



HAL
open science

Comportement des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB lors du vieillissement sous contraintes thermique et électrique

Rania Saoudi

► **To cite this version:**

Rania Saoudi. Comportement des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB lors du vieillissement sous contraintes thermique et électrique. Energie électrique. Université Claude Bernard - Lyon I, 2023. Français. NNT : 2023LYO10132 . tel-04577698

HAL Id: tel-04577698

<https://theses.hal.science/tel-04577698v1>

Submitted on 16 May 2024

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.



**THESE de DOCTORAT DE
L'UNIVERSITE CLAUDE BERNARD LYON 1**

**École Doctorale N° 160
ELECTRONIQUE, ELECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE (EEA)**

Discipline : Génie électrique

Soutenue publiquement le 17/07/2023, par :
Rania SAOUDI

**Comportement des matériaux
magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB
lors du vieillissement sous contraintes
thermique et électrique**

Devant le jury composé de :

Mme LBOUC Afef, Directrice de Recherche, G2Elab Grenoble
M. BENABOU Abdelkader, Maître de conférences, Université de Lille
M. DANIEL Laurent, Professeur des Universités, Paris Saclay
M. JOUBERT Charles, Professeur des universités, UCBL 1
M. MOREL Laurent, Maître de conférences, UCBL 1
Mme RAULET Marie-Ange, Maître de conférences, UCBL 1
M. LEKDIM Atef, Ingénieur de recherche, LEM Tech, Lyon
M. WAECKERLE Thierry, Directeur R&D, APERAM, Imphy
M. DEMIER Alain, Ingénieur de recherche, APERAM, Imphy

Rapporteur
Rapporteur
Président, examinateur
Examineur
Directeur de thèse
Co-directrice de thèse
Invité
Invité
Invité

Remerciements

Je tiens à remercier les membres du jury, Madame Afef Lebouc, Monsieur Abdelkader Benabou, Monsieur Laurent Daniel et Monsieur Charles Joubert, pour avoir accepté d'évaluer mon travail.

A mes encadrants, Marie Ange Raullet et Laurent Morel, merci pour votre disponibilité et votre gentillesse. Grâce à vous, j'ai beaucoup évolué pendant ces quatre ans. Je souhaite exprimer ma gratitude à Atef Lekdim pour son suivi et sa contribution à ces travaux. Merci également à Thierry Waeckerlé pour avoir partagé sa connaissance.

Je tiens à remercier tous les membres du laboratoire Ampère, en particulier Omega, avec qui j'ai partagé de bons moments pendant ces quatre dernières années.

Un grand merci à ma famille, ma maman, et mon papa, j'ai commencé toute cette expérience pour et grâce à vous. Enfin, merci à toi mon cher Moh pour ton soutien pendant les moments difficiles de cette expérience.

Résumé

Titre : Comportement des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB lors du vieillissement sous contraintes thermique et électrique.

L'augmentation de l'efficacité énergétique des systèmes électriques et plus spécifiquement ceux intervenant dans les transports (automobile, ferroviaire ou aérien) passe par une conception très compactée afin de réduire les volumes et le poids. Cette compacité amène les matériaux magnétiques de nouveaux convertisseurs électriques à fonctionner dans un environnement sévère lié à de hautes températures et des fréquences élevées.

Cette thèse est consacrée à l'étude du comportement dans le temps (vieillissement) des matériaux nanocristallins FeCuNbSiB dédiés à la conception de transformateurs, d'inductances et de capteurs de courant. Différentes finitions de ces matériaux, fournis par la société APERAM Imphy sous forme de tores, sont étudiées. Dans un premier temps, les nanocristallins sont étudiés lors du vieillissement continu sous différentes températures. Plusieurs grandeurs macroscopiques magnétiques sont mesurées à chaque période de vieillissement. Afin d'expliquer le mécanisme du vieillissement, une analyse des énergies d'anisotropies est menée et complétée par des mesures à différentes échelles (locale, mésoscopique et microscopique). Dans un deuxième temps, les propriétés magnétiques des nanocristallins sont suivies durant un vieillissement thermique et sous une excitation magnétique alternative. Cette dernière est appliquée en utilisant des circuits électroniques conçus pour des capteurs de courant fluxgate fournis par la société LEM. Au final, l'impact du vieillissement magnétique des matériaux nanocristallins sur l'évolution des paramètres des capteurs est étudié.

Mots clés :

Matériaux nanocristallins ; Ferromagnétisme ; Conditions du recuit ; Energies d'anisotropies ; Vieillissement magnétique ; Caractérisations magnétiques ; Capteurs de courant fluxgate.

Abstract

Title: Magnetic behavior of FeCuNbSiB nanocrystalline materials during thermal and electrical aging.

In the context of increasing energy efficiency, electrical systems need to be designed in a very compact way in order to reduce their volume and weight, specifically in systems used in transportation (automotive, rail and airplanes). This compactness leads the magnetic materials of the new electrical converters to operate in severe environments (high temperatures and high frequencies).

This thesis focuses on the behavior over time (aging) of FeCuNbSiB nanocrystalline materials dedicated to the design of transformers, inductors and current sensors. Different grades of nanocrystalline materials were provided by our collaborator APERAM Imphy in the form of wound cores. At first, nanocrystalline materials are studied during continuous aging under different temperatures. In aim to monitor aging evolution, several macroscopic magnetic properties are measured at each aging period. In order to explain the aging mechanism, an analysis of the anisotropy energies is conducted, completed by measurements at different scales (local, mesoscopic and microscopic). Thereafter, the magnetic properties of nanocrystalline materials are monitored during their thermal aging under alternating excitation. The latter is applied using electronic circuits designed for fluxgate current sensors provided by LEM. Finally, the impact of magnetic aging of nanocrystals on the evolution of sensor parameters is studied.

Keywords: Nanocrystalline materials; Ferromagnetism; Annealing conditions; Anisotropic energy; Magnetic aging; Magnetic characterizations; fluxgate current sensors.

Table des matières

Résumé	4
Abstract.....	5
Table des matières	6
Introduction générale.....	10
Chapitre 1 : État de l'art	12
1.1 Introduction	12
1.2 Le magnétisme : de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique.....	12
1.2.1 Les énergies magnétostatique, d'échange et d'anisotropies.....	14
1.2.2 Propriétés magnétiques principales.....	19
1.3 Les matériaux magnétiques nanocristallins	20
1.3.1 Processus d'élaboration et de nanocristallisation.....	21
1.3.2 Énergies d'anisotropies dans les matériaux nanocristallins	23
1.3.3 Propriétés magnétiques des matériaux magnétiques nanocristallins.....	32
1.4 Applications des matériaux magnétiques nanocristallins.....	35
1.4.1 Les capteurs de courant fluxgate.....	36
1.5 Vieillessement des matériaux magnétiques.....	41
1.5.1 Vieillessement des matériaux magnétiques nanocristallins.....	42
1.6 Conclusions du chapitre.....	44
Chapitre 2 : Matériaux magnétiques et outils pour l'expérimentation	45
2.1 Introduction	45
2.2 Préparation des échantillons	46
2.2.1 Dispositifs thermiques.....	46
2.2.2 Recensement des tores magnétiques nanocristallins.....	47
2.2.3 Bobinage des tores magnétiques nanocristallins	50
2.3 Caractérisations magnétiques macroscopiques	51
2.3.1 Banc de caractérisations magnétiques en quasi statique	52

2.3.2	Incertitudes de mesure du banc de caractérisation magnétique	53
2.3.3	Désaimantation et la courbe de première aimantation des matériaux magnétiques nanocristallins.....	58
2.3.4	Caractérisations en dynamique.....	62
2.4	Bruit de Barkhausen (MBN).....	63
2.4.1	Principe de génération du bruit de Barkhausen.....	63
2.4.2	Utilisation du bruit de Barkhausen dans des applications.....	65
2.4.3	Technique de mesure du bruit de Barkhausen	66
2.5	Microscope Optique à Effet Kerr (MOKE).....	67
2.6	Conclusions du chapitre.....	69

Chapitre 3 : Évolution des propriétés magnétiques des matériaux nanocristallins lors du vieillissement thermique

3.1	Introduction	70
3.2	Vieillissement des matériaux nanocristallins au niveau macroscopique.....	71
3.2.1	Protocole du vieillissement	71
3.2.2	Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-Z.....	72
3.2.3	Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-F	75
3.2.4	Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-R	76
3.3	Evolution de la microstructure	77
3.3.1	Taille des grains et fraction cristallisée	77
3.3.2	Contrainte interne.....	81
3.3.3	Oxydation.....	81
3.3.4	Bruit de Barkhausen.....	82
3.4	Rôle des énergies d'anisotropies dans le vieillissement.....	86
3.4.1	Evolution de l'énergie d'anisotropie magnétoélastique	89
3.4.2	Evolution des anisotropies aléatoires et d'anisotropie induite uniforme	90
3.4.3	Corrélation entre les énergies d'anisotropie et les propriétés magnétiques macroscopiques	101
3.4.4	Vieillissement sous excitation continue (saturation).....	103
3.5	Étude des matériaux nanocristallins en fonction de la température de mesure	109
3.5.1	Protocole d'essai	109

