magnétiques. Le vieillissement accéléré à 200 °C a montré une dégradation rapide et importante des propriétés magnétiques jusqu'au temps de vieillissement qui correspond à la destruction totale de l'enrobage. Après cette durée, les propriétés magnétiques s'améliorent lentement. La raison

de cette dégradation est liée à l'instauration d'une anisotropie magnétoélastique $K_{\lambda\sigma}^{//}$ pendant le vieillissement dû aux déformations externes de l'enrobage. L'instauration de $K_{\lambda\sigma}^{//}$ favorise l'expansion rapide des domaines de fermetures ce qui empêche la rotation des domaines transversaux. L'amélioration des propriétés magnétiques observée après la cassure totale du revêtement dans le cas du vieillissement accéléré de 200 °C est liée à la disparition progressive de l'anisotropie $K_{\lambda\sigma}^{//}$ (qui a été introduite pendant la première étape de vieillissement sous déformations).

- **Nanocristallins $\mu 200$ nus et enrobés**

La perméabilité μ et les pertes dynamiques P_{dyn} ont été seulement étudiées compte tenu de la précision limitée du banc hystérésigraphe. Pour les deux finitions du $\mu 200$, la perméabilité semble ne pas varier en fonction du vieillissement et cela laisse supposer qu'il n'y aurait pas eu l'introduction d'une quelconque anisotropie magnétique durant le vieillissement. En réalité il y a eu une introduction d'une anisotropie (probablement transversale et longitudinale) car l'introduction de cette dernière ne dépend pas de la nuance (basse, moyenne ou haute perméabilité) mais dépend seulement des conditions de vieillissement (temps, température, sous aimantation ou non ...) (conclusion chapitre III). Cependant, la quantité de cette anisotropie est très faible pour être décelable dans le cas du $\mu 200$.

Pour les deux finitions nue et enrobée, les pertes dynamiques P_{dyn} évoluent indépendamment des températures de vieillissement : 100, 150, 200 et 240 °C. En fait la température 100 °C est peut être largement supérieure à la température de l'activation thermique du vieillissement et en conséquence tout vieillissement au-delà de 100 °C ne changera rien sur l'évolution de P_{dyn} . Cependant, des vieillissements à des températures inférieures à 100 °C seraient nécessaires pour valider cette hypothèse.

Les évolutions non monotones de P_{dyn} sont dues seulement aux variations des pertes excédentaires (les pertes par hystérésis et les pertes classiques ne contribuent pas). Autrement dit, ces évolutions sont liées à des changements au niveau des interactions entre la rotation des domaines magnétiques et les défauts. La forte diminution des pertes P_{dyn} jusqu'à presque évanouissement des pertes excédentaires est peut être expliquée par l'homogénéisation des contraintes internes. Par contre, la forte augmentation des pertes P_{dyn} ne peut pas être expliquée par ce même phénomène. Cela reste des hypothèses qu'il faudrait vérifier expérimentalement.

IV.5 Références

- [1] Rainer Hilzinger and Werner Rodewald, "Magnetic Materials," in *Magnetic Materials*, Germany: VACUUMSCHMELZE GmbH & Co, 2013.
- [2] J. Szynowski, R. Kolano, A. Kolano-Burian, and M. Polak, "Reduction of Power Losses in the Tape-Wound FeNiCuNbSiB Nanocrystalline Cores Using Interlaminar Insulation," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 50, no. 4, pp. 1–4, Apr. 2014.
- [3] G. Herzer, "Modern soft magnets: Amorphous and nanocrystalline materials," *Acta Materialia*, vol. 61, no. 3, pp. 718–734, Feb. 2013.
- [4] G. Herzer, "Creep induced magnetic anisotropy in nanocrystalline Fe-Cu-Nb-Si-B alloys," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 30, no. 6, pp. 4800–4802, Nov. 1994.
- [5] A. Lekdim, L. Morel, and M.-A. Raulet, "Influence of coating on nanocrystalline magnetic properties during high temperature thermal ageing," *Advanced In Magnetic Conference*, Bormio, Italy, p. 8, 2016.
- [6] T. Waeckerlé, P. Vérin, P. Cremer, and D. Gautard, "Induced anisotropy effect in nanocrystalline cores for GFCBs," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 215–216, pp. 449–452, Jun. 2000.
- [7] L. K. Varga, Z. Gercsi, G. Kovács, A. Kákay, and F. Mazaleyrat, "Stress-induced magnetic anisotropy in nanocrystalline alloys," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 254–255, pp. 477–479, Jan. 2003.
- [8] B. Hofmann and H. Kronmüller, "Stress-induced magnetic anisotropy in nanocrystalline FeCuNbSiB alloy," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 152, no. 1–2, pp. 91–98, Jan. 1996.
- [9] V. A. Lukshina, N. V. Dmitrieva, M. A. Cerdeira, and A. P. Potapov, "Stress-induced magnetic anisotropy in Fe-based nanocrystalline alloy with addition of 1–5 at.% Cr," *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 536, Supplement 1, pp. S374–S376, Sep. 2012.
- [10] S. P. Mondal, K. H. Maria, S. S. Sikder, S. Choudhury, D. K. Saha, and M. A. Hakim, "Influence of Annealing Conditions on Nanocrystalline and Ultra-Soft Magnetic Properties of Fe_{75.5}Cu₁Nb₁Si_{13.5}B₉ Alloy," *Journal of Materials Science & Technology*, vol. 28, no. 1, pp. 21–26, Jan. 2012.
- [11] G. Bertotti, "Connection between microstructure and magnetic properties of soft magnetic materials," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 320, no. 20, pp. 2436–2442, Oct. 2008.
- [12] T. Waeckerle, T. Save, and A. Demier, "New stressed and continuously annealed low μ nanocrystalline FeCuNbSiB cores for watt-hour-metering or differential mode inductance applications," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 320, no. 20, pp. e797–e801, Oct. 2008.

- [13] F. Alves, J. B. Desmoulins, D. Hérisson, J. F. Rialland, and F. Costa, "Stress-induced anisotropy in Finemet- and Nanoperm-type nanocrystalline alloys using flash annealing," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 215–216, pp. 387–390, Jun. 2000.
- [14] E. Csizmadia, L. K. Varga, Z. Palánki, and F. Záborszky, "Creep or tensile stress induced anisotropy in FINEMET-type ribbons?," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 374, pp. 587–590, Jan. 2015.
- [15] G. V. Kurlyandskaya, V. A. Lukshina, A. Larrañaga, I. Orue, A. A. Zaharova, and D. A. Shishkin, "Induced magnetic anisotropy features in FeCrSiBNbCu nanocrystalline alloy: Role of stress distribution proven by direct X-ray measurements," *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 566, pp. 31–36, Jul. 2013.
- [16] R. Madhavan and S. Suwas, "Evolution of deformation texture and magnetic properties in a nanocrystalline nickel–20 wt% cobalt alloy," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 378, pp. 239–245, Mar. 2015.
- [17] I. V. Belova and G. E. Murch, "Diffusion in nanocrystalline materials," *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 64, no. 5, pp. 873–878, May 2003.
- [18] Y. Zhu, Y. Xiang, and K. Schulz, "The role of dislocation pile-up in flow stress determination and strain hardening," *Scripta Materialia*, vol. 116, pp. 53–56, Apr. 2016.
- [19] K. C. Le, P. Sembiring, and T. N. Tran, "Continuum dislocation theory accounting for redundant dislocations and Taylor hardening," *International Journal of Engineering Science*, vol. 106, pp. 155–167, Sep. 2016.
- [20] A. Vinogradov, I. S. Yasnikov, H. Matsuyama, M. Uchida, Y. Kaneko, and Y. Estrin, "Controlling strength and ductility: Dislocation-based model of necking instability and its verification for ultrafine grain 316L steel," *Acta Materialia*, vol. 106, pp. 295–303, Mar. 2016.

V. Chapitre V : Comportement magnétique, mécanique des polycristallins FeCoV en fonction du vieillissement thermique.

V.1 Introduction

Le chapitre V fait le grand écart par rapport aux chapitres III et IV car il n'étudie pas le vieillissement des matériaux nanocristallins mais plutôt celui des matériaux polycristallins. La différence principale est liée à la taille moyenne des grains qui est d'une dizaine de nanomètres pour les nanocristallins et d'une centaine de micromètres pour les matériaux polycristallins. Comme vu dans le contexte général de la thèse, le matériau choisi pour cette étude est le Fe-Co₄₉V₂ qui va être utilisé dans la construction de la génératrice tournante haute vitesse. Ce matériau est fourni par la société Aperam Alloys Imphy sous quatre nuances selon la limite élastique. Ces nuances se divisent en deux familles : la nuance standard qui a comme limite élastique $R_{0.2}$ d'environ 370 MPa et les trois autres nuances de Haute Limite Elastique (HLE) dont la limite élastique $R_{0.2}$ correspond à environ 600, 800 et 1000 MPa. La nuance standard serait dédiée à la fabrication des tôles du stator et les trois autres nuances HLE seraient dédiées à la fabrication des tôles du rotor. En fait, ces nuances ne sont pas seulement fournies selon la limite élastique mais aussi selon la finition. Chaque nuance de limite élastique est présentée sous plusieurs finitions : nue, oxydée et isolée par du Méthylate de Magnésium. Afin de vérifier la disparité des mesures, trois échantillons identiques pour chaque combinaison limite élastique / finition sont caractérisés. Il en découle au total plus de 120 échantillons à caractériser à chaque étape de vieillissement (voir tableau II-1 du chapitre II).

Le but de ce chapitre n'est pas de sélectionner les nuances adéquates pour la fabrication de la génératrice. En effet, pour sélectionner des nuances ayant différents modes d'isolation électrique, il faut connaître leur résistance d'isolement qui est un sujet en soi. De plus, pour sélectionner des nuances ayant des limites élastiques différentes, il faut connaître le cahier des charges d'une manière précise de l'application pour choisir le juste nécessaire en limite élastique afin de limiter les pertes magnétiques (les propriétés magnétiques et mécaniques ont des effets antagonistes [1], [2]). Le but, est plutôt, de comprendre les mécanismes sous-jacents qui régissent l'évolution des propriétés magnétiques et mécaniques en fonction du vieillissement. Il s'est avéré au cours des travaux que les mesures macroscopiques magnétiques et mécaniques n'étaient pas suffisantes pour pouvoir proposer des hypothèses expliquant les évolutions constatées en fonction du vieillissement. A cet effet, des mesures de microstructure ont été effectuées.

Nous abordons ce chapitre en présentant uniquement les résultats de vieillissement qui nous semblent pertinents. En effet, malgré l'établissement d'un protocole d'essai visant à minimiser les intervalles de vieillissement et le temps de caractérisations magnétiques, le nombre de ces dernières reste trop important. Par la suite, nous tentons d'interpréter les résultats en termes d'évolution de degré d'ordre dans ces matériaux. Ces interprétations sont étayées par les mesures de microstructure et aussi par les mesures macroscopiques magnétiques et mécaniques.

V.2 Résultats de vieillissement

Les résultats de vieillissement des AFK502 vont se présenter selon trois parties : mesures initiales, caractérisations magnétiques et enfin mesures de traction mécanique au cours des vieillissements effectués. Les grandeurs relevées pour chaque étape de vieillissement sont reportées en valeurs relatives par rapport aux valeurs initiales (avant vieillissement) (équation (III.1)). Pour ne pas se perdre entre les différentes nuances, le tableau V-1 donne les acronymes de chacune :

RN	Nuance standard de limite élastique d'environ : 400 MPa et de finition nue
RX	Nuance standard de limite élastique d'environ : 400 MPa et de finition oxydée
RI	Nuance standard de limite élastique d'environ : 400 MPa et de finition isolée par du méthylate de magnésium
FP6	Nuance HLE de limite élastique d'environ : 600 MPa et de finition nue
FP6X	Nuance HLE de limite élastique d'environ : 600 MPa et de finition oxydée
FP8	Nuance HLE de limite élastique d'environ : 800 MPa et de finition nue
FP8X	Nuance HLE de limite élastique d'environ : 800 MPa et de finition oxydée
FP8I	Nuance HLE de limite élastique d'environ : 800 MPa et de finition isolée par du méthylate de magnésium
FP10	Nuance HLE de limite élastique d'environ : 1000 MPa et de finition nue
FP10X	Nuance HLE de limite élastique d'environ : 1000 MPa et de finition oxydée

Tableau V-1 Acronymes des 10 nuances AFK502 vieilles

V.2.1 Mesures initiales

Le tableau V-2 présente quelques propriétés magnétiques et mécaniques des 10 nuances AFK502. Chaque grandeur magnétique donnée dans le tableau V-2 correspond, en fait, à la moyenne de 8 mesures effectuées sur 8 échantillons de même nuance. Les mesures mécaniques correspondent à la moyenne de deux mesures sur deux éprouvettes de traction de même nuance.

Comportement magnétique et mécanique des polycristallins FeCoV en fonction du vieillissement thermique

	H_c (A/m) (0.1 Hz)	B_r (T) (0.1 Hz)	$\mu_{\max}$ (0.1 Hz)	P_{hys} (0.1 Hz)	P_{dyn} (2 T/400 Hz)	P_{dyn} (2 T/1600 Hz)	$R_{0,2}$ (MPa)	R_m (MPa)
RN	91	1.67	10800	0.009	46	349	370	850
RX	99	1.53	9200	0.009	51	374	//	//
RI	87	1.65	11400	0.009	44	340	//	//
FP6	422	1.35	1000	0.05	176	843	645	1210
FP6X	512	1.30	850	0.05	195	916	//	//
FP8	645	1.40	890	0.07	239	1145	780	1290
FP8X	724	1.30	770	0.06	271	1310	//	//
FP8I	630	1.40	920	0.07	246	1117	//	//
FP10	884	1.43	790	0.08	350	1525	990	1350
FP10X	1000	1.46	770	0.08	350	1572	//	//

Tableau V-2 Valeurs initiales de quelques propriétés magnétiques et mécaniques des 10 nuances AFK502.

La figure V-1 montre l'évolution des propriétés magnétiques en fonction de la limite élastique $R_{0,2}$. Les propriétés magnétiques concernées sont : H_c , B_r , $\mu_{\max}$ et P_{dyn} à 400 et à 1600 Hz à induction imposée sinusoïdale de 2 T.

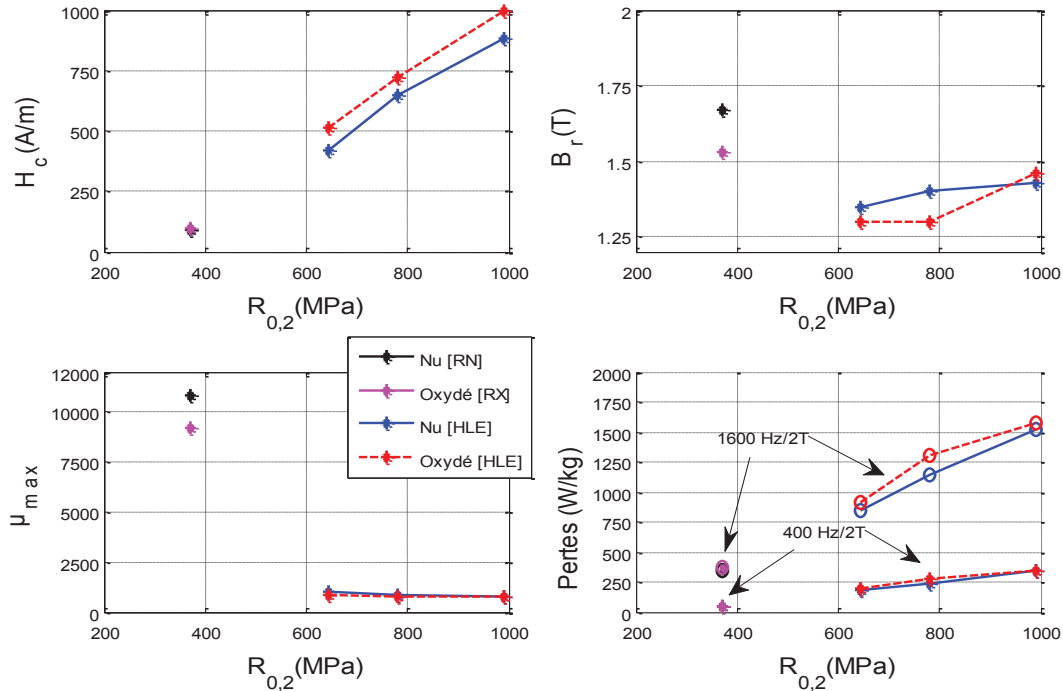


Figure V-1 Evolution des propriétés magnétiques avant vieillissement en fonction de la limite élastique $R_{0,2}$

La figure V-1 montre bien l'impact de la limite élastique sur les propriétés magnétiques où, mise à part l'induction rémanente B_r , les propriétés magnétiques se dégradent avec

l'augmentation de la limite élastique. Ceci est tout à fait cohérent avec la théorie car l'amélioration des propriétés mécaniques se fait au détriment des propriétés magnétiques. En effet, les techniques classiques de durcissement des matériaux se basent sur l'accroissement (en taille et/ou en nombre) de différents défauts physiques dans le polycristallin qui servent d'obstacle aux propagations de dislocations. On peut citer le durcissement par solution solide et par précipitation. Ces techniques sont très pénalisantes vis à vis des propriétés magnétiques [3]. Pour remédier à cela, la société Aperam Alloys Imphy a développé un nouveau procédé de recuit qui donne un bon compromis entre les propriétés magnétiques et mécaniques. Ce nouveau procédé est baptisé « High Strength Process » (HSP). Cette nouvelle technique consiste en un recuit au défilé qui permet un contrôle facile du degré de recristallisation et le degré d'ordre dans le matériau. Contrairement aux procédés classiques qui se basent sur le durcissement de la matrice cristalline, le recuit par recristallisation partielle se base sur l'adoucissement d'une matrice complètement écrouie (donc très dure initialement).