3.5.2	Comportement magnétique des matériaux nanocristallins non vieillis en fonction de la température de mesure.....	110
3.5.3	Comportement magnétique des matériaux nanocristallins type-Z vieillis en fonction de la température de mesure.....	111
3.6	Etude du nouveau recuit des matériaux nanocristallins.....	113
3.6.1	Protocole de vieillissement.....	113
3.6.2	Etat magnétique initial	114
3.6.3	Evolution des PM des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement.....	115
3.6.4	Evolution des PM des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement.....	117
3.7	Conclusions du chapitre.....	119
Chapitre 4 : Vieillissement des nanocristallins sous excitation variable et impacts sur le fonctionnement des capteurs de courant		
4.1	Introduction	121
4.2	Protocole de vieillissement.....	121
4.2.1	Caractérisations en quasi-statique	122
4.2.2	Caractérisations en dynamique.....	123
4.3	Evolution des PM lors du vieillissement sous excitation	124
4.3.1	Matériaux magnétique nanocristallins type-Z.....	124
4.3.2	Matériaux magnétiques nanocristallins type-R	127
4.4	Rôle des énergies d'anisotropie dans le vieillissement	131
4.4.1	Nanocristallins type-Z : Amélioration de l'anisotropie uniforme.....	131
4.4.2	Nanocristallins type-R : Création de l'anisotropie uniforme	134
4.5	Evolution des propriétés électriques du capteur (A) lors du vieillissement des matériaux nanocristallins.....	137
4.5.1	Evolution de la fréquence d'excitation.....	138
4.5.2	Evolution de la précision du capteur (A) en fonction du vieillissement	141
4.6	Conclusions du chapitre.....	146
Conclusion générale et perspective		147
Bibliographie		151

Annexes	159
A. Evolution des PM des nanocristallins lors du vieillissement sous excitation du capteur (B).....	159
B. Evolution des PM des nanocristallins lors du vieillissement sous excitation du capteur (C).....	162

Introduction générale

Le sujet de cette thèse est au cœur de la problématique liée aux contraintes sévères dues à un accroissement de l'efficacité énergétique. Dans ce contexte, les matériaux magnétiques, point clef de la conversion d'énergie, sont amenés à travailler dans des conditions sévères de hautes températures, de contraintes mécaniques (vibrations et enrobage) et de fréquences élevées. Par ailleurs, il est nécessaire d'étudier l'impact de ces conditions de fonctionnement afin de connaître le comportement magnétique de ces matériaux à long terme et de comprendre les mécanismes sous-jacents de leur vieillissement.

Cette thèse s'intéresse particulièrement au vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins à base de Fer-Silicium dédiés à la conception d'inductances et de transformateurs de différents convertisseurs statiques. Les échantillons de matériaux nanocristallins étudiés du nom commercial Nanophy®, sont fournis sous plusieurs finitions par la société APERAM Imphy. Nous étudions dans un premier temps le vieillissement sous la seule contrainte en température. Par la suite, les nanocristallins sont étudiés lors du vieillissement sous les deux contraintes en température et électrique sachant que cette dernière sous la forme d'une excitation alternative est assurée par les circuits électroniques des capteurs de courant fluxgate fournis par la société LEM. Dans ce cas, le matériau est étudié dans un contexte proche de celui de son fonctionnement dans une application réelle.

Le suivi du vieillissement se base principalement sur des caractérisations magnétiques macroscopiques qui sont effectuées selon des protocoles prédéfinis. D'autres essais sont faits à des échelles différentes (locale, mésoscopique, microscopique) afin de comprendre les mécanismes de vieillissement des matériaux nanocristallins. Ces essais supplémentaires ont ouvert des collaborations avec d'autres laboratoires, le Laboratoire de Génie Electrique et Ferroélectricité (LGEF) de l'INSA de Lyon pour des mesures du bruit de Barkhausen, le Leibniz Institute for Solid State and Materials Research (IFW) en Allemagne et le CzechNanoLab Research Infrastructure en Tchéquie pour des mesures basées sur l'effet Kerr.

Ce manuscrit est organisé sous forme de quatre chapitres. Le chapitre 1 est consacré à des généralités sur le magnétisme et les matériaux magnétiques. Puis nous présentons en particulier les matériaux magnétiques nanocristallins et le rôle des énergies d'anisotropies sur leurs propriétés magnétiques. Ensuite, nous présentons les différentes applications utilisant des matériaux

nanocristallins et plus spécifiquement celles liées aux capteurs de courant fluxgate. Le premier chapitre est clôturé par une bibliographie sur le vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins.

Le chapitre 2 présente les dispositifs expérimentaux utilisés pour les différentes caractérisations magnétiques ainsi qu'une étude sur les incertitudes de mesure du banc de caractérisation statique. En dernier lieu, nous présentons les matériaux de différentes finitions étudiés ainsi que le recensement des échantillons.

Le chapitre 3 présente les résultats du vieillissement sous plusieurs températures des différentes finitions de matériaux nanocristallins. L'interprétation de l'évolution des propriétés magnétiques macroscopiques est faite grâce à l'analyse des énergies d'anisotropie en fonction du vieillissement. Cette étude s'appuie sur différentes mesures, de microstructures (à l'échelle microscopique), du bruit de Barkhausen (mesure locale), de domaines magnétiques basés sur l'effet Kerr (échelle mésoscopique) et enfin sur des essais du vieillissement sous une excitation continue. Enfin, l'influence de la température de mesure sur le comportement magnétique des matériaux nanocristallins est étudiée pour les différents intervalles de temps de vieillissement.

Le dernier chapitre présente le comportement des matériaux nanocristallins lors du vieillissement sous les deux contraintes en température et avec une excitation électrique sous une forme alternative assurée par l'électronique des capteurs de courant fluxgate. L'évolution des propriétés magnétiques, statiques et dynamiques, lors du vieillissement sous les deux contraintes est présentée. Par la suite, nous étudions l'impact du vieillissement magnétique sur l'évolution des paramètres électriques globaux des capteurs de courant notamment l'offset et l'erreur du gain.

Les principaux objectifs de ce travail sont :

- De comprendre le mécanisme du vieillissement des matériaux nanocristallins, cela permettrait par la suite de donner des pistes aux fabricants de matériaux pour améliorer les processus d'élaboration et ainsi de garantir une meilleure stabilité dans le temps des matériaux élaborés.
- De fournir le maximum de données possibles sur le vieillissement sous différentes conditions, cela permettrait par la suite, de développer des modèles phénoménologiques afin de prédire le comportement magnétique.

Le manuscrit est clôturé par une conclusion générale ainsi que des perspectives.

Chapitre 1 : État de l'art

1.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous dressons un état de l'art concernant les matériaux magnétiques nanocristallins dans un contexte général. Nous commençons par des notions de base sur le magnétisme, des généralités sur les matériaux ferromagnétiques. Ensuite nous présentons une recherche bibliographique sur la physique et l'élaboration des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB, les énergies d'anisotropies qui gèrent leurs processus d'aimantation ainsi que leurs propriétés magnétiques.

Ensuite nous présentons brièvement une des applications des matériaux nanocristallins à travers le capteur de courant fluxgate. Rappelons que ce dernier est utilisé dans notre étude du vieillissement des nanocristallins sous excitation alternative (chapitre 4). Le principe de cette technologie est expliqué ainsi que ses avantages et inconvénients.

Finalement, nous nous intéressons à l'état de l'art sur le vieillissement magnétique en présentant des travaux sur le vieillissement des différents types de matériaux magnétiques doux et plus particulièrement des matériaux nanocristallins.

1.2 Le magnétisme : de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique

Le magnétisme est un phénomène physique très complexe dans lequel des atomes exercent des forces attractives ou répulsives sur d'autres atomes. On dit qu'ils se polarisent magnétiquement. Afin de comprendre cette propriété et comment certains éléments chimiques peuvent posséder cette faculté si particulière, il faut tout d'abord s'intéresser au magnétisme à l'échelle atomique.

Les propriétés magnétiques d'un matériau sont attribuées au moment magnétique atomique (Figure 1-1) qui provient de :

- La contribution du moment magnétique de spin dans chaque électron.
- La contribution du moment orbital dû à la rotation des électrons autour du noyau.

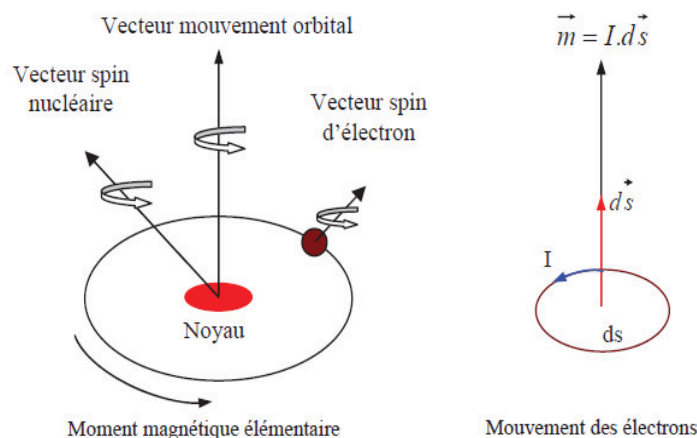


Figure 1-1 Structure atomique [1].

Selon l'interaction de moments magnétiques atomiques entre eux [2], [3], il existe plusieurs comportements magnétiques différents présentés dans la Figure 1-2.