En passant de $R_{0,2}$ d'environ 370 MPa (nuances standards) à environ 600 MPa (nuances HLE), la variation de $\mu_{\max}$ présente une chute importante (entre 11000 à 1000) et l'induction B_r présente un changement de pente. Ce comportement est peut être justifié par le fait que les nuances standards et HLE sont obtenues avec deux types de recuit complètement différents. Les nuances standard sont obtenues par recuit statique de cristallisation complète et les nuances HLE sont obtenues par le recuit au défilé HSP de cristallisation partielle. Si on regarde seulement l'évolution de $\mu_{\max}$ et de B_r des nuances HLE en fonction de $R_{0,2}$, on constate que $\mu_{\max}$ diminue faiblement et que B_r augmente faiblement lui aussi. Cette dernière constatation est très importante car elle montre que le processus HSP permet d'améliorer B_r (ou bien à la limite de garder B_r stable) tout en augmentant le $R_{0,2}$. Par contre concernant la variation de H_c et des pertes dynamiques en fonction de $R_{0,2}$, un prolongement des courbes est tout à fait envisageable entre les nuances standard et HLE.

Pour l'ensemble des grandeurs magnétiques de la figure V-1, les nuances oxydées présentent un peu plus de dégradations magnétiques. Cela est lié, d'une part, à la magnétostriction élevée des nuances AFK502 avec λ_s d'environ 65 ppm. En effet, l'étape d'oxydation applique une contrainte mécanique à la surface des tôles qui se traduit inévitablement par des dégradations magnétiques. D'autre part, les dégradations magnétiques sont dues au fait que l'oxydation crée une couche d'oxyde à partir de la matrice FeCoV, donc consomme une partie de la matière magnétique pour la rendre inopérante tout en créant des sites d'accrochage des parois de Bloch (interface oxyde/matrice FeCoV). Par ailleurs, l'isolation par du méthylate de magnésium semble ne pas détériorer les propriétés magnétiques des échantillons AFK502.

V.2.2 Caractérisations magnétiques quasi-statiques

La figure V-2 présente la superposition des cycles d'hystérésis quasi-statiques des quatre nuances nues avant et après un temps intermédiaire (environ 2500 à 2900 heures) de vieillissement à 300 °C. Les mesures sont faites à 0.1 Hz et à la température ambiante.

Les cycles d'hystérésis avant vieillissement (0 heure) des quatre nuances montrent bien les différences mentionnées dans la section précédente V.2.1. La nuance standard RN présente de meilleures performances magnétiques que les trois nuances HLE. La polarisation à

saturation J_s devrait être la même car les mesures sont faites à la température ambiante et la composition chimique est la même pour toutes les nuances. En fait, la différence de l'induction maximale B_s que présente la nuance standard par rapport aux nuances HLE, observée dans la figure V-2 est liée à des niveaux d'excitation insuffisants pour atteindre la saturation.

En fonction du vieillissement, l'ensemble des nuances montre clairement une diminution du champ H_c et une constance de l'induction maximale B_s .

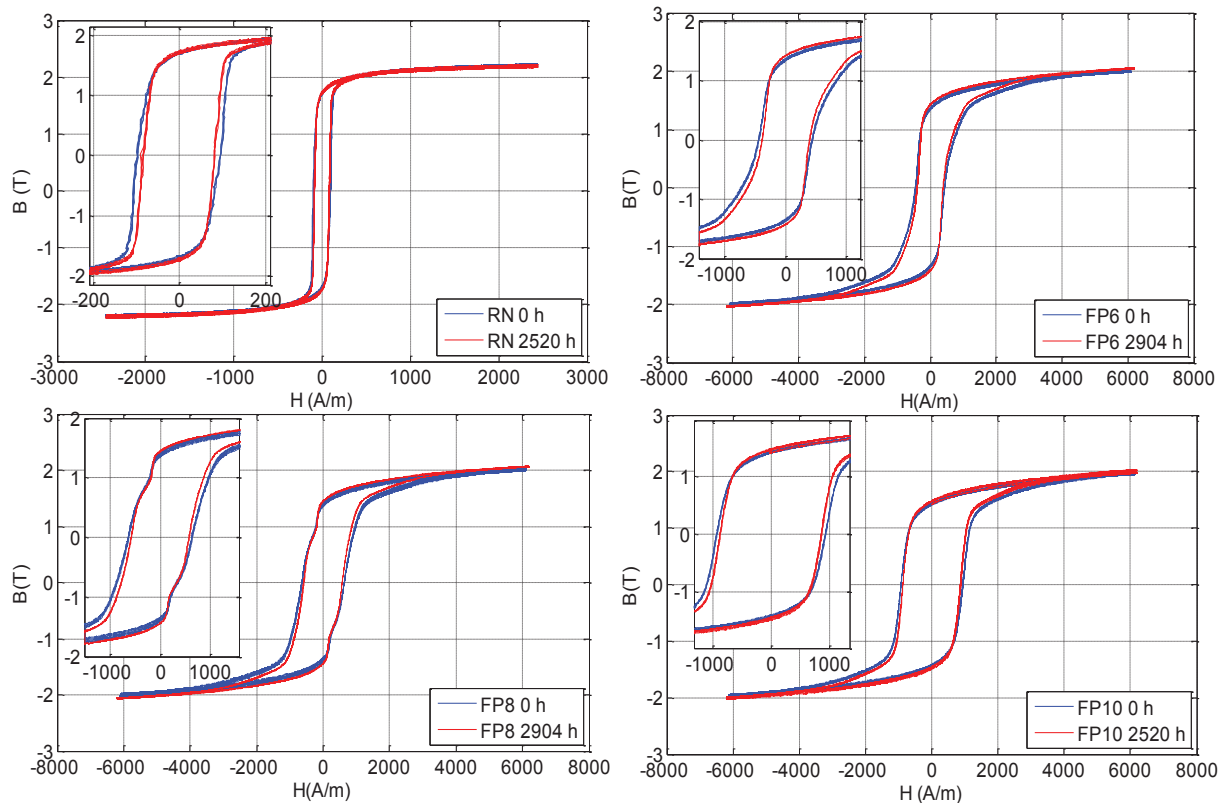


Figure V-2 Cycles d'hystérésis quasi-statiques des quatre nuances avant et après un temps intermédiaire de vieillissement à 300 °C. L'agrandissement montre la diminution de H_c après vieillissement à 300 °C. Les cycles sont mesurés à 0.1 Hz à la température ambiante.

Pour la suite de cette section, on va se contenter de présenter seulement les évolutions relatives en fonction du vieillissement des propriétés magnétiques quasi-statiques des nuances. Chaque évolution correspond à la moyenne des évolutions obtenues pour deux échantillons de nuances identiques.

V.2.2.1 La nuance standard RN

La figure V-3 présente l'évolution relative des propriétés magnétiques (PM) en quasi-statique de la nuance RN en fonction de la durée et des quatre températures de vieillissement. Les propriétés magnétiques concernées sont : H_c , B_r , $\mu_{\max}$ et P_{hys} (pertes hystérésis ou statiques). Les mesures ont été effectuées à 0.1 Hz à la température ambiante.

L'induction rémanente B_r ne présente pas de variations importantes en fonction des quatre températures de vieillissement. En effet, pour l'ensemble des courbes le maximum est

inférieur à 2 % donc on peut considérer que B_r ne varie pas en fonction de la durée du vieillissement.

Pour les températures de vieillissement de 100, 200 et 240 °C, les trois PM (H_c , $\mu_{\max}$ et P_{hys}) semblent avoir la même tendance d'évolution. En effet, le champ H_c augmente en fonction des trois températures de vieillissement et atteint vers 5000 ou 6000 heures un peu plus de 5 %. La perméabilité $\mu_{\max}$ et les pertes P_{hys} , quant à elles, diminuent et atteignent aux alentours de 5000 ou 6000 heures environ -5 % pour $\mu_{\max}$ et -10 % pour P_{hys} .

Pour la température de vieillissement de 300 °C, le champ H_c diminue et la perméabilité $\mu_{\max}$ augmente. Ces deux grandeurs H_c et $\mu_{\max}$ évoluent vers 2500 heures d'environ -13 et +10 % respectivement. Les pertes P_{hys} atteignent vers 2500 heures de vieillissement une diminution d'environ 10%.

Il est à remarquer que la nuance RN présente au cours du vieillissement, une différence de comportement magnétique pour la température 300 °C et le reste des températures de vieillissement. Cela est très notable pour l'évolution de H_c et $\mu_{\max}$.

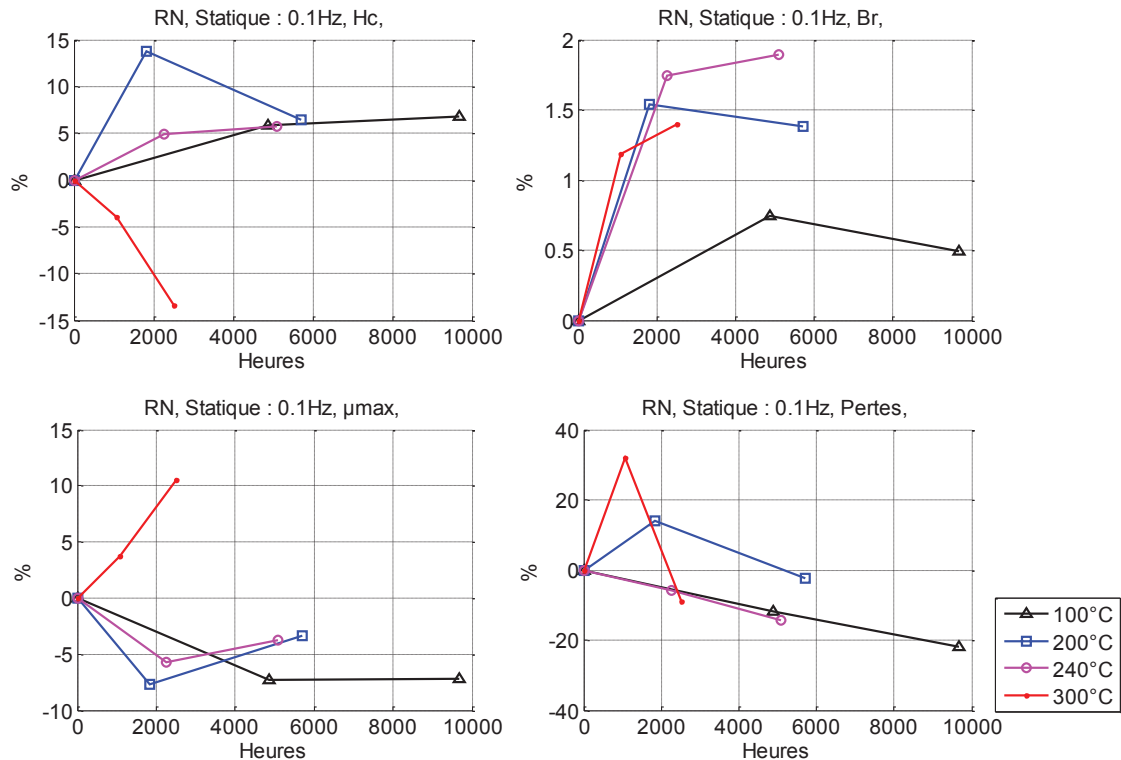


Figure V-3 Evolutions relatives de H_c , B_r , $\mu_{\max}$ et P_{hys} de la nuance RN en fonction des quatre températures de vieillissement.

V.2.2.2 La nuance HLE FP6

La figure V-4 présente l'évolution relative des propriétés magnétiques (PM) en quasi-statiques de la nuance FP6 en fonction de la durée et pour les quatre températures de vieillissement. Les propriétés magnétiques concernées sont : H_c , B_r , $\mu_{\max}$ et P_{hys} (pertes hystérésis ou statiques). Les mesures ont été effectuées à 0.1 Hz à la température ambiante.

Le vieillissement accéléré à 300 °C semble conduire à une amélioration des PM. Après environ 2900 heures, on a une diminution de 12 % de H_c , une augmentation de 3.5 % de B_r , une augmentation de 10 % de μ_{max} et une diminution de 15 % de P_{hys} . Pour le vieillissement à 240 °C (immédiatement inférieure à 300 °C), l'amélioration ne concerne plus le champ coercitif H_c . En effet, H_c présente une tendance à augmenter avec le temps de vieillissement. L'amélioration concerne plus P_{hys} et B_r et concerne moins μ_{max} . En effet, μ_{max} présente une tendance à diminuer après environ 2200 heures. En règle générale, moins la température de vieillissement sera élevée, plus la dégradation sera importante sur H_c et μ_{max} et moins l'amélioration sera efficace sur B_r et P_{hys} . En effet, le vieillissement à 100 °C présente plus de dégradations.

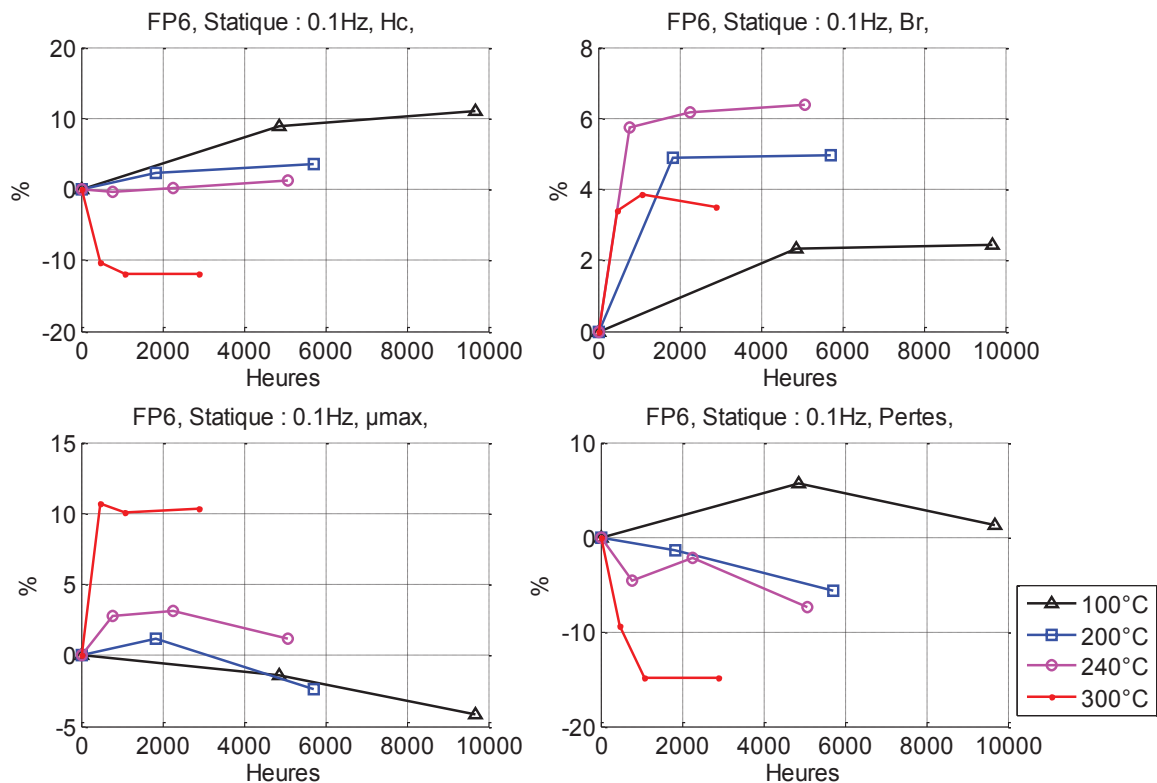


Figure V-4 Evolutions relatives de H_c , B_r , μ_{max} et P_{hys} de la nuance FP6 en fonction des quatre températures de vieillissement.