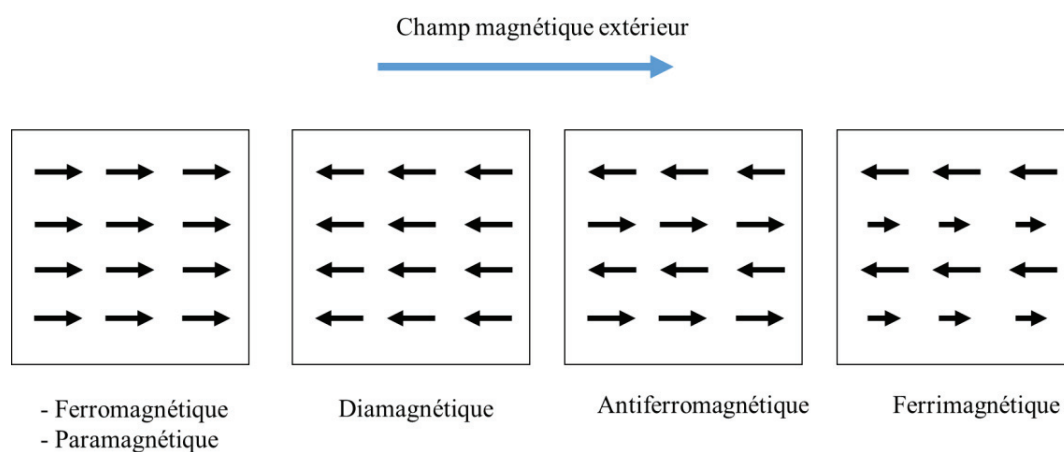


Figure 1-2 Orientation des moments magnétiques dans les principales familles de matériaux magnétiques.

Les matériaux **ferromagnétiques** sont des matériaux qui possèdent la capacité à s'aimanter très fortement sous l'action d'un champ magnétique extérieur (orientation de tous les moments magnétiques vers le même sens) et garder une certaine aimantation contrairement aux matériaux **paramagnétiques** qui ne conservent pas leur aimantation à champ extérieur nul.

Dans les matériaux **antiferromagnétiques**, l'interaction d'échange entre les atomes voisins conduit à un alignement antiparallèle des moments magnétiques atomiques, par conséquent, l'aimantation totale du matériau est alors nulle.

Le **ferrimagnétisme** est une autre propriété magnétique de certains matériaux, les moments magnétiques sont antiparallèles mais d'amplitudes différentes. Dans ce cas, le moment magnétique résultant n'est pas nul.

Et finalement, on parle du **diamagnétisme** quand, dans un matériau soumis à un champ extérieur, tous les moments s'orientent dans l'autre sens afin de générer un autre champ magnétique opposé. Comme les matériaux paramagnétiques, lorsque le champ n'est plus appliqué, l'aimantation dans les matériaux diamagnétiques disparaît.

Le diamagnétisme est un phénomène qui apparaît dans toute la matière atomique, mais il est masqué par les effets du paramagnétisme ou du ferromagnétisme lorsque ceux-ci coexistent avec lui dans le matériau.

1.2.1 Les énergies magnétostatique, d'échange et d'anisotropies

Dans un matériau magnétique, le processus d'aimantation est géré par une compétition entre l'énergie magnétostatique, l'énergie d'échange et les diverses sources d'énergies d'anisotropie dont les énergies magnétocristalline, magnétoélastique et induite.

1.2.1.1 Énergie d'échange

L'énergie d'échange résulte de la mise en commun partielle des trajectoires d'un électron périphérique entre deux atomes voisins (Figure 1-3 Mouvement de l'électron en commun de deux atomes adjacents (à droite), alignement des moments magnétiques (à gauche) [1]). Heisenberg a montré que cette énergie joue un rôle fondamental dans le comportement des matériaux ferromagnétiques, notamment l'alignement des moments magnétiques microscopiques de chaque atome. L'énergie d'échange entre deux atomes adjacents du même spin S est définie par le modèle (1.1) [4] :

$$E_{ex} = -2. A \cos\left(\frac{d\phi}{dx}\right) \quad (1.1)$$

Avec A constante d'échange et $\left(\frac{d\phi}{dx}\right)$ représente la vitesse à laquelle la direction de l'aimantation locale tourne avec la position ϕ dans la paroi.

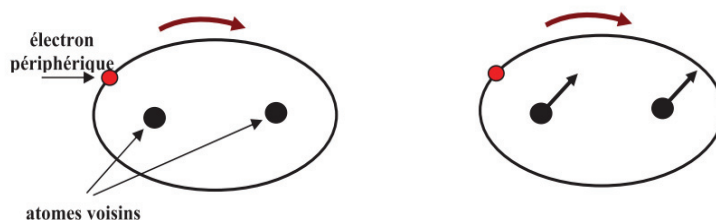


Figure 1-3 Mouvement de l'électron en commun de deux atomes adjacents (à droite), alignement des moments magnétiques (à gauche) [1].

1.2.1.2 Énergie magnétostatique

Chaque moment magnétique est soumis à un champ local créé par l'ensemble des autres moments magnétiques. L'énergie magnétostatique est liée au champ interne démagnétisant H_d qui tend à minimiser le parcours des lignes de champ dans l'espace (Figure 1-4).

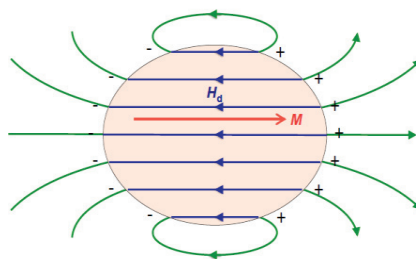


Figure 1-4 Illustration du champ démagnétisant dans les matériaux magnétiques [5].

L'énergie magnétostatique dans un volume V est définie par la formule suivante [4] :

$$E_{ms} = \frac{\mu_0}{2} \cdot \int_0^V H_d^2 \cdot dV \quad (1.2)$$

1.2.1.3 Énergie d'anisotropie magnétocristalline

Lorsqu'un champ magnétique est appliqué sur un échantillon ferromagnétique, les différentes orientations possibles d'aimantation ne sont pas équivalentes. En effet, il existe des directions privilégiées d'aimantation (directions de facile aimantation) et des directions dites difficile aimantation. On définit l'anisotropie magnétocristalline par l'énergie qui permet la rotation des moments magnétiques hors de la direction de facile aimantation. Par conséquent, par unité de volume, elle est définie par la formule (1.3)[6] :

$$E_{K1} = K_1 \cdot \sin^2 \varphi \quad (1.3)$$

Avec φ : l'angle entre l'aimantation spontanée et l'axe de facile aimantation. K_1 : est la constante d'anisotropie magnétocristalline. Cette énergie d'anisotropie est nulle quand $\varphi = 0^\circ$ ou 180° . Dans le cas où $\varphi = 90^\circ$, l'aimantation favorise une forte anisotropie pour saturer le matériau selon un axe de difficile aimantation.

Selon la structure du cristal, les distances inter-atomes sont différentes et dépendent de leurs positions relatives dans le réseau cristallin. Par exemple, le fer, le cobalt et le nickel cristallisent respectivement dans les systèmes cubiques centrés, cubiques faces centrées et hexagonaux (Figure 1-5).

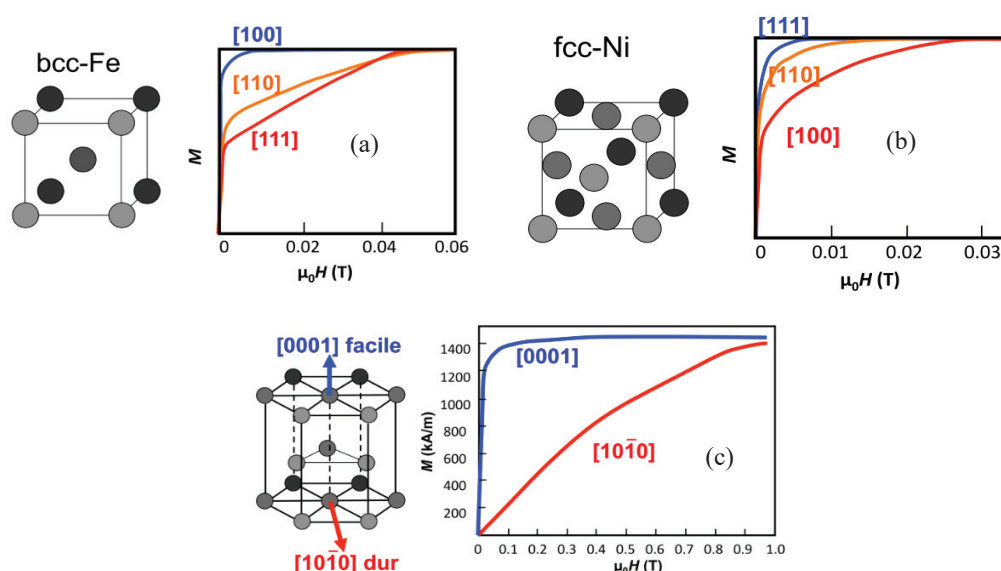


Figure 1-5 Les différentes symétries du cristal, (a) : cubique centrée, (b) : cubique faces centrées, (c) : hexagonale [5].