V.2.2.3 La nuance HLE FP8

La figure V-5 présente l'évolution relative des propriétés magnétiques (PM) en quasi-statiques de la nuance FP8 en fonction du temps et pour les quatre températures de vieillissement. Les propriétés magnétiques concernées sont : H_c , B_r , μ_{max} et P_{hys} (pertes hystérésis ou statiques). Les mesures ont été effectuées à 0.1 Hz à la température ambiante.

Le vieillissement accéléré à 300 °C a permis une amélioration des PM. Après environ 2900 heures, on a une diminution de 9 % de H_c , une augmentation de 4.6 % de B_r , une augmentation de 14 % de μ_{max} et une diminution de 12 % de P_{hys} . Les vieillissements à 100, 200 et 240 °C présentent, pratiquement, les mêmes tendances d'évolution de H_c , B_r et P_{hys} . On constate une amélioration de B_r avec une tendance à une stabilisation, une amélioration de

P_{hys} avec une tendance à la diminution et une détérioration de H_c avec une tendance à l'augmentation. Par contre l'évolution de μ_{max} diffère entre ces trois températures de vieillissement. Elle semble rester stable pour le vieillissement à 240 °C, augmenter pour le vieillissement à 200 °C et diminuer pour le vieillissement à 100 °C. Cela dit, les variations des PM pour ces trois températures de vieillissement restent faibles.

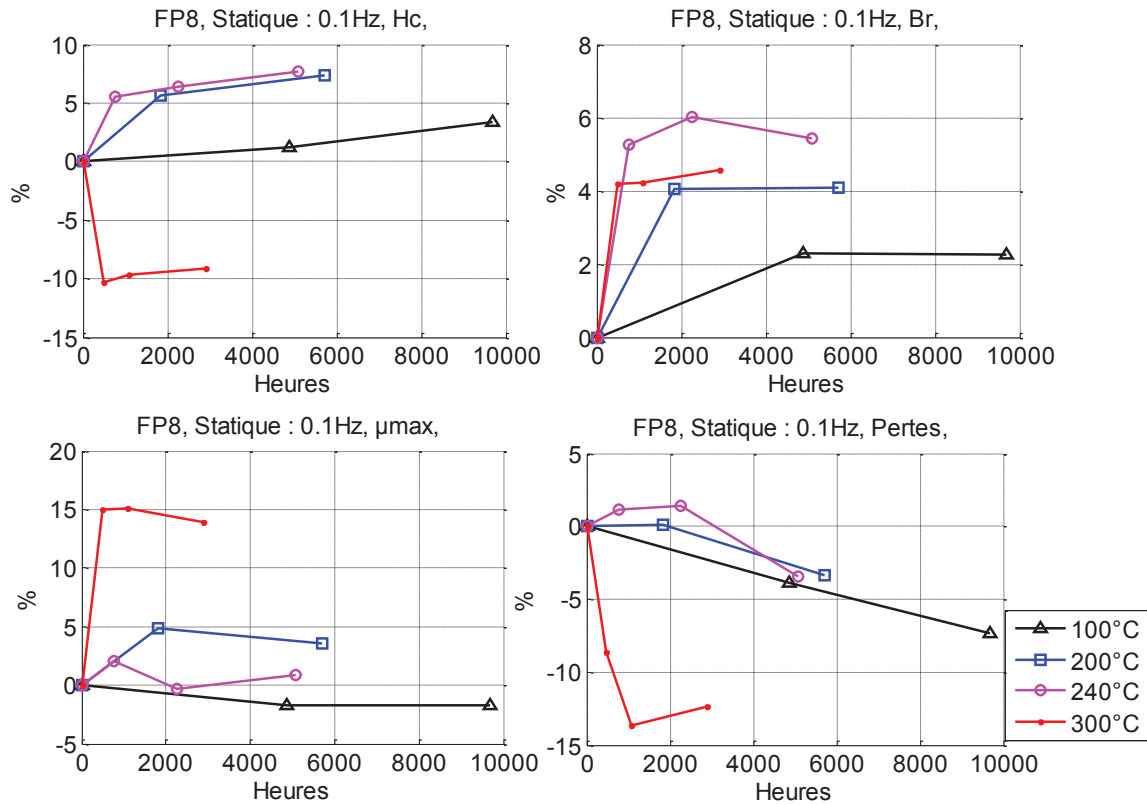


Figure V-5 Evolutions relatives de H_c , B_r , μ_{max} et P_{hys} de la nuance FP8 en fonction des quatre températures de vieillissement.

V.2.2.4 La nuance HLE FP10

La figure V-6 présente l'évolution relative des propriétés magnétiques (PM) en quasi-statiques de la nuance FP10 en fonction du temps et pour les quatre températures de vieillissement. Les propriétés magnétiques concernées sont : H_c , B_r , μ_{max} et P_{hys} (pertes hystérésis ou statiques). Les mesures ont été effectuées à 0.1 Hz à la température ambiante.

Le vieillissement accéléré à 300 °C semble encore une fois améliorer les PM. Après environ 2900 heures, on a une diminution de 7 % de H_c , une augmentation de 9 % de μ_{max} , une diminution de 11 % de P_{hys} et B_r semble varier faiblement autour de 0 %. Les vieillissements à 100, 200 et 240 °C présentent, pratiquement, les mêmes tendances d'évolution des PM. On remarque une détérioration de H_c , une détérioration de μ_{max} pour le vieillissement à 100 °C et une tendance à une stabilisation pour les vieillissements à 200 et 240°C. On note une amélioration de B_r avec une tendance à une augmentation pour les vieillissements à 100 et 200 °C et une tendance à une stabilisation pour le vieillissement à 240 °C. Enfin, on a une

détérioration de P_{hys} avec une tendance à une stabilisation autour de 5 %. Il est à noter que malgré ces constatations les variations des PM pour ces trois vieillissements restent faibles.

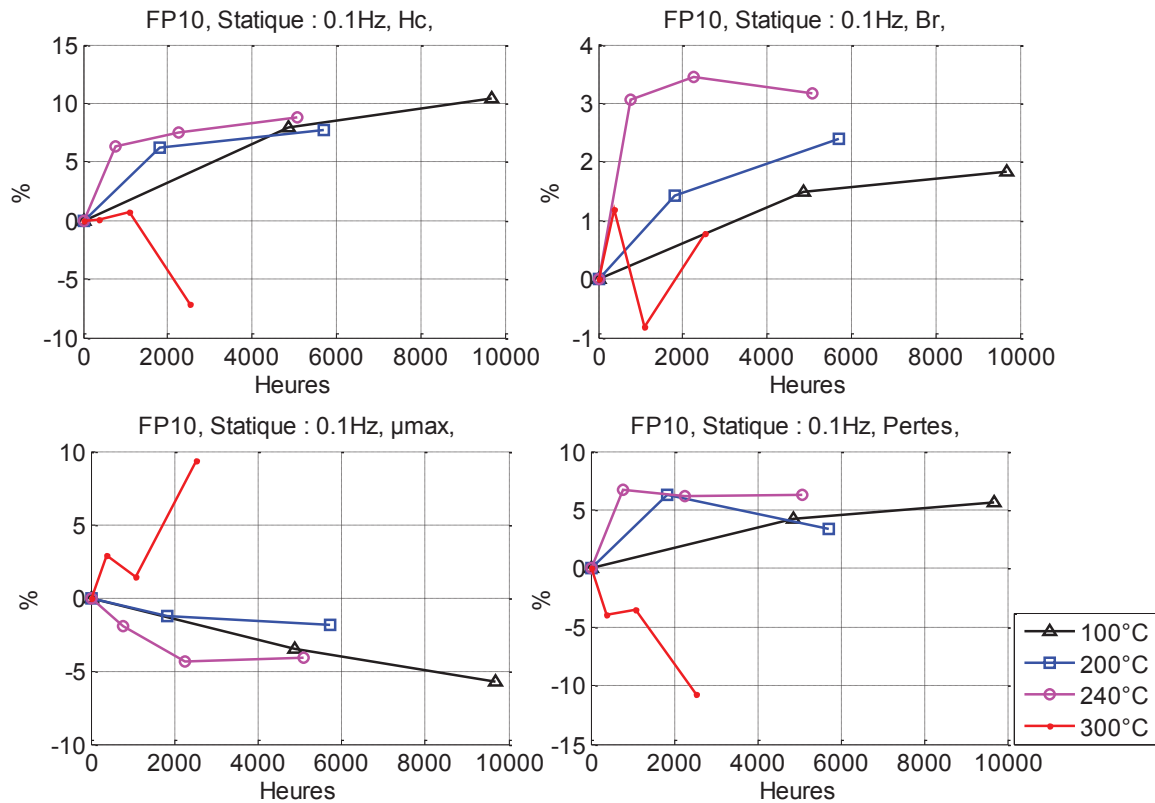


Figure V-6 Evolutions relatives de H_c , B_r , μ_{max} et P_{hys} de la nuance FP10 en fonction des quatre températures de vieillissement.

V.2.3 Caractérisations magnétiques dynamiques

La figure V-7 présente la superposition des cycles d'hystérésis dynamiques des quatre nuances nues avant et après une durée intermédiaire (d'environ 2500 à 2900 heures) de vieillissement à 300 °C. Les mesures sont faites à induction sinusoïdale imposée de 2 T, 400 Hz et à la température ambiante.

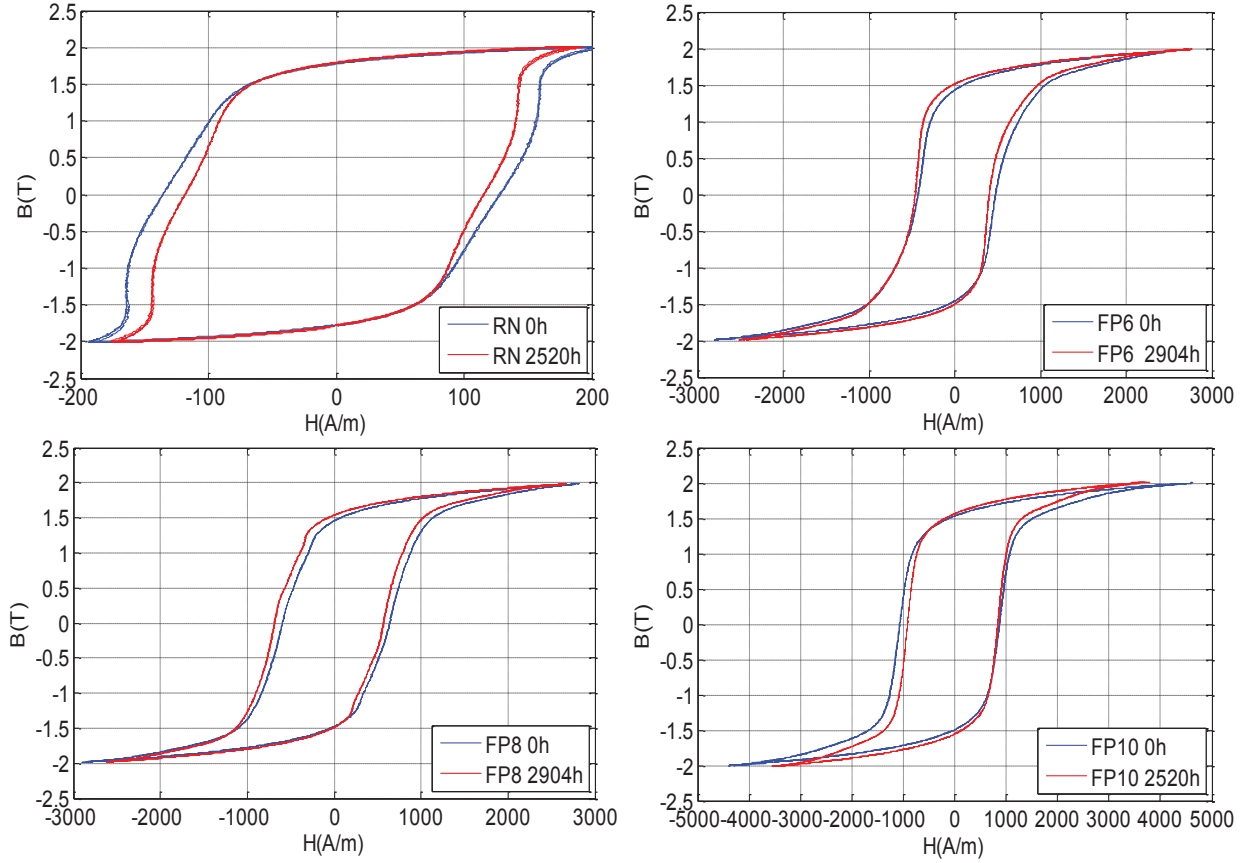


Figure V-7 Cycles d'hystérésis dynamiques des quatre nuances avant et après une durée intermédiaire de vieillissement à 300 °C. Les cycles sont mesurés à 400 Hz / 2T (sin) à la température ambiante.

En fonction du vieillissement, les cycles dynamiques des quatre nuances changent. En conséquence, les pertes dynamiques magnétiques varient.

Dans la suite de cette partie, nous présenterons les variations logarithmiques des pertes en fonction de la fréquence correspondant aux temps initial et maximal de vieillissement. Selon la température de vieillissement, les temps maximum de vieillissement varient ($t_{\max}^{100^{\circ}\text{C}} \approx 9700$ heures ; $t_{\max}^{200^{\circ}\text{C}} \approx 5700$ heures ; $t_{\max}^{240^{\circ}\text{C}} \approx 5100$ heures ; $t_{\max}^{300^{\circ}\text{C}} \approx 2500$ heures). Nous nous contentons de présenter seulement les variations des pertes dynamiques des nuances nues.

Afin de pouvoir commenter et interpréter plus facilement l'évolution des pertes en fonction de la fréquence, un calcul de l'évolution des pertes moyennes en fonction des quatre fréquences est établi selon l'équation (V.1) :

$$P_{\text{moy}}(\text{mat}, T_a) = \sum_{i=1}^n \left[\frac{P(\text{mat}, T_a, f_i^{2T}, t_{\max}) - P(\text{mat}, T_a, f_i^{2T}, t_0)}{P(\text{mat}, T_a, f_i^{2T}, t_0)} \right] \times 100 \% \quad (\text{V.1})$$

Où $n=4$; $f^{2T} = [250, 400, 800, 1600]$ en Hz ; t : temps de vieillissement ; mat : nuance du matériau ; T_a : température du vieillissement, $t_0 = 0$ heure.

V.2.3.1 Evolutions des pertes dynamiques de la nuance standard RN

La figure V-8 présente l'évolution logarithmique des pertes de la nuance RN en fonction de la fréquence pour les matériaux avant et après le dernier point de vieillissement relatif à chaque

température de vieillissement. Les mesures sont faites pour quatre fréquences (250, 400, 800 et 1600 Hz) à induction sinusoïdale imposée de 2 T et à la température ambiante.

Après plus d'un an (environ 9700 heures) de vieillissement à 100 °C, la nuance RN reste stable du point de vue des pertes dynamiques car les pertes P_{moy} ont augmenté de seulement 1.5 %. Par contre pour le reste des températures de vieillissement, la variation des pertes P_{moy} commence à avoir de l'importance notamment par une augmentation d'environ 8 % après environ 5700 heures de vieillissement à 200 °C et 7 % après environ 5100 heures de vieillissement à 240 °C et une diminution de 8 % après environ 2500 heures de vieillissement à 300 °C. En effet, la nuance RN présente un comportement inverse pour le vieillissement à 300°C.