L'énergie d'anisotropie est dite multiaxiale quand plusieurs directions de facile aimantation existent, dans ce cas, elle est définie par les cosinus α_i liés aux directions cristallographiques [7] :

$$E_{K1} = K_1 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \alpha_3^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2) \quad (1.4)$$

La constante K_1 dépend fortement de la composition chimique et de l'ordre des atomes à courte distance. De plus, l'amplitude de K_1 détermine la nature du matériau magnétique : dur ou doux.

Selon la théorie de Weiss, un échantillon ferromagnétique se subdivise spontanément en plusieurs domaines magnétiques afin de minimiser son énergie globale. Chaque domaine est aimanté à

saturation dans une direction différente de celle des domaines voisins, si bien que l'aimantation résultante du matériau peut être nulle. Une zone de transition appelée paroi de Bloch, sépare deux domaines voisins. A l'intérieur de la paroi, l'aimantation tourne graduellement de la direction facile du premier domaine vers celle du deuxième domaine (Figure 1-6). L'épaisseur d'une paroi résulte de la compétition entre l'énergie d'échange (constante d'échange A) qui tend à l'augmenter et l'énergie magnétocristalline (constante d'anisotropie K_1) qui tend à la diminuer.

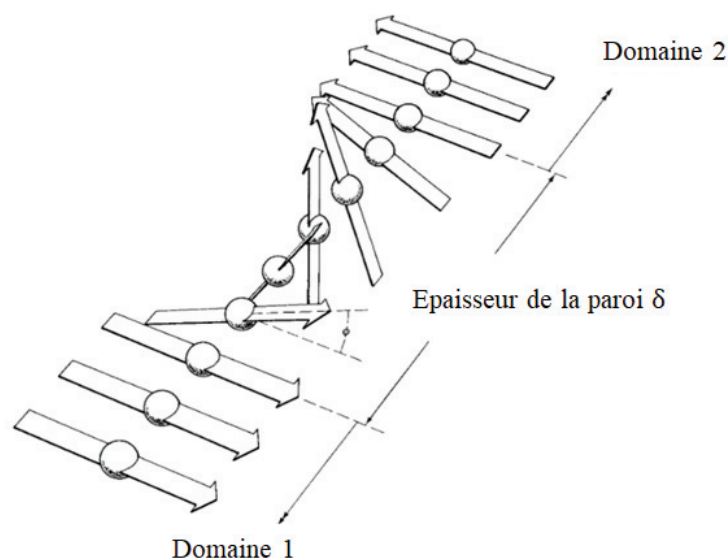


Figure 1-6 Rotation des moments magnétiques dans une paroi de Bloch [4].

L'épaisseur δ et l'énergie E_δ par unité de surface de la paroi sont données par les formules (1.5) et (1.6) respectivement [2] :

$$\delta = \pi \sqrt{\frac{A}{K_1}} \quad (1.5)$$

$$E_\delta = 2\pi\sqrt{A \cdot K_1} \quad (1.6)$$

1.2.1.4 Énergie d'anisotropie magnétoélastique à saturation

Lorsqu'un matériau ferromagnétique est amené de l'état désaimanté à l'état saturé dans une direction considérée, l'échantillon subit un changement de longueur le long de la nouvelle direction d'aimantation. Ce phénomène est appelé la magnétostriction directe et cette déformation

(changement de longueur) est proportionnelle à la constante de magnétostriction à saturation λ_s du matériau.

L'exemple classique qui met en évidence le phénomène de magnétostriction directe est le son audible que les transformateurs émettent lors du fonctionnement en hautes fréquences. En effet, à cause de la constante λ_s des tôles magnétiques, ces dernières se déforment et se frottent entre elles. Plus la fréquence augmente plus la vitesse des frottements augmente [8].

Dans le sens inverse, si le matériau est soumis à une contrainte mécanique, une anisotropie magnétique apparaît et modifie les propriétés magnétiques. C'est ce qu'on appelle l'énergie d'anisotropie magnétoélastique. Par unité de volume, elle est donnée par la formule (1.7)[9] :

$$E_{\lambda\sigma} = K_{\lambda\sigma} \cdot \sin^2\varphi \quad (1.7)$$

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 définie par la formule :

$$K_{\lambda\sigma} = -\frac{3}{2} \cdot \lambda_s \cdot \sigma \quad (1.8)$$

Avec σ la contrainte appliquée sur l'échantillon.

1.2.1.5 Énergie d'anisotropie induite

En ce qui concerne l'obtention d'une anisotropie induite par un champ magnétique, Néel a expliqué que chaque paire d'atomes mise en ordre par le champ contribue à une énergie dipolaire [10]. Cette énergie est obtenue en appliquant un recuit sous champ magnétique à une température en dessous de la température de Curie, cela engendre une énergie d'anisotropie induite uniforme notée E_{Ku} avec un axe de facile aimantation qui est conservé après refroidissement. Par unité de volume, cette énergie s'écrit par la formule suivante [8], [11], [12] :

$$E_{Ku} = K_u \cdot \sin^2\varphi \quad (1.9)$$

Où φ est l'angle entre l'aimantation et la direction du champ magnétique appliqué durant le recuit.

K_u représente l'amplitude de l'anisotropie induite par le recuit.

Au niveau mésoscopique, cela se traduit par de gros domaines de Weiss dont l'aimantation locale est alignée suivant la direction du champ appliqué.

1.2.2 Propriétés magnétiques principales

En appliquant un champ magnétique H sur un matériau ferromagnétique qui n'a jamais été aimanté (ou bien complètement désaimanté), les parois de Bloch et l'aimantation locale dans chaque domaine évoluent progressivement en suivant l'allure en pointillé sur la Figure 1-7 jusqu'à la formation d'un seul domaine magnétique dont l'induction suit la direction du champ appliqué, appelée induction à saturation B_s (point "6" sur la courbe). Lorsque le champ H est réduit à zéro, la réponse du matériau ne suit pas la même trajectoire (effet hystérésis), en effet, elle se déplace du point "1" au point "2". À ce stade, on peut voir qu'une aimantation reste dans le matériau même si le champ H est nul. Ceci est appelé le point de rémanence B_r ou « aimantation résiduelle » dans le matériau (Point 2 sur la courbe). Le champ nécessaire pour annuler cette aimantation résiduelle est appelé le champ coercitif H_c (Point 3 sur la courbe).

Lorsque le champ augmente à nouveau en partant du point "4", la réponse du matériau suit la même trajectoire en symétrie (du point 4 vers 1 en passant par 5 et 6).

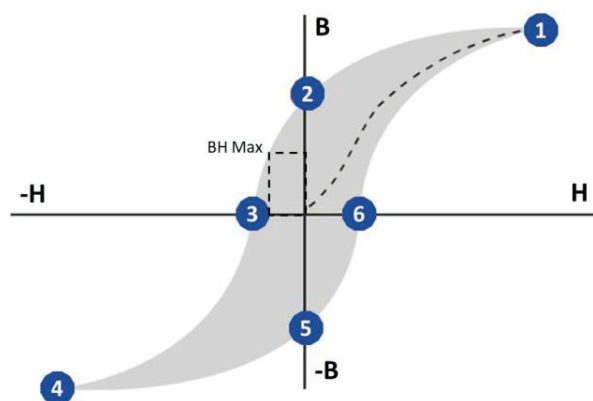


Figure 1-7 Cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique.

Le cycle d'hystérésis B-H représente la signature magnétique macroscopique d'un matériau ferromagnétique caractérisée principalement par :

-
- **Le champ coercitif** : Il se traduit par la force nécessaire pour déplacer les parois face aux obstacles (défauts, dislocations...etc) lors du processus de magnétisation à fréquence faible. Le champ coercitif est mesuré en ampère par mètre (A/m) à $B=0$ T.
 - **La perméabilité magnétique** : Elle caractérise la faculté d'un matériau à modifier les lignes de champ, autrement dit, elle décrit le lien entre la magnétisation dans le matériau et le champ appliqué. Elle est mesurée en henry par mètre, (H/m).
 - **Induction à saturation** : Elle indique le niveau maximal d'induction en tesla (T) dans le matériau qu'on peut atteindre, dans ce cas tous les domaines sont orientés selon la direction du champ extérieur.
 - **Rémanence** : c'est la capacité d'un matériau à conserver une certaine induction résiduelle lorsque le champ d'excitation extérieur est supprimé.

1.3 Les matériaux magnétiques nanocristallins

Les alliages nanocristallins ont été découverts en 1988 [13] par Yoshisawa et son équipe à Hitachi Metals. La découverte des matériaux magnétiques nanocristallins a permis une grande avancée dans le domaine de l'électronique de puissance et plus particulièrement pour des applications à moyennes et hautes fréquences grâce à leurs performances intéressantes. Ces matériaux possèdent une induction à saturation relativement élevée, des pertes magnétiques faibles, une magnétostriction avoisinant zéro, une bonne stabilité en température par rapport à leurs concurrents les ferrites et finalement une perméabilité relative réglable. Ces propriétés sont obtenues en optimisant la composition chimique et le traitement thermique appliqué avec ou sans contrainte magnétique ou mécanique.

En ce qui concerne la composition chimique, il existe plusieurs familles d'alliages de nanocristallins [14] :

- Fe (Au, Cu) M(Si) B (Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta, Mo, W) : ils se composent d'une phase FeSi (bcc), d'une phase amorphe résiduelle et d'une phase FeCu ou d'une phase FeAu.
- FeMB (M : Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta, Mo, W) : ils se composent d'une phase Fe (bcc) et d'une phase amorphe résiduelle.

- FeM (C, N) (M : Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta, Mo, W) : ils se composent d'une phase de Fe (bcc), d'un carbure dispersé de la taille du nanomètre.

Nous nous intéressons à la première famille d'alliage de nanocristallins élaborée par les chercheurs de Hitachi Metals, de composition $Fe_{73,5}Cu_1Nb_3Si_{22,5-x}B_x$, appelée Finemet®.

1.3.1 Processus d'élaboration et de nanocristallisation

L'élaboration des matériaux magnétiques nanocristallins est faite en deux étapes. La première étape consiste à fabriquer des rubans amorphes par la technique de trempe sur roue (Figure 1-8 Processus d'élaboration des rubans amorphes avec la technique de trempe sur roue[16].), où le métal liquide est projeté à travers une buse sur un substrat en rotation rapide qui permet d'obtenir un ruban d'épaisseur très faible (22 μm). Notons que le mode d'élaboration par trempe conduit à un état de contraintes internes important, la relaxation de ces contraintes est faite par un recuit conduit à une température de l'ordre de 400°C suffisamment faible pour ne pas entraîner une cristallisation de l'alliage[15][6].

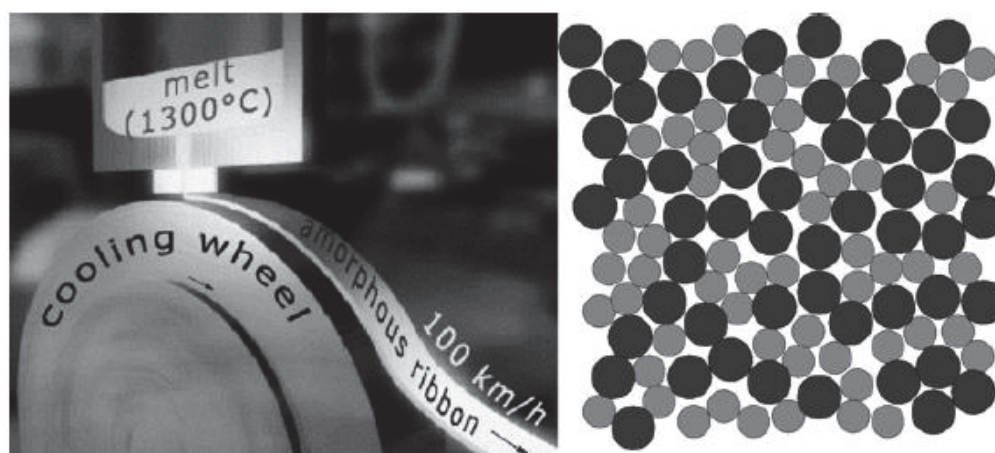


Figure 1-8 Processus d'élaboration des rubans amorphes avec la technique de trempe sur roue[16].

Les rubans d'amorphe sont par la suite enroulés sous formes de tores afin de subir la deuxième étape de cristallisation partielle par un recuit à une température (500-600°C). Au final, l'alliage obtenu possède une structure mixte de nanograins de taille 10-15 nm entourés par une phase amorphe (Figure 1-9).

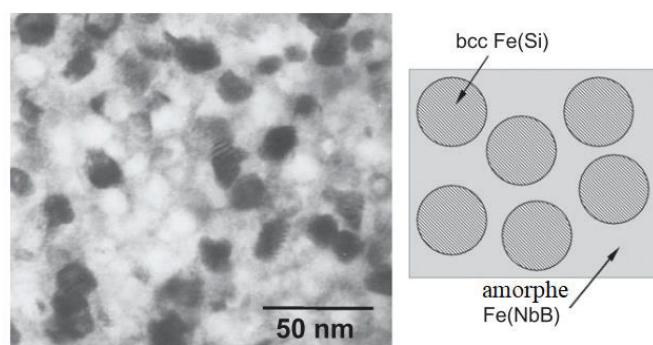


Figure 1-9 Image prise par TEM (à droite), représentation des deux phases de la structure des alliages nanocristallins FeCuNbSiB (à gauche)[17].

Les alliages FeCuNbSiB doivent leur nanocristallisation à l'addition du cuivre qui est non miscible dans le fer, cela permet de former des clusters qui engendrent à leur tour des surconcentrations locales de FeSi enclenchant ainsi la nucléation de cristaux. Le cuivre produit une nanostructure homogène qui doit être contrôlée en taille, c'est le rôle du niobium qui vient empêcher la croissance des grains et la formation des borures de fer.

La cinétique et l'état de la cristallisation du matériau (la taille des grains, la teneur des grains en silicium et la fraction cristallisée) sont liés au temps et à la température appliqués pendant le recuit (Figure 1-10).

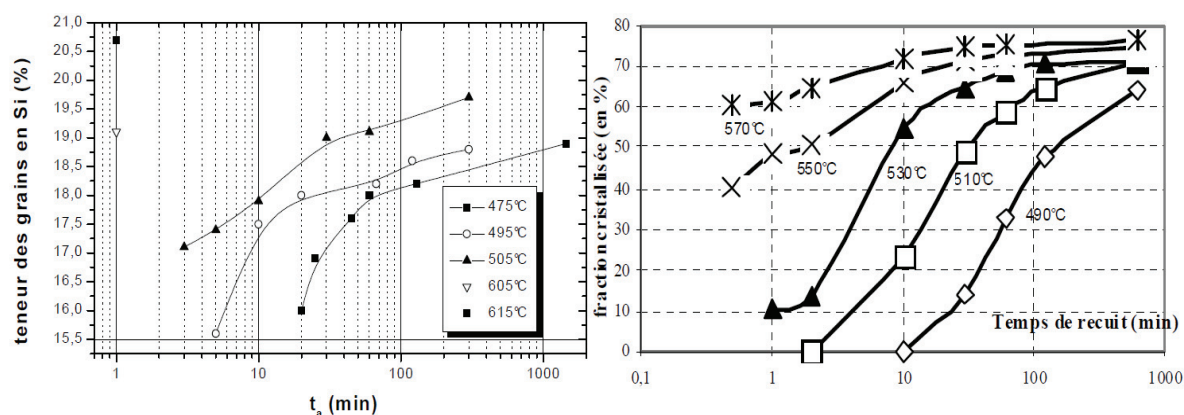


Figure 1-10 Evolution de la fraction cristallisée (à droite) et la cinétique de la concentration atomique en Si des grains (à gauche) en fonction du temps de recuit [18].

Le contrôle de l'état de cristallisation pendant la phase de fabrication est très important car il influence fortement les propriétés magnétiques du matériau. La Figure 1-11 à gauche montre qu'un champ coercitif < 1 A/m ainsi que des perméabilités initiales importantes peuvent être atteints pendant la phase de la nanocristallisation. D'autre part, la petite taille des grains joue un rôle important pour atteindre ces performances (Figure 1-11 à droite), cependant, cela est limité en particulier à des compositions proches de la composition Finemet®.

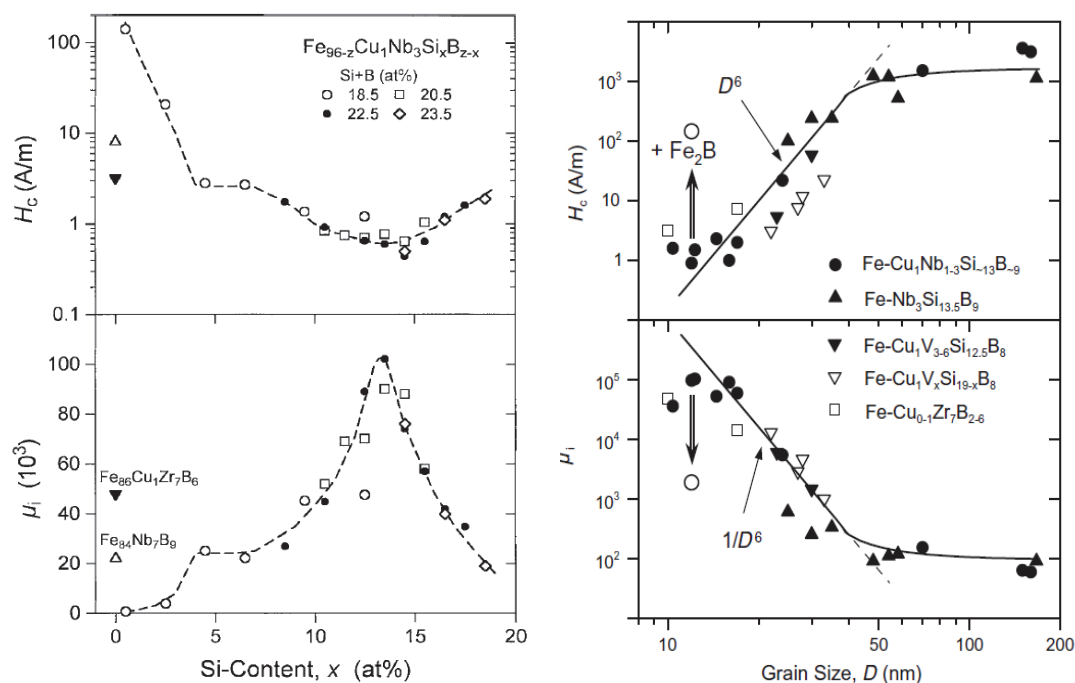


Figure 1-11 Évolutions du champ coercitif et de la perméabilité initiale des alliages FeCuNbSiB recuits pendant 1 h à 540°C en fonction de la teneur en silicium (à gauche) et en fonction de la taille des grains (à droite)[19].