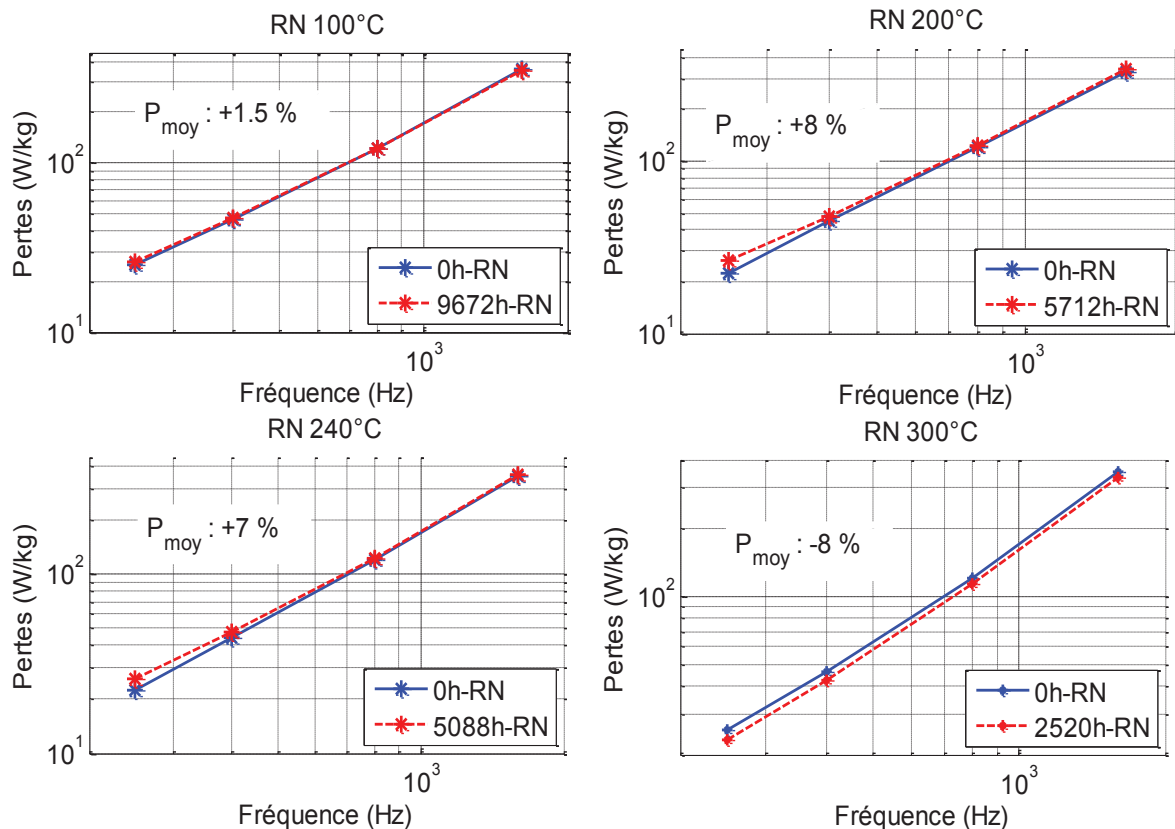


Figure V-8 Evolution logarithmique des pertes de la nuance RN en fonction de la fréquence pour le matériau avant et après le dernier point de vieillissement relatif à chaque température de vieillissement.

V.2.3.2 Evolutions des pertes dynamiques des nuances HLE FP6, FP8 et FP10

La figure V-9 présente l'évolution logarithmique des pertes des nuances HLE, FP6, FP8 et FP10 en fonction de la fréquence pour les matériaux avant et après le dernier point de vieillissement relatif à chaque température de vieillissement. Les mesures sont faites pour quatre fréquences (250, 400, 800 et 1600 Hz) à induction sinusoïdale imposée de 2 T et à la température ambiante.

Le tableau V-3 présente les évolutions des pertes P_{moy} de chaque nuance HLE pour les quatre températures de vieillissement.

Comportement magnétique et mécanique des polycristallins FeCoV en fonction du vieillissement thermique

	100 °C (9672 h)	200 °C (5712 h)	240 °C (5088 h)	300 °C (2904 h)
$P_{\text{moy}}^{\text{FP6}}$ (%)	+6.5	+12.6	+12	+3.4
$P_{\text{moy}}^{\text{FP8}}$ (%)	-0.6	+10	+6	+2.5
$P_{\text{moy}}^{\text{FP10}}$ (%)	-3.5	+4	+8	-6 après 2520 h

Tableau V-3 Valeurs des pertes P_{moy} des nuances HLE aux derniers points de vieillissement.

Sur l'ensemble des températures de vieillissement, la nuance FP6 ne présente que des dégradations des pertes dynamiques. La nuance FP10 présente en l'occurrence des améliorations des pertes dynamiques avec les vieillissements à 100 et à 300 °C. La nuance FP8 présente une stabilité du point de vue des pertes dynamiques après plus d'un an de vieillissement à 100 °C (diminution de seulement -0.6 %).

Si un classement des nuances en terme de dégradation était à établir, on aurait, pratiquement, pour chaque température de vieillissement le classement suivant : FP6, FP8 puis FP10 (sauf dans le cas du vieillissement à 240 °C où la nuance FP10 présente un peu plus de dégradations que la nuance FP8).

Malgré la différence entre les durées de vieillissement pour les quatre températures de vieillissement, on peut conclure que le passage du vieillissement de 100°C à celui de 200 °C est suivi d'une augmentation des pertes P_{moy} et que le passage du vieillissement à 240 à celui à 300 °C est suivi d'une diminution des pertes P_{moy} (voir tableau V-3). Cela est plus notable pour les FP10 car l'évolution de P_{moy} change de signe.

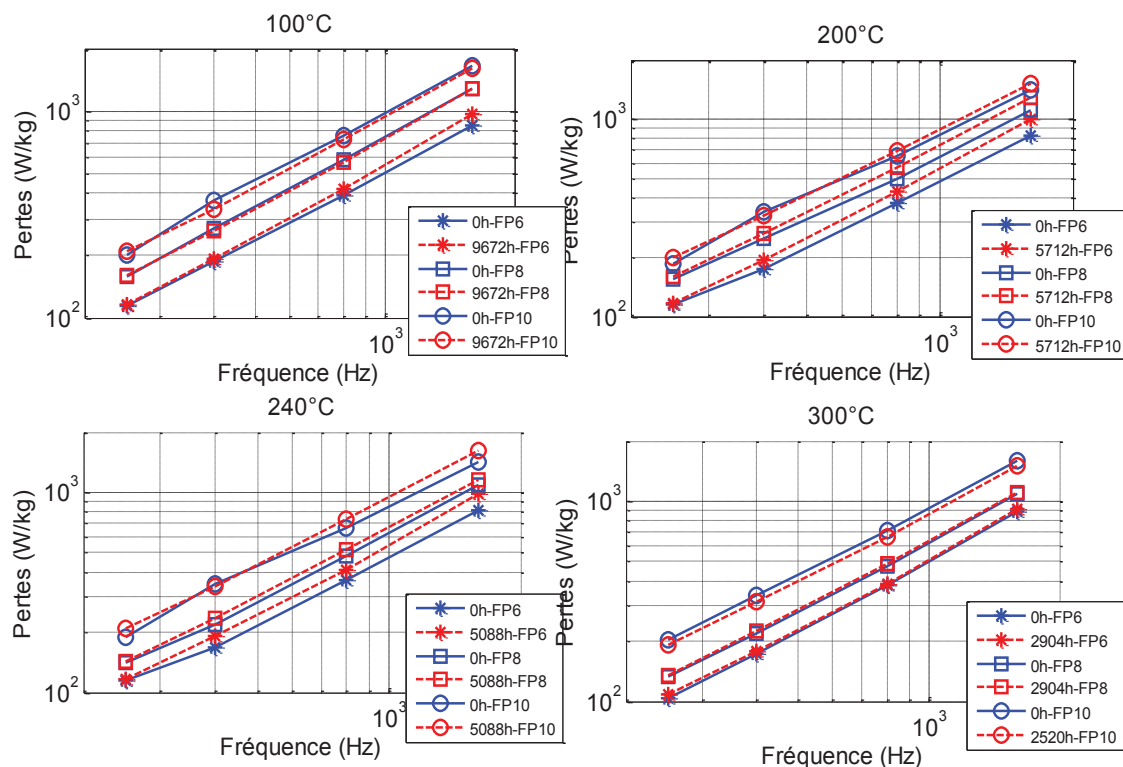


Figure V-9 Evolution logarithmique des pertes des nuances HLE FP6, FP8 et FP10 en fonction de la fréquence pour les matériaux avant et après le dernier point de vieillissement relatifs à chaque température de vieillissement.

V.2.4 Mesures de traction mécanique

La figure V-10 présente les courbes de traction des quatre nuances nues avant et après environ 3900 heures de vieillissement à 300 °C.

La courbe de traction est composée principalement de deux zones : élastique et plastique. Elle permet de fournir les quatre paramètres principaux à savoir :

- Le module d'Young E : qui correspond à la pente de la zone élastique,
- La limite élastique $R_{0,2}$: qui marque la fin de la zone élastique mais avec 0.2 % de déformation plastique,
- La contrainte maximale R_m : qui correspond dans le cas de nos mesures à la fin de la zone plastique autrement dit à la rupture,
- L'allongement A : il est donné en pourcentage.

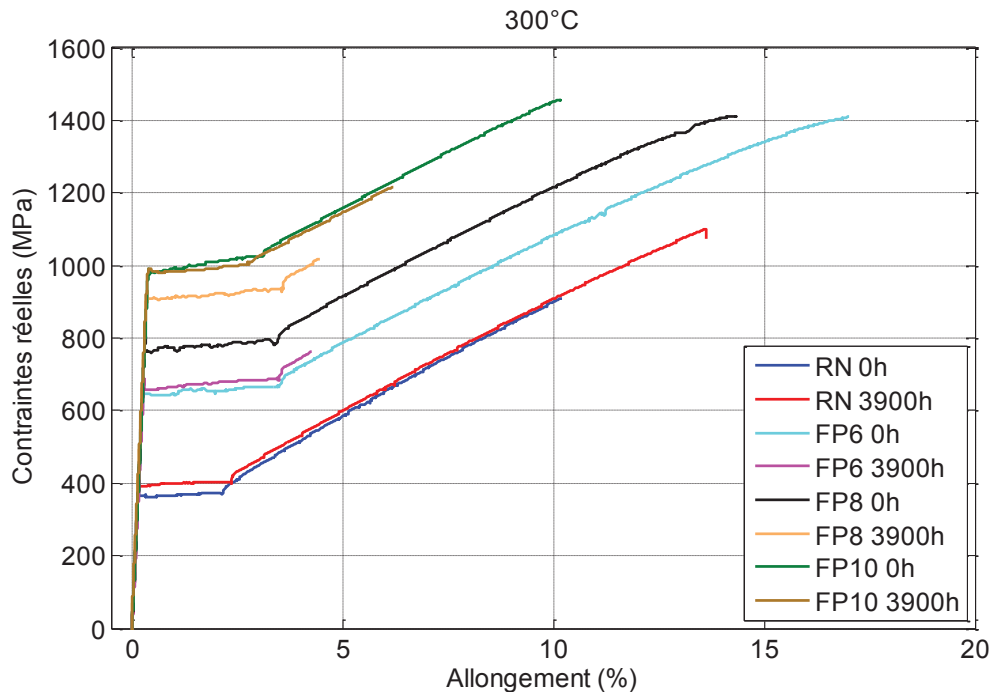


Figure V-10 Courbes de traction des quatre nuances nues avant et après environ 3900 heures de vieillissement à 300 °C.

D'après la figure V-10, les nuances HLE présentent pratiquement la même contrainte R_m alors que celle de la nuance RN est largement inférieure. Après environ 3900 heures de vieillissement à 300 °C, les nuances HLE ne gardent pas la même contrainte R_m . Les nuances HLE ont une chute importante de R_m et de A avec des valeurs différentes. En contrepartie, la nuance RN voit sa contrainte R_m et son allongement A augmenter qui dépassent ceux de FP6 et FP8 après vieillissement. La limite $R_{0,2}$ montre une augmentation importante pour la nuance FP8. C'est le cas aussi pour la nuance RN mais avec une augmentation moindre. Pour le reste des nuances, $R_{0,2}$ montre de faibles variations. Le module d'Young ne montre aucune variation en fonction du vieillissement.

Dans la suite de cette section on présente seulement les évolutions de la limite $R_{0,2}$ et de la contrainte R_m en fonction du vieillissement.

V.2.4.1 Evolution de la limite élastique $R_{0,2}$ en fonction du vieillissement

La figure V-11 présente les évolutions de la limite élastique $R_{0,2}$ des quatre nuances en fonction du vieillissement.

La nuance RN ne présente pas de variations importantes de $R_{0,2}$ mis à part le dernier point à 300 °C qui montre une augmentation relativement importante de plus de 7 % après environ 3900 heures. C'est la même remarque pour le FP6 mais, cette fois ci, c'est le vieillissement à 240 °C qui fait l'exception. En effet, à cette température, on observe une augmentation de plus de 15 % après environ 7100 heures.

La nuance FP8 montre une augmentation importante de $R_{0,2}$ pour les vieillissements à 100, 200 et 300 °C. Le vieillissement à 240 °C ne montre pratiquement pas d'évolution après environ 7100 heures. Le maximum d'augmentation qui est de plus de 20 % est obtenu après environ 9700 heures de vieillissement à 100 °C.

La nuance FP10 montre pour les vieillissements à 200, 240 et 300 °C de faibles diminutions (aux alentours de 2 à 4 %) et une faible augmentation pour le vieillissement à 100 °C (4 % après environ 9700 heures).

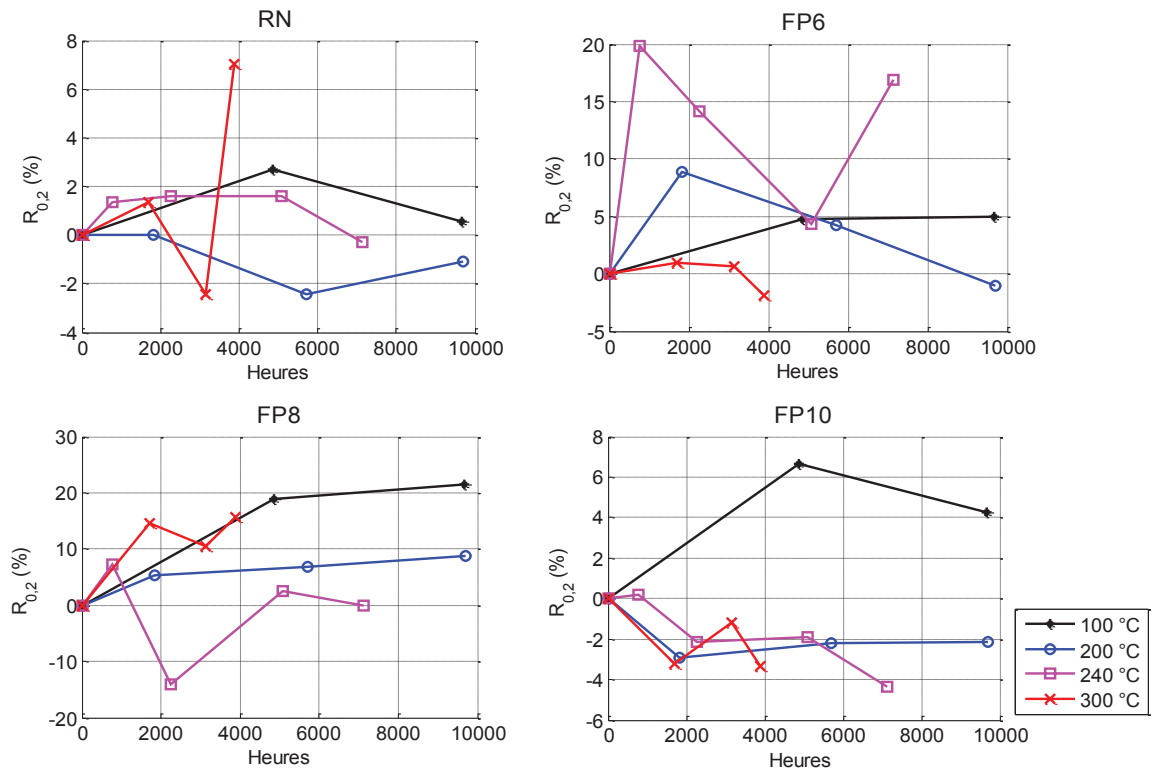


Figure V-11 Evolutions de la limite élastique $R_{0,2}$ des quatre nuances en fonction du temps et des quatre températures de vieillissement.

Pour la majorité de ces courbes, les évolutions sont faibles et non monotones et il y a de fortes possibilités qu'elles soient noyées dans l'incertitude des mesures (le vieillissement n'a pas atteint une valeur stable) ce qui rend l'interprétation très délicate.

V.2.4.2 Evolution de la contrainte maximale R_m en fonction du vieillissement

La figure V-12 présente les évolutions de la contrainte maximale R_m des quatre nuances en fonction du vieillissement. La nuance RN ne montre pas d'évolutions franches et monotones de R_m pour les vieillissements à 100, 200 et 240 °C. Le vieillissement à 300 °C montre, par contre, une augmentation relativement importante de plus de 8 % après 3900 heures.