Le facteur clé pour comprendre la relation entre les propriétés microstructurales et les propriétés magnétiques, est la compréhension des anisotropies magnétiques. Ces anisotropies vont donc modifier les propriétés magnétiques macroscopiques. Pendant le traitement thermique les anisotropies, induite et magnéto élastique, vont pouvoir être modifiées par un recuit sous champ magnétique ou recuit sous contrainte mécanique. Elles vont jouer un rôle en redressant ou en couchant le cycle d'hystérésis. Nous allons détailler ces processus dans les paragraphes suivants.

1.3.2 Énergies d'anisotropies dans les matériaux nanocristallins

1.3.2.1 Energie d'anisotropie magnéto cristalline aléatoire : Modèle d'Herzer

La constante d'anisotropie magnéto cristalline K_1 est reliée à la symétrie du cristal. Pour les nanocristaux cubiques centrés Fe-Si dans les alliages Finemet®, $K_1 \approx 8 \text{ kJ/m}^3$ (20 % at.Si). Cette valeur est beaucoup trop forte pour expliquer les faibles valeurs du champ coercitif (1 A/m) et les hautes valeurs de la perméabilité.

En réalité, la contribution de l'anisotropie magnéto cristalline est réduite grâce à la taille des grains qui est suffisamment petite devant la longueur d'échange L_0 :

$$L_0 = \sqrt{\frac{A}{K_1}} \quad (1.10)$$

Avec A la constante d'échange. L_0 représente la longueur minimale sur laquelle la direction des moments magnétiques peut varier de manière appréciable et, elle détermine l'ordre de la largeur de la paroi du domaine.

Herzer explique en 1990 [20], du fait que les nanocristallins présentent une taille moyenne des grains (10-15 nm) très petite par rapport à la longueur d'échange ($\sim 2 \mu\text{m}$), l'aimantation n'est pas gérée par l'énergie magnéto cristalline locale K_1 de chaque grain, mais plutôt par la moyenne de cette énergie sur plusieurs unités structurales (plusieurs grains). Les grains contenus dans ce volume sont considérés couplés par l'interaction d'échange magnétique et chaque cristallite a un axe d'anisotropie orienté aléatoirement. La constante d'anisotropie globale de ce volume est la moyenne sur tous les N grains ($N = f_x \cdot (L_{\text{ex}} / D)^3$) compris dans le volume de corrélation ferromagnétique ($V = L_{\text{ex}}^3$) déterminé par la longueur d'échange notée (L_{ex}) [17], [20], [21] dans les nanocristallins :

$$\langle K_1 \rangle = f_x \cdot K_1 / \sqrt{N} = \sqrt{f_x} \cdot K_1 \cdot (D/L_{\text{ex}})^{\frac{3}{2}} \quad (1.11)$$

Avec : f_x la fraction cristallisée et D la taille des grains.

Comme les anisotropies magnétocristallines locales sont moyennées de cette façon, l'échelle à laquelle l'interaction d'échange s'étend en même temps, par ailleurs, la longueur d'échange L_{ex} , doit être renormalisée en remplaçant K_1 par $\langle K_1 \rangle$ dans l'équation (1.10) :

$$L_{\text{ex}} = \sqrt{\frac{A}{\langle K_1 \rangle}} \quad (1.12)$$

En remplaçant l'équation (1.12) dans l'équation (1.11), nous obtenons la constante d'anisotropie aléatoire :

$$\langle K_1 \rangle = f_x^2 \cdot \frac{K_1^4 \cdot D^6}{A^3} \quad (1.13)$$

Le modèle d'Herzer appelé aussi modèle de l'anisotropie aléatoire (Figure 1-12) est très intéressant à titre comportemental et qualitatif. On suppose que les contraintes d'élaboration sont bien relaxées et les contraintes internes sont négligées.

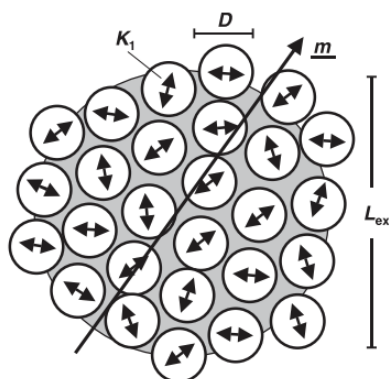


Figure 1-12 Représentation schématique du modèle d'anisotropie aléatoire des grains cristallins. Les flèches doubles indiquent la fluctuation aléatoire de l'axe d'anisotropie[22].

1.3.2.2 Énergie d'anisotropie magnétoélastique

Le comportement de la magnétostriction à saturation est expliqué par l'équilibre entre les deux phases structurales présentes dans l'état nanocristallin :

$$\lambda_s \approx f_x \lambda_s^{\text{FeSi}} + (1 - f_x) \lambda_s^{\text{am}} \quad (1.14)$$

Où λ_s^{FeSi} et λ_s^{am} sont les constantes de magnétostrictions locales de la phase cristalline Fe-Si et de la phase amorphe résiduelle respectivement.

La Figure 1-13 montre que la magnétostriction décroît avec le temps de recuit pour tendre vers une valeur proche de 0 voire négative (selon la composition) lorsque le système atteint la fraction cristallisée maximale 70 à 80% selon la composition.

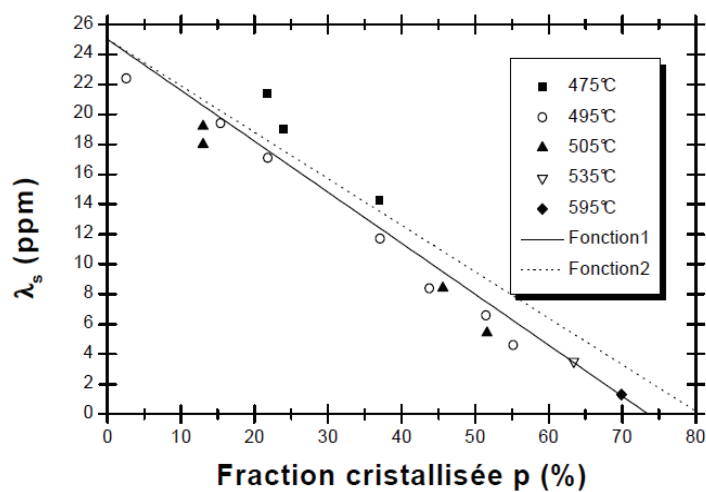


Figure 1-13 Évolution de la constante de magnétostriction à saturation des alliages FeCuNbSiB en fonction de la fraction cristallisée [18].

En effet, une valeur de magnétostriction autour de zéro nécessite une grande fraction cristalline avec magnétostriction négative afin de compenser la valeur positive élevée de la matrice amorphe à base de Fe. Ceci est obtenu par une teneur élevée en Si (15 %) dans les grains b.c.c (Figure 1-14).

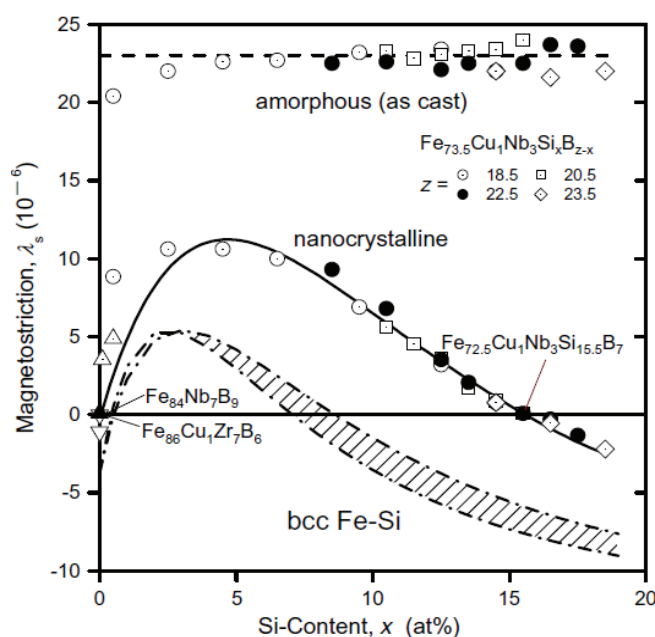


Figure 1-14 Évolution de la constante de magnétostriction à saturation des alliages FeCuNbSiB en fonction de la teneur en silicium à l'état amorphe et à l'état nanocristallin [17].