La nuance FP6 présente des évolutions monotones avec des diminutions importantes de R_m . Le maximum de diminution est d'environ 43 % obtenu après environ 3900 heures de vieillissement à 300 °C. Pour les autres vieillissements, R_m diminue d'environ 20 %.

Le vieillissement à 100 °C de la nuance FP8 ne montre pas de variations de sa contrainte R_m . Par contre, pour les autres températures de vieillissement, la contrainte R_m diminue. Le vieillissement à 200 °C présente une diminution monotone de R_m qui atteint après environ 9700 heures une diminution de 10 %. Les vieillissements à 240 et à 300 °C ne présentent pas de variations monotones car après avoir atteint un minimum (environ 23 %), on constate une tendance à une augmentation.

Le vieillissement à 100 °C de la nuance FP10 ne montre pas de variations de sa contrainte R_m . Par contre, on constate pour les autres températures de vieillissement, des diminutions monotones de R_m . Il est aussi à remarquer que plus la température de vieillissement augmente plus R_m diminue. Le maximum de diminution d'environ 18 % est obtenu après environ 3900 heures de vieillissement à 300 °C.

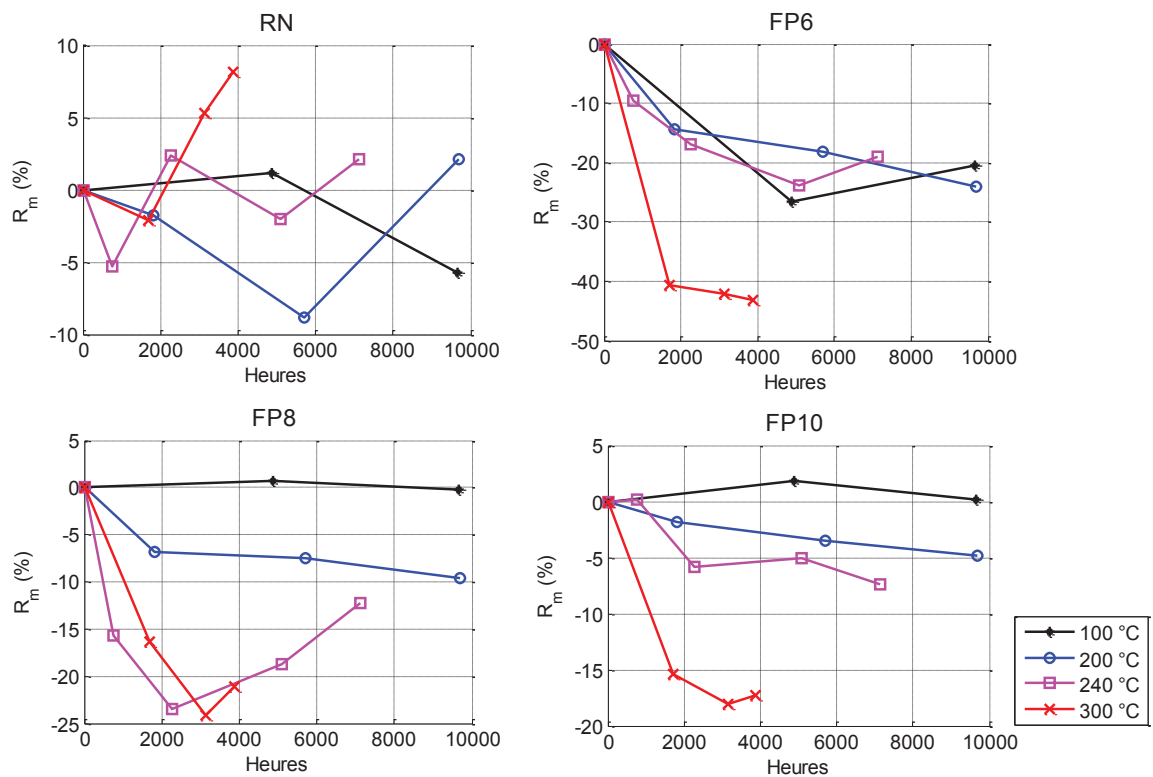


Figure V-12 Evolutions de la limite élastique R_m des quatre nuances en fonction temps et des quatre températures de vieillissement.

V.3 Interprétation des résultats de vieillissement

Les résultats de vieillissement nous ont montré que les propriétés magnétiques et mécaniques des nuances AFK502 nues varient. Pour la majorité des paramètres (magnétiques ou mécaniques), les variations ne sont pas importantes mais sont très distinctes selon la température de vieillissement et la nuance. De ce fait, il n'est pas évident de donner une interprétation globale qui s'applique à tous les paramètres. D'autres parts le nombre de points de vieillissement reste limité et le régime permanent dans les mesures n'est pas atteint.

Certains paramètres macroscopiques ont une liaison directe avec la microstructure. En effet, du côté magnétique, on retrouve le champ coercitif H_c , lié à la taille des grains D , et du côté mécanique, on retrouve la contrainte élastique $R_{0,2}$, elle aussi liée à la taille des grains et au degré d'ordre du système cristallin des matériaux étudiés [3]–[5]. La contrainte de rupture R_m est aussi intéressante car elle renseigne sur la fragilité et donc sur le degré d'ordre LRO (Long Range Order). La relation entre la valeur de R_m et le degré d'ordre est inversement proportionnelle [6]. Pour la suite, les hypothèses de vieillissement proposées s'appuieront principalement sur ces deux paramètres (D et LRO).

V.3.1 Changement de microstructure des AFK502 en fonction du vieillissement

Les nuances HLE ont montré des diminutions fortes de R_m en fonction du vieillissement et surtout pour les températures de 240 et 300 °C. Par conséquent, en fonction du vieillissement, la rupture se déclenche et se propage facilement. Cela est typiquement la conséquence d'une mise en ordre qui fragilise ces matériaux. Moins le matériau est cristallisé (FP6 → FP8 → FP10), moins il peut se mettre en ordre et donc ne se fragilise pas sous l'effet du vieillissement. Pour cette raison, le FP8 et surtout le FP10 se dégradent peu. Les mesures de Pouvoir Thermo-Electrique (PTE) appuient ce résultat car elles montrent qu'il y a bien eu des changements microstructuraux durant le vieillissement.

Des mesures de PTE ont été faites tout au long du vieillissement à 300 °C (jusqu'à 480 heures) pour les nuances FP10 et FP6. Une mesure de PTE a été faite pour la nuance FP8 avant et après le vieillissement à 240 et à 300 °C. Pour la nuance RN, seulement la mesure avant et après le vieillissement à 240°C a été faite.

Pendant 480 heures de vieillissement à 300 °C, les nuances FP6 et FP10 présentent une chute continue du PTE (figure V-13). La nuance FP8 présente, elle aussi, une chute du PTE après 480 heures de vieillissement à 300 °C mais plus faible que celles de FP6 et du FP10 (tableau V-6). Par contre, après un vieillissement de 2600 heures à 240 °C, le PTE de FP8 augmente (tableau V-5). Cela semble indiquer que deux phénomènes différents se passent entre les températures de vieillissement de 240 et 300 °C. Par ailleurs, les propriétés magnétiques montrent un changement de comportement entre ces deux températures de vieillissements. En effet, le vieillissement à 300 °C va dans le sens d'une amélioration des propriétés magnétiques alors que le vieillissement à 240 °C va dans le sens d'une détérioration des propriétés magnétiques. Cependant, une corrélation peut être établie entre l'évolution du PTE et les PM où l'augmentation du PTE indiquerait une dégradation des PM et sa diminution indiquerait une amélioration des PM. Afin de valider cette hypothèse de

corrélation, des essais supplémentaires de PTE seraient nécessaires, notamment, la mesure de PTE pour les nuances FP6 et FP10 pour le vieillissement à 240°C.

Le PTE de la nuance RN n'évolue pas (tableau V-4), ce qui correspond au fait que la nuance s'est entièrement recristallisée. Une mesure de PTE supplémentaire pour un vieillissement de 300 °C devrait être faite pour confirmer ce résultat.

Temps (heures)	0 h	2600 h
PTE (nV/°C)	-1381,5	-1395 (+1%)

Tableau V-4 Changement du PTE de la nuance RN par vieillissement à 240°C.

Temps (heures)	0 h	2600 h
PTE (nV/°C)	253	338,75 (+34%)

Tableau V-5 Changement du PTE de la nuance FP8 par vieillissement à 240°C.

Temps (heures)	0 h	480 h
PTE (nV/°C)	253	222 (-12%)

Tableau V-6 Changement du PTE de la nuance FP8 par vieillissement à 300°C.

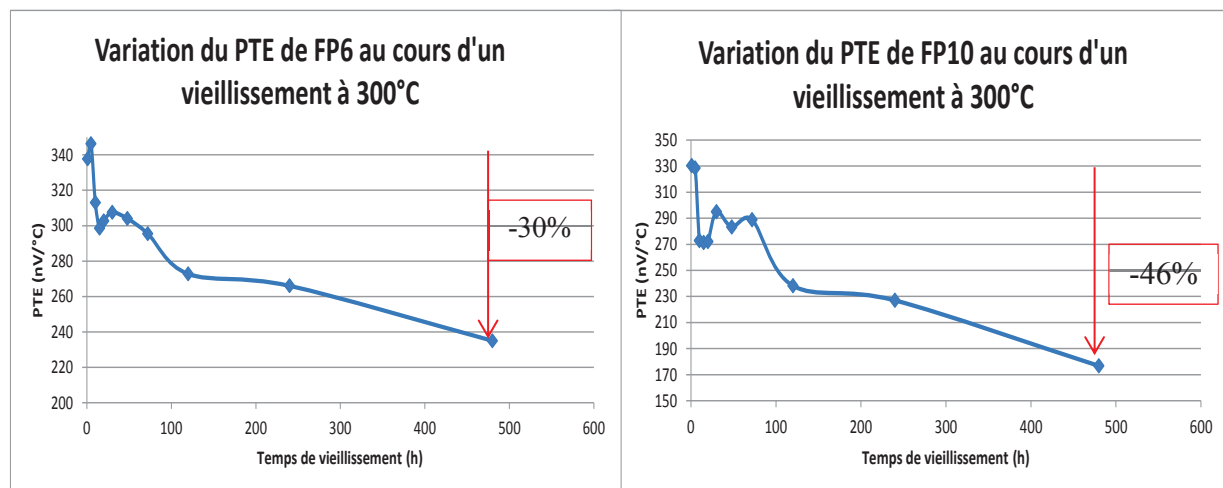


Figure V-13 Evolution du PTE des nuances FP6 et FP10 en fonction du vieillissement à 300 °C.

Dans [7], a été étudiée l'influence de la température sur l'évolution de la résistivité et du PTE d'un alliage amorphe à base de Fe-Co à proportions égales. Cette étude a conclu que le PTE et la résistivité varient de la même manière et que le PTE est plus sensible aux variations de la microstructure. De plus, la chute du PTE (ou de la résistivité) correspond à une cristallisation de l'alliage amorphe et son augmentation est peut être due à un processus de redistribution des atomes.

Il serait imprudent d'envisager une recristallisation des nuances HLE après 480 heures de recuit à 300 °C. En effet, on est très loin des températures de recristallisation (700-860 °C). Par contre, la chute du PTE peut être un indicateur sur la mise en ordre expliquée précédemment par la chute de R_m . La non-variation du PTE des nuances RN vieilles à 240 °C est aussi cohérente par rapport à l'évolution de R_m (R_m a très peu varié pendant le

vieillissement à 240 °C). Par contre, l'augmentation du PTE pour le vieillissement à 240 °C de la nuance FP8 n'est pas cohérente avec la forte diminution de R_m pour les mêmes conditions.

Les mesures de la résistivité des quatre nuances AFK502 pour tous les vieillissements ne montrent aucun changement de valeur. La mesure de la résistivité est moins sensible que la mesure du PTE sur les changements de microstructures.

Cette mesure de résistivité reste quand même importante car elle renseigne sur le fait que les pertes par courant de Foucault ne contribuent pas dans les variations des pertes totales en fonction du vieillissement.

V.3.2 Recristallisation partielle des $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$ [3]

Thornburg [8] a démontré qu'un recuit statique directement en dessous de la température de transition ordre/désordre T_{tr} (~ 710 °C [1]) suivi d'un refroidissement ultra rapide de l'alliage FeCo-2V permet d'obtenir un meilleur compromis entre les propriétés magnétiques et mécaniques. Il a obtenu une limite élastique élevée grâce à l'état partiellement recristallisé et un champ coercitif en forte baisse. De plus, ce recuit de recristallisation partielle améliore d'une manière surprenante la ductilité. Les nuances HLE étudiées sont en fait le fruit de cette découverte.

L'essai de Thornburg a été repris par plusieurs chercheurs en l'appliquant sur le même alliage ou bien sur d'autres alliages légèrement modifiés. Hailer [2] l'a refait sur du FeCo-2V-0.3Nb et il a obtenu les mêmes résultats que ceux de Thornburg et le rejoint dans son explication liée à la recristallisation incomplète. D'autres chercheurs contredisent cet état de fait à savoir que Buckley [9] a observé une recristallisation complète d'un alliage FeCo-0.4Cr pour des températures de recuit inférieures à T_{tr} et aussi Davies et Stoloff [10] qui ont observé le même comportement sur le FeCo-2V. Malheureusement aucun de ces auteurs n'a reporté de variations de contraintes ni de champ coercitif en fonction des températures de recuit.

T. Waeckerlé et al [3] ont récemment repris cet essai en faisant le recuit à 710 °C pour plusieurs durées de recuit. Les mêmes constatations que ceux de Thornburg et Hailer ont été observées. T. Waeckerlé et al ont confirmé le phénomène de recristallisation partielle grâce aux mesures de la fraction cristallisée f_x . La figure V-14 présente en (a) l'évolution semi-logarithmique de f_x , $R_{0,2}$ et H_c en fonction du temps de recuit et en (b) l'évolution de H_c , $R_{0,2}$ et les pertes magnétiques P_{dyn} mesurées à tension sinusoïdale imposée de 2 T à 400 Hz en fonction de f_x .

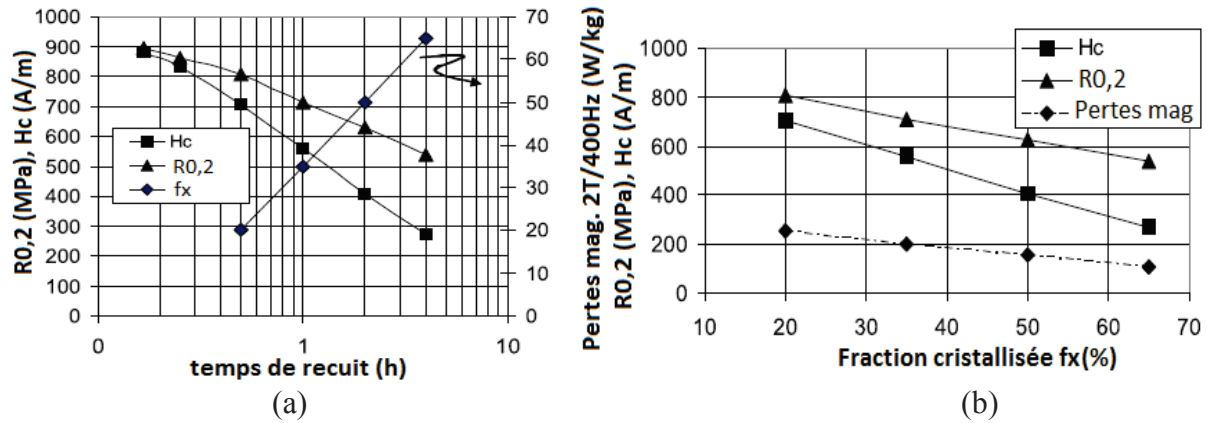


Figure V-14 (a) : Evolutions logarithmiques de f_x , $R_{0,2}$ et H_c en fonction du temps de recuit ; (b) : Relations linéaires de P_{dyn} , H_c et $R_{0,2}$ en fonction de f_x . Copié de [3].

La figure V-14.b montre des évolutions linéaires de H_c , $R_{0,2}$ et P_{dyn} en fonction de f_x . Donc on peut facilement prédire ces trois paramètres pour une fraction f_x donnée grâce aux équations suivantes :

$$H_c = 916 - 10.33 \times f_x \quad (V.2)$$

$$R_{0,2} = 911 - 5.83 \times f_x \quad (V.3)$$

$$P_{dyn} = 305 - 3 \times f_x \quad (V.4)$$

Le principe de fabrication des nuances HLE est basé sur la recristallisation partielle mais la méthode diffère. En effet, passant à une fabrication de masse (industrielle), le recuit tel que Thornburg l'a fait ne peut pas être appliqué pour les processus industriels à cause de la haute inertie thermique. Pour une grosse bobine enroulée de FeCo, l'inertie de recristallisation et le refroidissement n'affectent pas de la même manière le centre, l'intérieur et l'extérieur de la bobine, ce qui provoque des propriétés mécaniques et magnétiques hétérogènes le long de la bobine FeCo. Afin de contourner ce problème, la société Aperam Alloys Imphy a opté pour un recuit au défilé nommé « High Strength Process » (comme expliqué dans la section I.3.4.1 du chapitre I) [3]. Une large gamme de limite $R_{0,2}$ est obtenue (jusqu'à 1100 MPa) et d'une manière surprenante les pertes magnétiques ont été diminuées de 20 à 30 % pour la même limite $R_{0,2}$ par comparaison au recuit statique de recristallisation partielle (essai Thornburg).

V.3.3 Influence du degré d'ordre sur la limite élastique des AFK502 [4], [5]

En se basant sur une récolte vaste de données publiées sur une variété d'alliages FeCo (FeCo, FeCo-V, FeCo-V-Nb, FeCo-Cr, FeCo-Ta), Sourmail [11], [12] a établi une approximation linéaire liant le champ coercitif et l'inverse de la taille des grains :

$$H_c = 36.7 + 777.5 \times D^{-1} \quad (V.5)$$

Où : H_c est exprimé en A/m et D est exprimé en μm .

Sourmail reporte aussi que plusieurs études confirment la validité de la relation Hall-Petch sur les alliages à base de FeCo. Cette relation relie la limite élastique à la taille des grains selon l'équation suivante :

$$R_{0,2} = \sigma_0 + k \times D^{-\frac{1}{2}} \quad (V.6)$$

Où : $R_{0,2}$ correspond à la limite élastique 0,2 % exprimée en MPa, σ_0 est la contrainte de friction qui correspond à la résistance interne au mouvement de dislocations, k est une constante et D correspond à la taille des grains exprimée en μm .

Pour exemple, l'étude de Jordan et Stoloff reportée par Sourmail démontre bien que selon les conditions de recuit les coefficients de l'équation (V.6) varient :

$$R_{0,2} (\text{ordonnée}) = 143 + 714 \times D^{-1/2} \quad (V.7)$$

$$R_{0,2} (\text{désordonnée}) = 435 + 242 \times D^{-1/2} \quad (V.8)$$

Dans l'équation (V.7) les échantillons ont été refroidis à partir de l'état ordonné ($T < T_{tr}$) et l'équation (V.8) est obtenue pour des échantillons refroidis à partir de l'état désordonné ($T > T_{tr}$). La contrainte de friction σ_0 est plus importante quand l'alliage subit une trempe d'une température de désordre ($T > T_{tr}$).

Les équations (V.5) et (V.6) vérifiées pour des alliages FeCo complètement recristallisés sont aussi vérifiées dans le cas des alliages FeCo partiellement recristallisés. En effet, l'étude menée par B. Nabi et al [4], [5] sur des bandes partiellement recristallisée de l'alliage FeCo-2V en recuit statique confirme ce constat. La seule différence est liée au fait que H_c et $R_{0,2}$ ne sont plus en relation linéaire avec la taille des grains en $D^{-1/2}$ mais plutôt avec l'espacement d'interface $d_s^{-1/2}$ (boundary spacing). L'espacement d'interface d_s correspond à la distance caractéristique moyenne dans une microstructure entre tous les types d'interfaces successifs à savoir murs de dislocations, sous-grains, joints de grains, etc. Il est normal d'utiliser cette grandeur dans les alliages partiellement recristallisés car selon le taux de recristallisation f_x , ces alliages présentent différents types de soit-disant grains.

Dans l'étude faite par B. Nabi et al, deux recuits statiques ont été appliqués sur l'alliage AFK502 dont la composition chimique contient 2 at% de V et 0.04 at% de Nb. L'alliage a été préparé par la société Aperam Alloys Imphy. Cet alliage a été préalablement laminé à chaud jusqu'à une épaisseur de 2 mm, suivi d'un laminage à froid. Des échantillons ont ensuite été recuits dans une atmosphère d'hydrogène à deux températures de 710 °C et 840 °C pour différents temps de recuit (le recuit à 710 °C, est appelé A1 et recuit à 840 °C est appelé A2). Le recuit A1 a été suivi d'un refroidissement lent (150 °C/h) et le recuit A2 a été suivi d'une trempe. Le recuit A2 est un recuit flash car les temps de recuit sont de l'ordre de quelques dizaines de secondes. Le recuit A2 est supposé simuler le recuit au défilé. Les microstructures des échantillons issus des recuits A1 et A2 ont été comparées et montrent une évolution microstructurale similaire. La figure V-15 présente, dans le cas du recuit A2, l'évolution de l'espacement d'interface d_s en fonction du temps de recuit (en seconde) et présente aussi l'évolution de la microstructure durant la recristallisation.

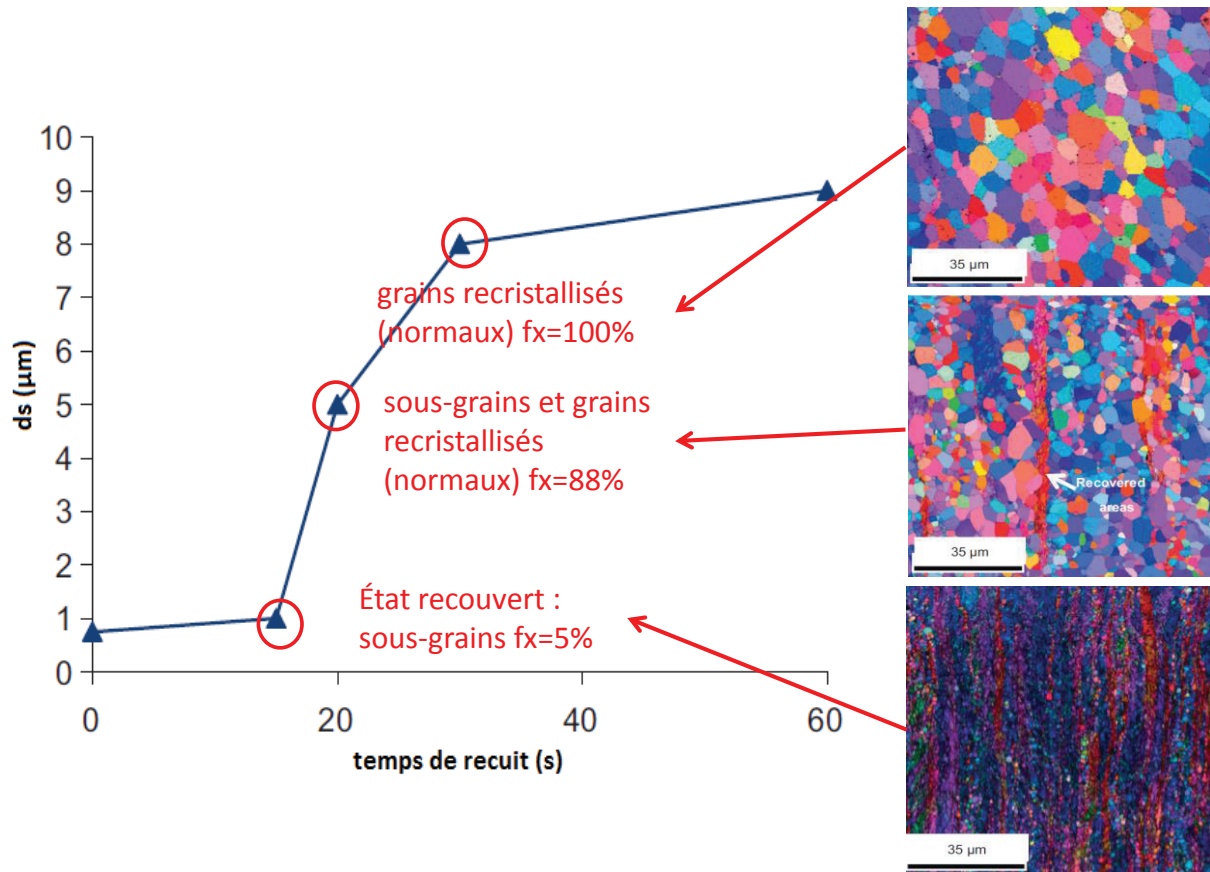


Figure V-15 Evolution de l'espace d'interfaces d_s en fonction du temps du recuit A2. Les images associées montrent l'évolution de la microstructure durant la recristallisation. Copiée de [5].

Les tracés du champ H_c et de la limite $R_{0,2}$ en fonction de d_s suivent bien les équation (V.5) et (V.6), respectivement.

$$H_c = 36.7 + 777.5 \times d_s^{-1} \quad (V.9)$$

$$R_{0,2} = 320 + 714 \times d_s^{-\frac{1}{2}} \quad (V.10)$$

$$R_{0,2} = 190 + 714 \times d_s^{-\frac{1}{2}} \quad (V.11)$$

L'équation (V.10) est relative au recuit A2 et l'équation (V.11) est relative au recuit A1. Bien que le refroidissement, dans le recuit A2, ait été fait à partir de 840°C ($>T_{tr} \approx 710^\circ\text{C}$), la constante Hall-Petch k est égale aussi à 714 (typiquement d'un recuit où le refroidissement est fait à partir d'une température inférieure ou égale à T_{tr}). Par contre le premier terme σ_0 est différent. Le recuit A2 présente une contrainte de friction plus grande que celle du recuit A1 et que celle de l'équation (V.7). La figure V-16 présente en (a) l'évolution de H_c en fonction de d_s pour le recuit A1, A2 et l'équation (V.9) et en (b) l'évolution de $R_{0,2}$ en fonction de d_s pour le recuit A1, A2 et l'équation (V.7).

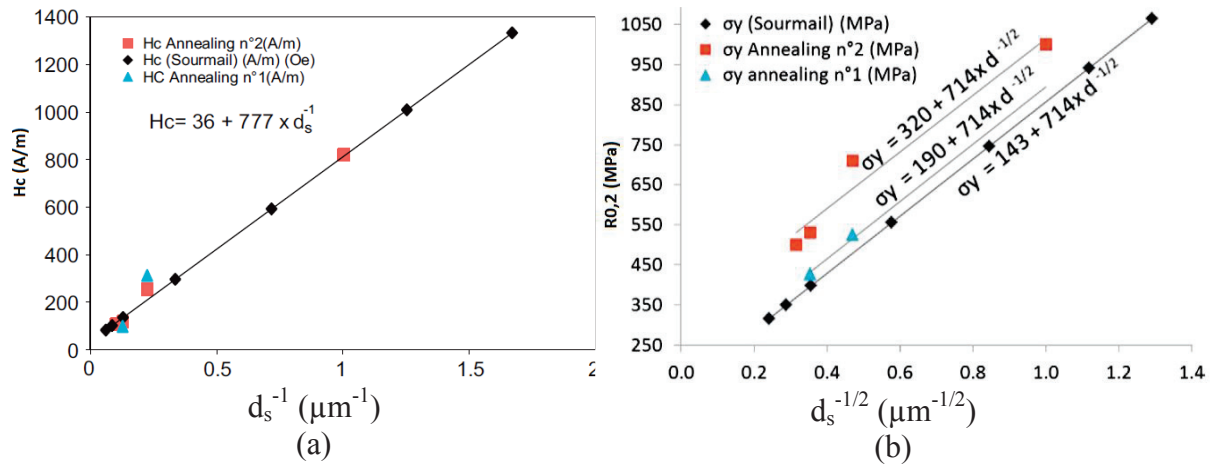


Figure V-16 (a) : Evolution de H_c en fonction de l'espacement d'interfaces d_s des recuits A1 et A2 comparée à son évolution selon l'équation (V.9). (b) : Evolution de $R_{0,2}$ en fonction de d_s des recuit A1 et A2 comparée à son évolution selon l'équation (V.7). Copiées de [5].

Cette différence de contrainte de friction σ_0 est liée au degré d'ordre qui n'est pas le même dans les deux recuits A1 et A2. En effet, partant d'une microstructure similaire entre deux échantillons recuits avec A1 et A2 et dont les pertes magnétiques sont pratiquement identiques mais les limites élastiques sont différentes, il a été démontré par B. Nabi et al, que cette différence en limite élastique est liée au degré d'ordre qui varie en modifiant la vitesse de refroidissement (pour A1 : 150 °C/h et pour A2 : trempe).

Le degré d'ordre a été calculé grâce aux mesures de diffractions de neutron sur les deux échantillons A1 et A2 dont la microstructure est similaire. Ces mesures permettent de déconvoluer le degré d'ordre à grande distance LRO (Long Range Order) du degré d'ordre à courte distance SRO (Short Range Order). Afin de rajouter un autre point de mesure de degré d'ordre et pour avoir une référence par rapport aux états d'ordre de A1 et A2, un 3^{ème} recuit A3 a été conduit à 850 °C pendant 5 heures suivi d'un refroidissement à 30 °C/h pour obtenir un état du matériau complètement ordonné. Le tableau V-7 présente le degré d'ordre calculé avec les mesures de diffractions de neutron pour les recuits A1, A2 et A3.

	Recuit A1	Recuit A2	Recuit A3
SRO (%)	~14	~14	~14
LRO (%)	10	3	13
Degré d'ordre (SRO+LRO) (%)	24	17	27

Tableau V-7 Degré d'ordre calculé à partir des mesures de diffraction au neutron pour les trois recuits A1, A2 et A3. Copié de [4].

Ces mesures démontrent que seulement le degré d'ordre LRO varie en fonction des trois recuits et que le degré d'ordre SRO reste stable. En conséquence, la variation de la contrainte de friction σ_0 (en l'occurrence $R_{0,2}$) est due seulement au LRO.

Le degré d'ordre LRO varie en fonction de la vitesse de refroidissement V_{refd} selon l'équation (V.12) :

$$LRO = 20.6 - 2.1 \times \ln(V_{refd}) \quad (V.12)$$

(Dans le cas du recuit A2, la trempe est approximée par 3000 °C/h)

Une fois que le LRO est déterminé, le tracé du LRO en fonction des contraintes σ_0 respectives donne une relation linéaire entre les deux :

$$\sigma_0 = 400 - 22 \times LRO \quad (V.13)$$

V.3.4 Quantification du LRO en fonction du vieillissement

L'évaluation du LRO en fonction du vieillissement pourrait se faire d'une manière indirecte à l'aide des équations développées par B. Nabi et al. Par exemple, en utilisant l'équation (V.9) et les mesures de H_c , on détermine la variation de d_s en fonction du vieillissement. En utilisant l'équation Hall-Petch avec le coefficient $k = 714$ et les mesures de $R_{0,2}$ et les valeurs de d_s calculées précédemment, on détermine la variation de σ_0 . Une fois que σ_0 est calculée on détermine LRO à l'aide de l'équation (V.13).

Après calcul, il s'est avéré que les équations développées ne sont pas tout à fait applicables sur l'ensemble des nuances AFK502 étudiées. En effet, la quantification de la contrainte de friction σ_0 au départ du vieillissement montre une incohérence entre certaines nuances. La figure V-17 présente les courbes relatives aux équations de Hall-Petch appliquées aux nuances RN, FP6, FP8 et FP10.

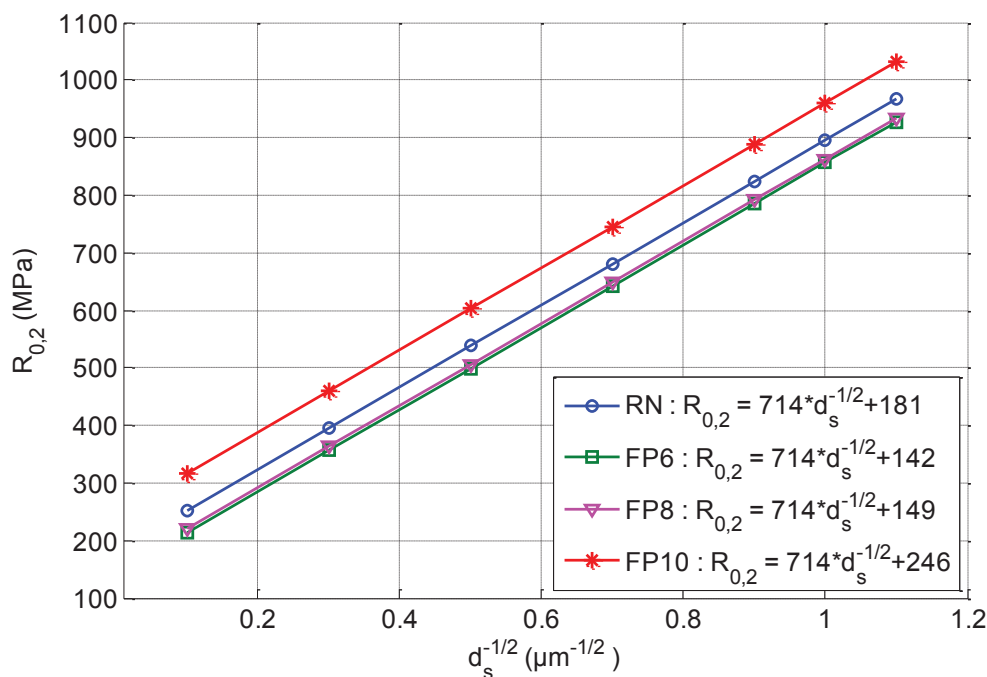


Figure V-17 Evolution de $R_{0,2}$ en fonction de d_s selon l'équation de Hall-Petch pour les quatre nuances étudiées avant vieillissement.