1.3.2.3 Énergie d'anisotropie induite uniforme

Grâce aux énergies d'anisotropies induites transverse ou longitudinale appliquées au travers d'un recuit sous champ adéquat, on peut régler la forme du cycle d'hystérésis. Selon le type de recuit sous champ magnétique, une énergie d'anisotropie domine sur les autres énergies et impose une forme particulière au cycle d'hystérésis. L'origine des anisotropies induites est attribuée au modèle de Néel [10] « atom pair ordering model » élaboré au départ pour les alliages cristallins [23] mais adapté par la suite aux nanocristallins par Hoffman [24].

a. Origine des anisotropies induites « Atom pair ordering model »

Dans une solution solide ferromagnétique à deux éléments A et B, les proportions relatives des liaisons A-A, A-B, B-B dépendent de leur angle par rapport à l'aimantation locale spontanée. Si la

température est assez élevée pour que les atomes changent de position, une paire d'atomes (par exemple A-A) forme une proportion de liaisons plus grande que les autres liaisons, une anisotropie uniaxiale selon l'axe d'aimantation spontanée va se créer.

L'anisotropie induite est conservée et est insensible à l'aimantation locale spontanée vu la basse température où la diffusion est impossible. Avec la présence d'un champ magnétique extérieur, les paires atomiques se positionnent dans la même direction du champ de recuit en imposant une direction à l'anisotropie induite.

Dans les nanocristallins, la structure d'orientation est basée sur l'ordre des paires d'atomes Fe-Si dans la phase cristalline. De ce fait, Herzer [25], [26] a proposé un modèle en assumant que la contribution de la phase amorphe est négligeable :

$$K_u \approx f_x K_u^{\text{FeSi}} \quad (1.15)$$

Où K_u^{FeSi} est la constante d'anisotropie induite locale dans les nanograins.

Par ailleurs, cette énergie sera fortement sensible à la teneur de silicium et la fraction cristallisée.

b. Recuit sous champ magnétique

Recuit en deux étapes

Des rubans d'amorphe subissent un pré-recuit à 540°C pendant 1 heure afin d'atteindre l'état nanocristallin. En deuxième étape, un champ magnétique est appliqué à une température plus basse (300-540°C) qui permet l'alignement des paires d'atomes et créer une énergie d'anisotropie uniforme. Dans ce traitement en deux étapes, l'anisotropie induite dépend de manière sensible de la température de recuit et du temps de recuit [27], [28].

Recuit en une seule étape

Le champ magnétique a été appliqué pendant le processus de la nanocristallisation à une température élevée (500-600°C). Autrement dit, l'alignement des paires d'atomes se fait en même temps que la formation des nanograins.

A une température supérieure à la température de Curie de la phase amorphe (360°C), et inférieure à celle de la phase cristalline (650°C), l'aimantation spontanée locale ne joue pas de rôle majeur dans l'instauration de l'anisotropie. En effet, l'aimantation locale spontanée est très faible au début de la cristallisation, en revanche, le champ extérieur est plus efficace pour augmenter l'énergie d'anisotropie induite quand les températures de recuit sont très élevées (Figure 1-15) [29].

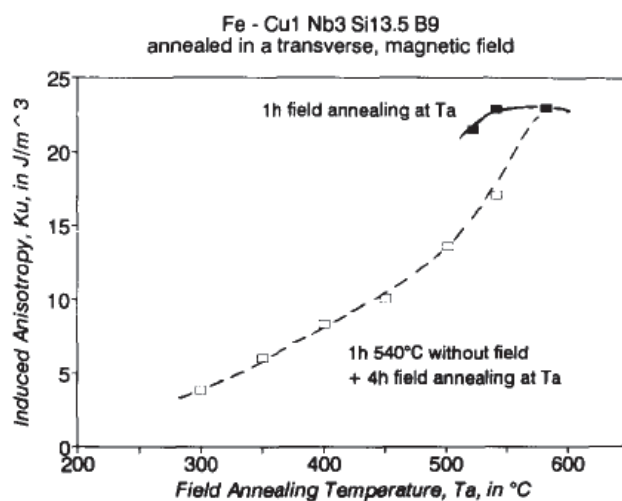


Figure 1-15 Évolution d'anisotropie induite avec un recuit sous champ lors de la nanocrystallisation et un recuit sous champ après la nanocrystallisation en fonction de la température du recuit [26].

Si elles sont correctement contrôlées, les énergies d'anisotropies peuvent constituer un outil puissant pour adapter la forme du cycle d'hystérésis aux exigences de l'application. Un cycle rond (type-R) est obtenu en appliquant un recuit sans champ. En appliquant un recuit sous champ magnétique dans le sens longitudinal du ruban, on obtient un cycle carré (type-Z). Tandis que, si le champ appliqué est dans le sens transversal du ruban, le cycle B-H obtenu est linéaire (type-F) (Figure 1-16)[30], [31].

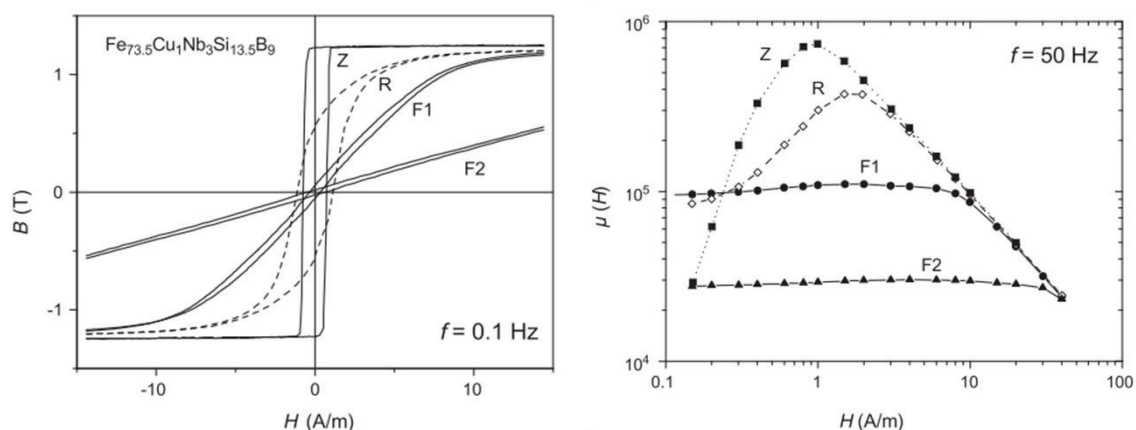


Figure 1-16 Cycles d'hystérésis statiques (à gauche) et perméabilité différentielle (à droite) de l'alliage nanocrystallin FeCuNbSiB recuit 1 h à 540°C sans champ (type-R), sous champ magnétique longitudinal (type-Z), recuit sous champ transverse à 350°C F1 (type-F) et F2 sous traction mécanique F2 [17].

Dans un recuit sous champ, la composition, la température et le temps de recuit jouent un rôle pour contrôler l'anisotropie induite [27], [32], [33], ainsi que l'amplitude et la direction du champ appliqué.

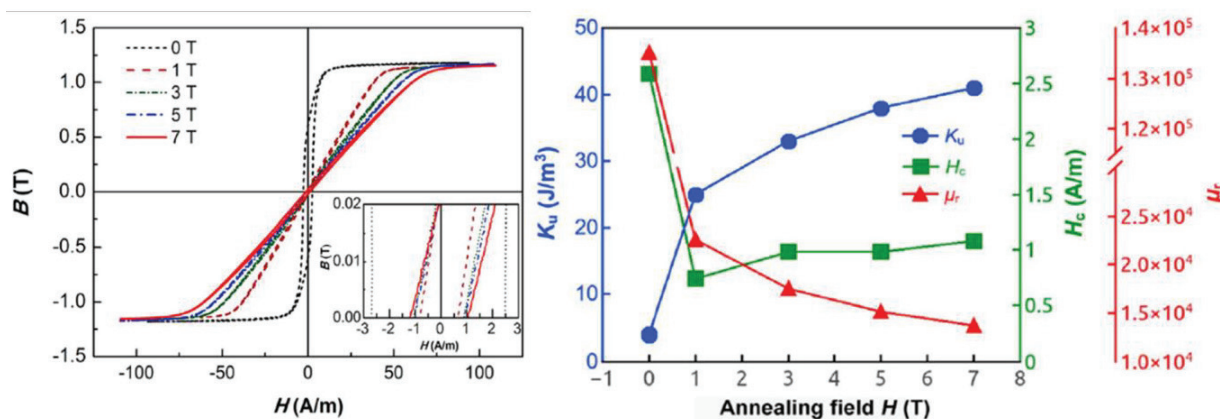


Figure 1-17 Évolution des cycles d'hystérésis (à gauche) et les évolutions de K_u , μ_r , H_c (à droite) en fonction du champ appliqué lors du recuit à 580°C pendant 1h [29].

Pour le même temps et la même température de recuit, la Figure 1-17 (à gauche) présente la variation de la forme des cycles d'hystérésis en fonction de l'intensité du champ appliqué (dans la direction transversale) lors du recuit. Nous constatons que les cycles deviennent de plus en plus linéaires avec l'augmentation du champ extérieur appliqué. Pour un champ appliqué de 7 T dans le sens transversal, cela se traduit par une diminution de la perméabilité (15 000 sur la Figure 1-17 (à gauche)) et par l'introduction d'une forte anisotropie uniforme K_u (40 J/m³ sur la Figure 1-17 (à droite)) qui favorise une structure en domaines magnétiques homogènes.