La contrainte σ_0 de la nuance RN est supérieure à celle de FP6 et FP8. Cependant, pour une microstructure similaire (pour un d_s donné), la nuance RN présente plus de contrainte $R_{0,2}$ que FP6 et FP8 ce qui est tout à fait incohérent avec la réalité. Cette incohérence vient, d'une part, du fait que les équations empiriques utilisées pour calculer σ_0 (développées par B. Nabi et al), sont basées sur un certain nombre de suppositions et d'approximations qui ne sont pas tout à fait décrites. D'autre part, du fait qu'on essaye de les appliquer sur des échantillons élaborés avec le recuit au défilé HSP qui n'est pas du tout le même que le recuit flash A2 (contrairement à la constance de la température de recuit A2, la température est continuellement augmentée dans le recuit au défilé HSP pour favoriser la nucléation et la recristallisation [3]).

Par exemple, un calcul de la fraction cristallisée f_x avant vieillissement de la nuance FP10 à partir des mesures de $R_{0,2}$ et de P_{dyn} (2 T/400 Hz) en utilisant les équations (V.3) et (V.4), confirme ce constat. Le calcul de f_x donne respectivement -14 et -15 % ce qui est faux. Le problème serait dans les équations (V.12) et (V.13). La détermination de l'équation (V.12) est très approximative car elle est faite en se basant sur seulement trois points de mesures relatifs aux recuits A1, A2 et A3 (aucune mesure n'est faite pour le recuit au défilé). La détermination de l'équation (V.13) serait à son tour très approximative car le calcul de LRO est fait à l'aide de l'équation (V.12) et le calcul de σ_0 est aussi approximatif car il est fait avec l'équation de Hall-Petch mais en prenant arbitrairement $k=714$. Pour mener à bien cette étude, il faudrait pour les nuances étudiées, refaire des essais permettant de calibrer de nouveau ces lois empiriques.

Malgré ces approximations et hypothèses, la nuance FP10 présente une contrainte σ_0 largement supérieure à celle de RN (246 et 181 MPa respectivement), ce qui est cohérent. Cependant, on peut essayer d'évaluer la variation de σ_0 et de LRO en fonction du vieillissement pour ces deux nuances. La figure V-18 présente l'évolution de LRO de la nuance RN et FP10 en fonction des quatre températures de vieillissement.

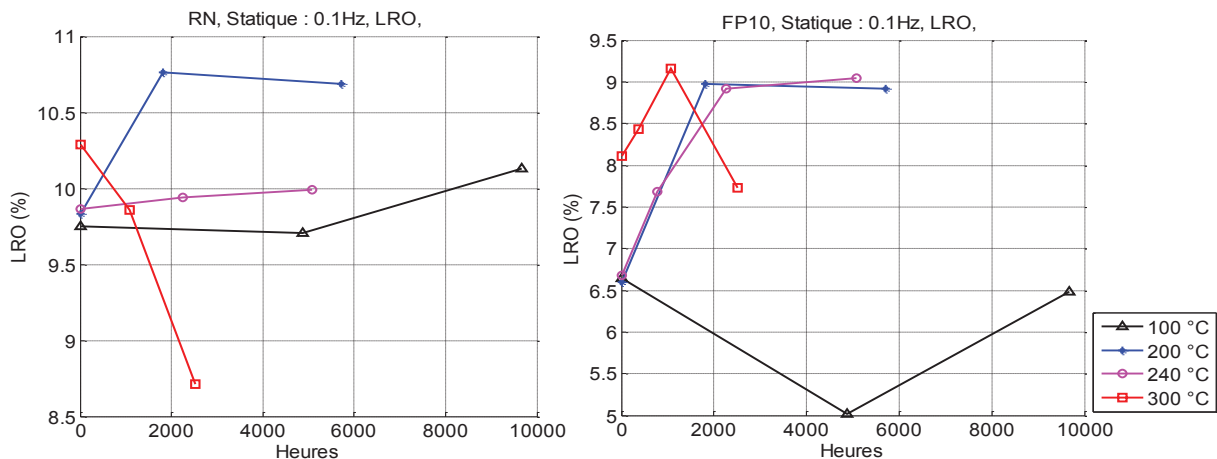


Figure V-18 Evolution du LRO de la nuance RN et FP10 en fonction des quatre températures de vieillissement.

Au même temps de vieillissement entre les évolutions de R_m (voir figure V-12) et les évolutions de LRO (voir figure V-18), la nuance RN présente des variations inversement proportionnelles entre ces deux paramètres, cela est tout à fait cohérent [6]. La nuance FP10

présente la même constatation mis à part pour la température 300 °C où les deux paramètres évoluent dans le même sens. Le tableau V-8 résume ces évolutions de R_m et LRO pour les deux nuances RN et FP10.

		100 °C / 9700 h		200 °C / 5700 h		240 °C / 5100 h		300 °C / 2500 h	
RN	R_m (%)	-6	☺	-9	☺	-2	☺	+2	☺
	LRO (%)	+4		+9		+1		-15	
FP10	R_m (%)	±0	☺	-3.5	☹	-5	☹	-17	☹
	LRO (%)	-2.5		+35		+35		-5	

Tableau V-8 Comparaison entre les évolutions de R_m et de LRO des nuances RN et FP10 pour les quatre températures de vieillissement. Seulement le dernier point est présenté.

D'une manière générale, les calculs de LRO donnent la bonne tendance d'évolution du degré d'ordre mais les valeurs sont discutables. Encore une fois, cela serait à cause des approximations et des hypothèses faites pour le calcul de LRO qui sont mal appliquées à nos échantillons.

V.3.5 Nucléation des grains en fonction du vieillissement

La figure V-19 montre l'évolution de d_s des quatre nuances nues en fonction du vieillissement pour les quatre températures. Le calcul de d_s est fait à l'aide de l'équation (V.9).

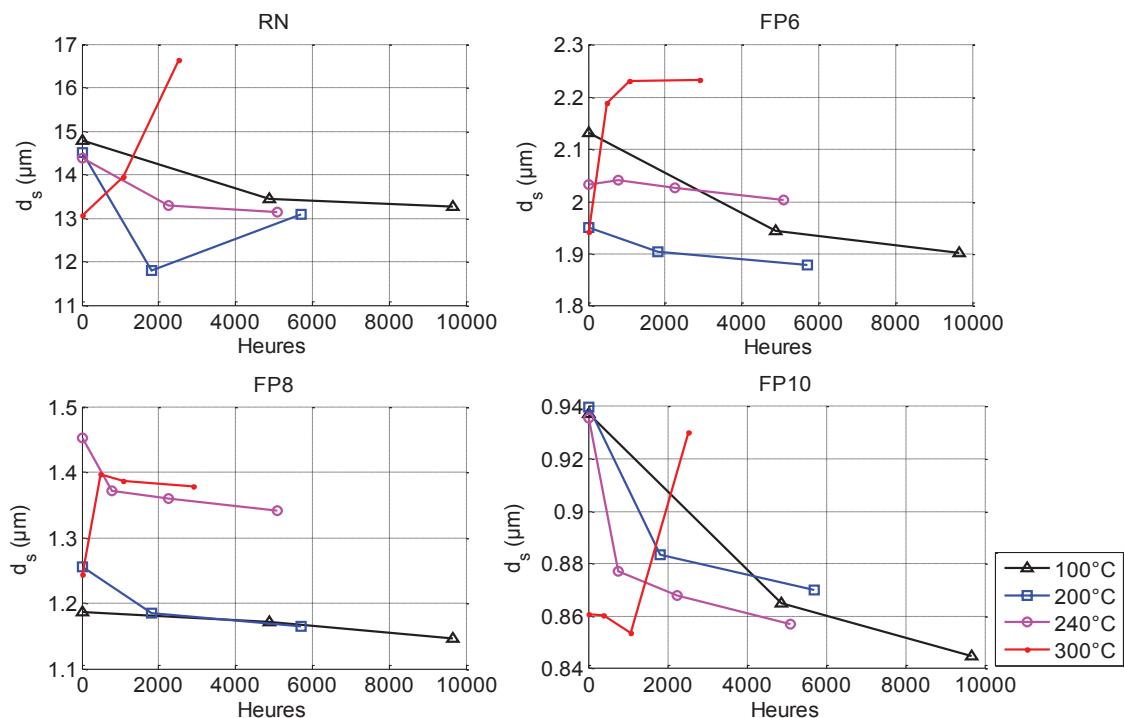


Figure V-19 Evolution de d_s des quatre nuances étudiées en fonction des quatre températures de vieillissement.

Pour l'ensemble des nuances, l'espacement d'interface d_s augmente en fonction du vieillissement à 300 °C et diminue pour les trois autres températures de vieillissement.

L'augmentation de d_s en fonction du vieillissement laisse penser que la fraction cristallisée f_x évolue également. En réalité, si on considère un phénomène de restauration de la matrice cristalline, cela produirait une fraction f_x inchangée mais moins de défauts (dislocations) car les dislocations migrent pour former des « cellules » de dislocations, puis des sous-joints, puis des sous-grains et pour finir de la nucléation de nouveaux petits grains.

Cependant, l'augmentation de d_s pour les nuances HLE est liée à un phénomène de nucléation des grains (nouveaux grains de petites tailles). Par contre, l'augmentation de d_s dans le cas du RN est liée à une croissance des grains (la matrice est déjà entièrement cristallisée).

Des mesures de DRX ont été faites avant et après 480 heures de vieillissement à 300 °C pour les nuances HLE et après 2600 heures de vieillissement à 240 °C pour la nuance RN. La figure V-20 présente deux diffractogrammes obtenus avant et après 480 heures de vieillissement à 300 °C de la nuance FP8.

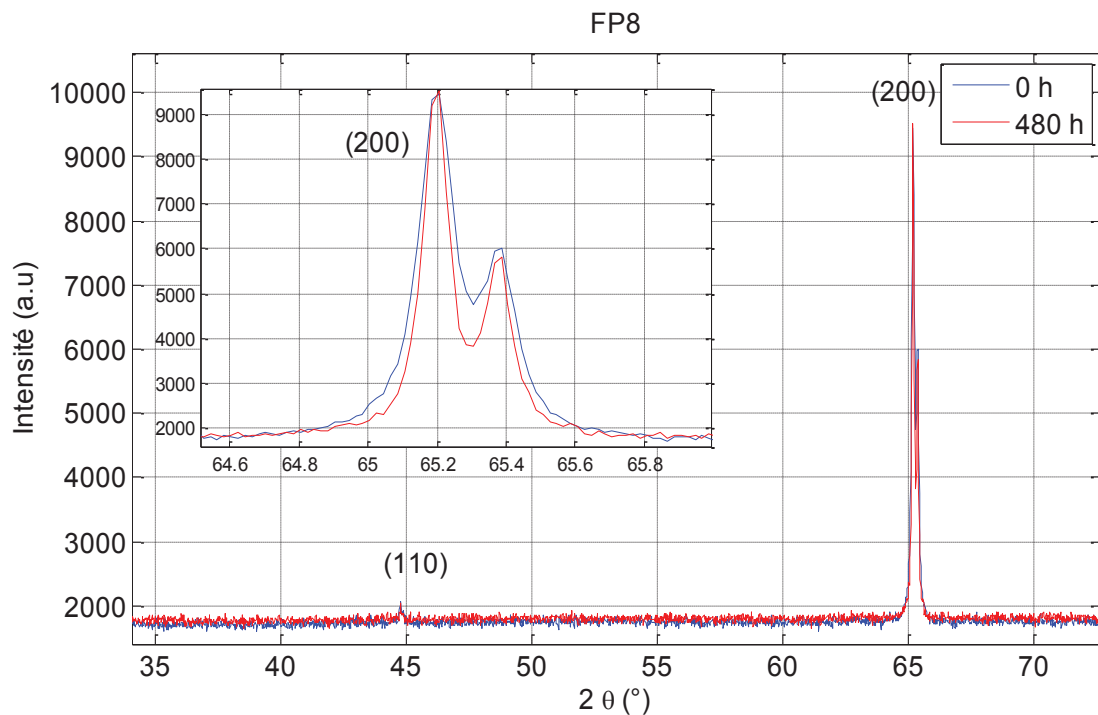


Figure V-20 Diffractogrammes avant et après 480 heures de vieillissement à 300 °C de la nuance FP8. L'agrandissement montre la diminution de la largeur du pic (200) après vieillissement.

Les diffractogrammes présentent deux pics : le grand pic correspond au plan cristallin (200) et le petit pic correspond au plan (110). L'agrandissement dans la figure V-20 du pic (200) montre qu'il y a eu une diminution de la largeur du pic. Selon Scherrer [13], [14], cette diminution irait dans le sens d'une augmentation des domaines cristallins (ce qui correspond à d_s dans nos matériaux). Cela correspond à ce que l'on voit sur la figure V-19 où d_s a augmenté après 480 heures de vieillissement à 300 °C. De plus, les diffractogrammes présentent des différences marquées au niveau des intensités des deux pics. La figure V-21 présente des histogrammes relatifs au rapport des intensités I_{110}/I_{200} des nuances HLE avant et après vieillissement (seulement le rapport avant vieillissement de la nuance RN est montré car la mesure de DRX après le vieillissement à 300 °C n'a pas été faite).

Des histogrammes bleus (avant vieillissement) on conclut que le rapport I_{110}/I_{200} diminue avec l'augmentation du temps de recuit (de FP10 à RN). Donc ce rapport diminue avec l'augmentation de la recristallisation qui commence par une nucléation des grains (de FP10 à FP6) puis une croissance de grains (de FP6 à RN). Si l'on compare maintenant ce rapport avant et après le vieillissement, on remarque que le vieillissement a aussi pour effet d'abaisser ce rapport pour les nuances HLE. Donc lors du vieillissement on aurait une nucléation de grains pour les nuances HLE. Cette conclusion est en accord avec l'augmentation de d_s des nuances HLE calculée précédemment à l'aide de l'équation (V.9).

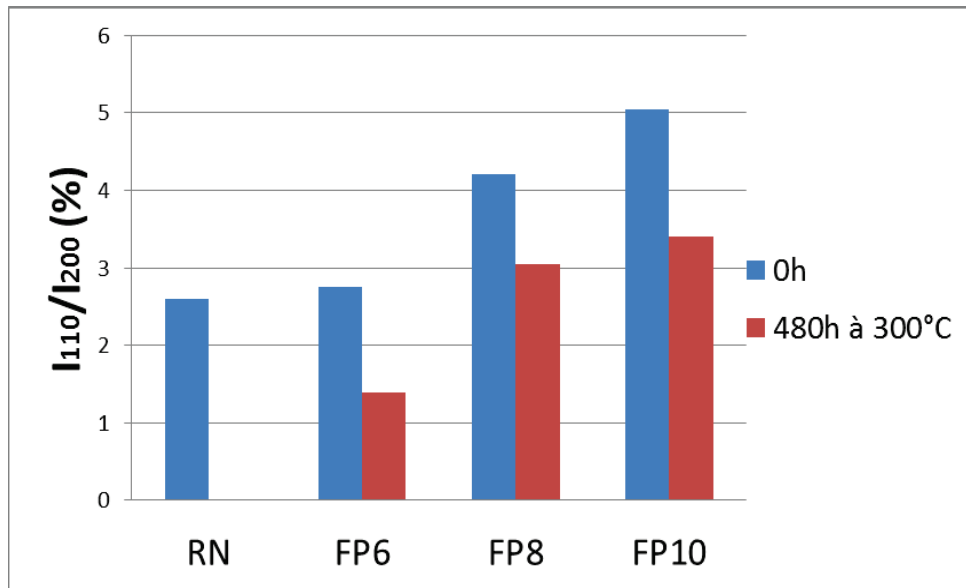


Figure V-21 Changement du rapport I_{110}/I_{200} par vieillissement de 480 heures à 300 °C pour les nuances HLE. Seulement le rapport avant vieillissement est présenté pour la nuance RN.

V.4 Conclusion

Il est difficile de porter une conclusion sur les évolutions des propriétés magnétiques et mécaniques en fonction de la durée du vieillissement. En effet, en fonction de la température de vieillissement d'une part et de la nuance de l'alliage d'autre part, on constate des comportements totalement différents. Cependant, des remarques peuvent être dégagées :

- Pour l'ensemble des nuances, les évolutions des propriétés magnétiques constatées pour le vieillissement à 300 °C sont atypiques des évolutions observées pour les autres températures de vieillissement (100 à 240 °C). Le vieillissement à 300 °C semble améliorer les propriétés magnétiques ou bien, limiter les dégradations alors que les autres températures de vieillissement semblent les détériorer.
- Les propriétés mécaniques ne partagent pas la remarque citée ci-dessus. Pour pratiquement l'ensemble des températures de vieillissement et des nuances, la limite élastique $R_{0,2}$ présente peu de variations. Par contre, la limite R_m présente des détériorations pour l'ensemble des nuances HLE (pour la nuance RN elle a peu de variations).

- Les essais de vieillissements n'ont pas atteint une stabilité et ou d'évolutions monotones et doivent être poursuivis afin de mieux appréhender les différents phénomènes.

La raison principale des variations des propriétés magnétiques et mécaniques en fonction du vieillissement, est liée au changement de microstructure. En effet, il est démontré que l'espacement d'interfaces d_s et le degré d'ordre à grand distance LRO varient simultanément en fonction du vieillissement (le champ coercitif H_c dépend de d_s et la limite élastique $R_{0,2}$ dépend de d_s et de LRO).

Afin de pouvoir quantifier correctement l'évolution du LRO en fonction du vieillissement, la démarche suivie par B. Nabi et al pour la détermination du LRO devrait être refaite mais appliquée aux nuances recuites par le procédé HSP.

V.5 Références

- [1] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism*. Princeton (N.J.), Etats-Unis d'Amérique, Canada, Royaume-Uni de Grande-Bretagne et d'Irlande du Nord, 1951.
- [2] B. T. Hailer, "Effect of Heat Treatment on Magnetic and Mechanical Properties of an Iron-Cobalt-Vanadium-Niobium Alloy.," phd thesis, Virginia Tech, 2001.
- [3] T. Waeckerlé, R. Battonnet, T. Wéry, and F. Petit, "Fully Processed Fe-Co Soft Magnetic Laminations for High-Speed Electrical Machines," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 50, no. 4, pp. 1–6, Apr. 2014.
- [4] B. Nabi, A.-L. Helbert, F. Brisset, G. André, T. Waeckerlé, and T. Baudin, "Effect of recrystallization and degree of order on the magnetic and mechanical properties of soft magnetic FeCo–2V alloy," *Materials Science and Engineering: A*, vol. 578, pp. 215–221, Aug. 2013.
- [5] B. Nabi *and al.*, "Effect of long range order on mechanical properties of partially recrystallized Fe₄₉Co–2V alloy," *Materials Science and Engineering: A*, vol. 592, pp. 70–76, Jan. 2014.
- [6] H. M. Tawancy and M. O. Aboelfotoh, "Application of long-range ordering in the synthesis of a nanoscale Ni₂ (Cr,Mo) superlattice with high strength and high ductility," *Materials Science and Engineering: A*, vol. 500, no. 1–2, pp. 188–195, Jan. 2009.
- [7] K. Pękała, "Thermoelectric and electrical resistivity study of Hitperm alloys," *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 354, no. 47–51, pp. 5304–5307, Dec. 2008.
- [8] D. R. Thornburg, "High-Strength High-ductility Cobalt-Iron Alloys," *Journal of Applied Physics*, vol. 40, no. 3, pp. 1579–1580, Mar. 1969.
- [9] R. A. Buckley, "Ordering and recrystallization in Fe-50Co-0.4%Cr," *Metal Science*, vol. 13, no. 2, pp. 67–72, Feb. 1979.
- [10] N. S. Stoloff and R. G. Davies, "The plastic deformation of ordered FeCo and Fe₃ Al alloys," *Acta Metallurgica*, vol. 12, no. 5, pp. 473–485, May 1964.
- [11] T. Sourmail, "Evolution of strength and coercivity during annealing of FeCo based alloys," *Scripta Materialia*, vol. 51, no. 6, pp. 589–591, Sep. 2004.
- [12] T. Sourmail, "Near equiatomic FeCo alloys: Constitution, mechanical and magnetic properties," *Progress in Materials Science*, vol. 50, no. 7, pp. 816–880, Sep. 2005.
- [13] A. T. D'Agostino, "Determination of thin metal film thickness by x-ray diffractometry using the Scherrer equation, atomic absorption analysis and transmission/reflection visible spectroscopy," *Analytica Chimica Acta*, vol. 262, no. 2, pp. 269–275, Jun. 1992.
- [14] V. Uvarov and I. Popov, "Metrological characterization of X-ray diffraction methods for determination of crystallite size in nano-scale materials," *Materials Characterization*, vol. 58, no. 10, pp. 883–891, Oct. 2007.

Conclusion générale et perspectives

Le travail de cette thèse a porté sur l'étude du vieillissement thermique de deux types de matériaux magnétiques que sont les polycristallins FeCoV et les nanocristallins FeCuNbSiB. Ces deux types de matériaux qui possèdent des structures fondamentalement différentes ont été fournis sous différentes nuances et finitions.

Différentes étapes non chronologiques mais devant être opérées au coup par coup pour mener à bien ce travail ont nécessité :

- D'effectuer plusieurs vieillissements à des températures différentes et sous les conditions atmosphériques,
- De faire de nombreuses caractérisations magnétiques et électriques à chaque intervalle de temps de vieillissement. Les mesures des grandeurs mécaniques des échantillons FeCo ont été faites dans les locaux de la société Aperam Alloys Imphy après renvoi des éprouvettes de traction à chaque intervalle de temps de vieillissement,
- De traiter informatiquement les résultats des caractérisations afin d'extraire les grandeurs macroscopiques et de permettre le tracé de leurs évolutions en fonction du vieillissement. Cette étape est apparue aussi chronophage que celle des caractérisations,
- D'analyser les résultats des caractérisations. Cette étape a permis l'identification des phénomènes qui sont à l'origine des évolutions obtenues.

La dernière étape a nécessité des mesures complémentaires de types microscopiques afin de pouvoir établir des corrélations avec d'éventuels changements de microstructure (taille de grains, précipités, défauts, etc). Ces caractérisations à l'échelle microscopique ont fait l'objet d'une collaboration avec le laboratoire MATEIS, situé à l'INSA de Lyon, dans le cadre de l'encadrement d'un travail de stage de fin d'étude (3 mois) d'un élève ingénieur. Par ailleurs, au sein du laboratoire SATIE, une mesure de type magnéto-mécanique en fonction du vieillissement a été faite sur plusieurs rubans nanocristallins dans le but de définir la valeur du coefficient de magnétostriction à saturation λ_s .

Ce travail de thèse a permis d'apporter un certain nombre de réponses aux nombreuses questions que suscite le sujet lié au vieillissement des matériaux polycristallins FeCoV et nanocristallins FeCuNbSiB.

• Les nanocristallins FeCuNbSiB (Nanophy)

Le chapitre III est consacré à l'étude du vieillissement des nanocristallins FeCuNbSiB haute et moyenne perméabilités ($\mu 500000$ et $\mu 30000$). Il ressort de cette étude que les variations des propriétés magnétiques de ces matériaux ne sont pas dues à des changements de microstructure (aucune variation notable n'a été décelée grâce aux mesures DRX, DSC et PTE). Les variations des propriétés macroscopiques sont plutôt dues aux modifications des structures en domaines magnétiques gérées par les énergies d'anisotropie. En effet, grâce aux mesures de courbes de première aimantation et aux mesures de microstructure et de magnétostriction, une quantification des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement a été faite. Cette quantification a démontré l'apparition d'une nouvelle anisotropie dans le cas

du vieillissement avec désaimantation (VAD) et sans désaimantation (VSD) des échantillons $\mu 500000$ nus. Nous avons supposé que cette dernière est introduite localement autour de chaque domaine magnétique d'une manière incohérente dans le cas du vieillissement VAD (K_u^{loc}) et semi-cohérente dans le sens longitudinal dans le cas du vieillissement VSD ($K_u^{semi//}$). Cependant, pendant le vieillissement, ces deux nouvelles anisotropies perturbent le processus d'aimantation en empêchant la formation des « gros » domaines et, par la suite, leur rotation. De plus, le degré de dégradation des propriétés magnétiques des matériaux nanocristallins dépend du résultat issu de la compétition des différentes énergies d'anisotropie mises en jeu au cours du vieillissement. Des dégradations des propriétés magnétiques seront constatées si ce résultat diffère de l'anisotropie prédominante dans le matériau avant vieillissement ($<K1>$).

Le vieillissement des nanocristallins $\mu 30000$ nus présente de faibles dégradations des propriétés magnétiques. Ces dernières sont dues à l'expansion des domaines de fermeture qui gênent la rotation des domaines majoritaires transversaux. Il est supposé que cette expansion est due à l'instauration d'une anisotropie longitudinale ($K_u^{//}$).

Nous pouvons aussi conclure que le degré d'instauration d'une anisotropie ne dépend pas du type du matériau nanocristallin mais plutôt des conditions de vieillissement (temps, température, sous aimantation ou non ...).

L'étude du vieillissement sur les nanocristallins moyenne perméabilité $\mu 30000$ nus et enrobés décrite dans le chapitre IV, montre que les propriétés magnétiques des échantillons enrobés sont plus dégradées que celles des échantillons nus. La raison est liée au vieillissement du ruban nanocristallin « seul » et au vieillissement de l'enrobage qui provoque des contraintes de compression sur le ruban nanocristallin. Ces contraintes sont équivalentes à une traction longitudinale. Cependant, durant le vieillissement, une anisotropie magnétoélastique est instaurée dans le sens de la traction élargissant encore plus les domaines de fermeture. Ces derniers perturbent encore plus le processus d'aimantation notamment la rotation des domaines transversaux.

L'étude du vieillissement accéléré à 200 °C présente une amélioration des propriétés magnétiques après la cassure totale de l'enrobage. Cette amélioration est liée à la disparition progressive de l'anisotropie magnétoélastique instaurée pendant la première étape de vieillissement sous contraintes de l'enrobage.

L'étude du vieillissement sur les nanocristallins basse perméabilité $\mu 200$ nus et enrobés décrite dans le chapitre IV, montre que l'énergie d'anisotropie totale ne varie pas en fonction du vieillissement. En réalité, il y a bien eu l'introduction d'une énergie d'anisotropie pendant le vieillissement car son instauration ne dépend pas de la nuance (basse, moyenne ou haute perméabilité) mais plutôt des conditions de vieillissement. Cette énergie d'anisotropie serait trop faible par rapport à l'énergie d'anisotropie magnétoélastique prédominante $E_{\lambda\sigma}$ (induite lors du recuit sous traction) pour qu'elle soit détectable par les mesures à l'hystérésigraphe. La seule grandeur détectable qui montre des variations en fonction du vieillissement est fournie par les pertes P_{dyn} mesurées à 10 kHz/0.8 T (sin). Les évolutions de P_{dyn} ne dépendent pas de la température et ne sont pas monotones. La constance de la résistivité en fonction du vieillissement démontre que les pertes classiques (par courants de Foucault) ne contribuent

pas aux variations des pertes totales P_{dyn} . De même, les pertes statiques ne contribuent pas à cette variation car elles sont très faibles. Cependant, les variations de P_{dyn} sont dues seulement aux variations des pertes excédentaires P_{exc} en fonction du vieillissement. Autrement dit, ces variations sont liées à des changements au niveau des interactions entre la rotation des domaines magnétiques et les défauts. Par ailleurs, les mesures de microstructures (DRX, DSC, PTE) n'ont pas montré une formation d'une nouvelle phase liée à la formation de précipités ou d'autres types de défauts. Cependant la forte diminution des pertes P_{dyn} jusqu'à presque l'évanouissement des pertes P_{exc} serait peut être liée à l'homogénéisation des contraintes internes en termes d'orientations spatiales et d'amplitudes. Par contre, la forte augmentation des pertes P_{dyn} ne peut pas être expliquée par le même phénomène.

- **Les polycristallins FeCoV (AFK502)**

L'étude du vieillissement sur les polycristallins FeCoV avec la finition nue présentée dans le chapitre V montre que les propriétés magnétiques et mécaniques évoluent en fonction du vieillissement. La plupart des grandeurs magnétiques et mécaniques n'évoluent pas d'une manière monotone et n'ont pas atteint une stabilisation pour pouvoir donner des explications solides. Néanmoins une tentative d'explication est poursuivie en se basant sur les changements de microstructures. En effet, contrairement aux nanocristallins, les échantillons FeCoV présentent des variations notables de la microstructure en fonction du vieillissement notamment sur les mesures de PTE et DRX. La diminution du Pouvoir Thermo-Electrique PTE corrélée à la chute de la contrainte maximale R_m des nuances HLE nues montre que ces dernières subissent une mise en ordre à grande distance (variation du LRO) en fonction du vieillissement. Egalement, les variations des largeurs à mi-hauteurs des pics (200) des mesures DRX sont, dans la plupart des cas, en accord avec les variations de l'espacement d'interface d_s calculées à l'aide des variations du champ coercitif H_c en fonction du vieillissement. Cependant, les évolutions simultanées des propriétés magnétiques et mécaniques principalement celles de H_c et R_m sont dues aux variations simultanées de l'espacement d'interface d_s et du degré d'ordre à grande distance LRO.

Cette thèse constitue la première étude détaillée menée au sein du laboratoire Ampère sur le vieillissement des matériaux magnétiques. Elle ouvre un nouvel axe de recherche riche et prometteur en résultats. En perspectives, il serait intéressant d'explorer différentes voies.

- Dans le cas du vieillissement des nanocristallins haute perméabilité ($\mu 500000$), le calcul des distances interréticulaires des cristaux FeSi et les mesures de la magnétstriction de la phase amorphes λ_s^{FeSi} montrent une diminution de ces dernières en fonction du vieillissement. Cela irait dans le sens d'une migration du Silicium restant de la phase amorphe vers les nano-grains. Pour confirmer cette suspicion, des mesures à l'échelle nanométrique sont nécessaires notamment à l'aide d'un synchrotron afin d'évaluer avec précision la variation des distances interréticulaires en fonction du vieillissement.
- Il serait intéressant d'appliquer la même démarche de vieillissement sur des échantillons nanocristallins très haute perméabilité recuits sous champ longitudinal. La structure en domaines de ce type de nanocristallin est gérée par une énergie d'anisotropie macroscopique induite dans le sens longitudinal des rubans. De ce fait,

l'étude de l'évolution des énergies d'anisotropie mises en jeu en fonction du vieillissement permettrait de confirmer ou pas le fait que les dégradations magnétiques ne dépendent pas de la haute perméabilité mais plutôt du type de recuit que les échantillons ont subis.

- Une étude de vieillissement devrait être menée en considérant deux contraintes, une thermique et une électromagnétique. Cela permettrait de rendre compte du comportement du matériau au cours du temps dans ses conditions de travail ou d'utilisation, par exemple en mode transformateur pour les nanocristallins $\mu 500000$ (ou $\mu 30000$) et en mode hacheur pour les nanocristallins $\mu 200$.
- Afin d'appréhender correctement les phénomènes à l'origine des variations des grandeurs macroscopiques des échantillons FeCoV en fonction du vieillissement, de nouvelles mesures microscopiques seraient nécessaires, à savoir :
 - La microscopie optique haute définition qui permettrait une estimation précise de la fraction cristallisée ainsi que l'espacement d'interface d_s en fonction du vieillissement. Les références [3] et [5] du chapitre V donnent plus de précisions sur les expériences à mettre en œuvre,
 - La mesure du degré d'ordre à longue distance LRO en fonction du vieillissement pourrait être fait en utilisant la même technique utilisée dans les références [4] et [5] du chapitre V.
- Il serait aussi intéressant d'étudier l'influence des différentes finitions (Nues, Oxypée et Isolée par du Méthylate de Magnésium) sur le vieillissement thermique des échantillons FeCoV standards et HLE.
- Nous espérons avoir le temps de terminer les essais de vieillissement des échantillons Nanocristallins FeCuNbSiB et polycristallins FeCoV en effectuant les caractérisations magnétiques et électriques de leurs derniers points de vieillissement.
- Enfin, cette étude de vieillissement mériterait d'être concrétisée par l'élaboration de modèles phénoménologiques (multi-échelles) de vieillissement des matériaux magnétiques.