En effet dans la Figure 1-18, nous remarquons la présence des fluctuations de l'aimantation dans les larges domaines des deux noyaux nanocristallins avec une forte anisotropie (a) et une faible anisotropie uniforme (b). Ces fluctuations à courte distance se produisent à l'échelle de la largeur de la paroi du domaine (longueur d'échange L_{ex}) [34]. Ils deviennent visibles si l'axe facile est orienté perpendiculairement à l'axe de la sensibilité magnéto-optique (ce qui accentue les régions de transition comme les parois de domaine). Ces fluctuations sont plus prononcées dans l'échantillon nanocristallin à faible anisotropie induite, cela explique pourquoi le champ coercitif est plus élevé quand K_u est faible (Figure 1-17 à droite) étant donné la difficulté de parois à se déplacer.

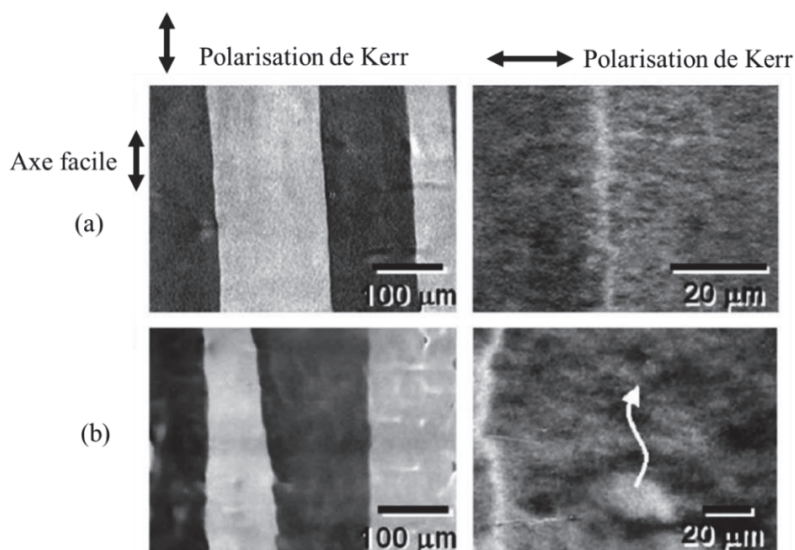


Figure 1-18 Microstructure magnétique à l'état démagnétisé à température ambiante pour deux axes de sensibilité magnéto-optique des nanocristallins recuits sous champ transversal (a) avec $K_u = 30 \text{ J/m}^3$ et (b) avec $K_u = 3 \text{ J/m}^3$ [34].

c. Recuit sous contrainte mécanique

En appliquant une traction sur les rubans ou des contraintes radiales sur des tores [35] pendant les recuits, permet de créer une anisotropie uniforme appelée « creep stress anisotropy ». La contrainte mécanique est appliquée soit à l'état nanocristallin ou pendant la nanocristallisation.

L'origine de cette anisotropie est plus compliqué à expliquer, jusqu'à présent, deux mécanismes sont proposés pour expliquer cette anisotropie [36] : la structure d'orientation « atom pair ordering » adopté par Hofmaan et Kronmuller [24] et l'effet magnétoélastique proposé par Herzer [37].

Hofmaan et d'autres travaux [38], [39] ont lié la création d'une anisotropie uniforme à un réarrangement atomique dans les nanocristaux afin de s'aligner selon l'axe de la contrainte appliquée.

Les travaux d'Herzer ont montré une forte corrélation entre la magnéstriction et l'anisotropie induite sous contrainte. La Figure 1-19 à droite montre que l'anisotropie induite augmente avec l'augmentation de la contrainte appliquée, par ailleurs le cycle devient de plus en plus couché (Figure 1-19 à gauche) jusqu'à la limite élastique du matériau (autour de 800 MPa) [40].

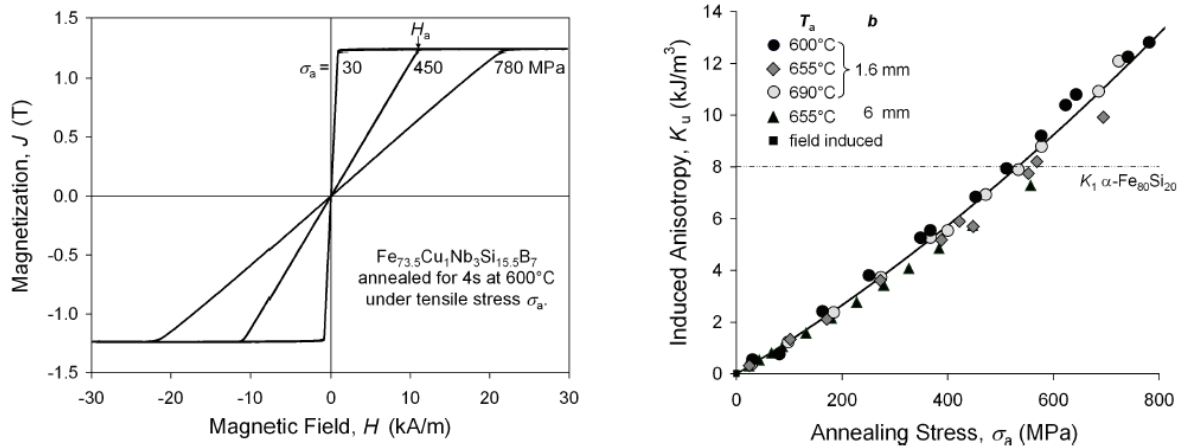


Figure 1-19 Recuit sous contrainte sur la forme du cycle (à gauche), énergie d'anisotropie induite en fonction de la contrainte appliquée lors du recuit (à droite)[40].

L'énergie d'anisotropie induite K_u , est proportionnelle à la contrainte de traction σ_a , appliquée pendant le recuit [19] :

$$K_u = -\frac{3}{2}k\sigma_a \quad (1.16)$$

Avec l'axe facile aimantation parallèle ($k > 0$) ou perpendiculaire ($k < 0$) à l'axe de la contrainte appliquée, k est une « constante de magnétostriction fictive » qui donnerait une anisotropie magnétoélastique équivalente à K_u , si le matériau était déformé élastiquement par une contrainte de traction appliquée $\sigma = \sigma_a$.

Le paramètre k et la magnétostriction à saturation ont des comportements similaires en fonction de la température du recuit et la composition de l'alliage. Par ailleurs, l'anisotropie induite par contrainte devrait être liée à des coefficients de magnétostriction locaux. Par la suite, l'analyse plus approfondie des données expérimentales [37], [41] révèle que l'amplitude et l'orientation de l'anisotropie induite est en corrélation avec la magnétostriction à saturation locale λ_s^{FeSi} , de la phase cristalline α -FeSi :

$$K_u \approx -\frac{3}{2}\lambda_s^{FeSi}\sigma_i f_x \quad (1.17)$$

Où f_x est la fraction cristalline. La contrainte interne dans les cristaux dans état d'équilibre est égale à la contrainte appliquée lors dur recuit ($\sigma_i = \sigma_a$).

1.3.2.4 Énergie d'anisotropie totale dans les matériaux nanocristallins

L'énergie d'anisotropie totale E_K représente l'énergie nécessaire pour déplacer l'aimantation locale selon l'axe d'un champ extérieur (de l'état désaimanté jusqu'à la saturation). Elle est calculée à l'aide de la courbe de première aimantation [15] :

$$E_K \approx \int_0^{B_s} H \cdot dB \quad (1.18)$$

Où B_s est l'induction à saturation.

Elle représente aussi l'ensemble de toutes les énergies présentées précédemment [15] :

$$E_K \approx E_{\langle K1 \rangle} + E_{K_u} + E_{\lambda\sigma} \quad (1.19)$$

Selon les conditions du recuit appliqué, des approximations peuvent se faire [30], [31]. Dans le cas d'un recuit sans champ, c'est l'énergie d'anisotropie aléatoire $\langle E_{K1} \rangle$ qui domine dans le matériau. Tandis que, dans un recuit sous champ magnétique dans le sens longitudinal (respectivement transversal) du ruban, l'énergie $E_{K_u}^{\parallel}$ (respectivement $E_{K_u}^{\perp}$) d'anisotropie uniforme induite est dominante. Cette partie sera plus détaillée pour l'interprétation des résultats dans le chapitre 3.

1.3.3 Propriétés magnétiques des matériaux magnétiques nanocristallins

1.3.3.1 Induction à saturation

Les alliages nanocristallins présentent une induction à saturation élevée, autour de 1.35 T pour la famille Finemet®. L'augmentation de l'induction de saturation dans les alliages nanocristallins a fait une révolution dans différentes applications telles que des capteurs de courant transportant de grands courants et des dispositifs d'impulsion.

Dans la Figure 1-20, nous remarquons que la diminution de l'induction à saturation en fonction de la température est plus importante quand le matériau est dans son état amorphe. En effet, à partir de $T \approx 320^\circ\text{C}$ (Température de Curie des amorphes, T_C^{am}) le matériau amorphe devient amagnétique, alors que dans le matériau nanocristallin, l'induction continue à diminuer en changeant la pente. En fait, à partir de T_C^{am} seulement la phase cristalline contribue à l'aimantation du matériau et le matériau nanocristallin devient amagnétique à la température $T \approx 600^\circ\text{C}$, température de Curie des FeSi, T_C^{FeSi} [42].

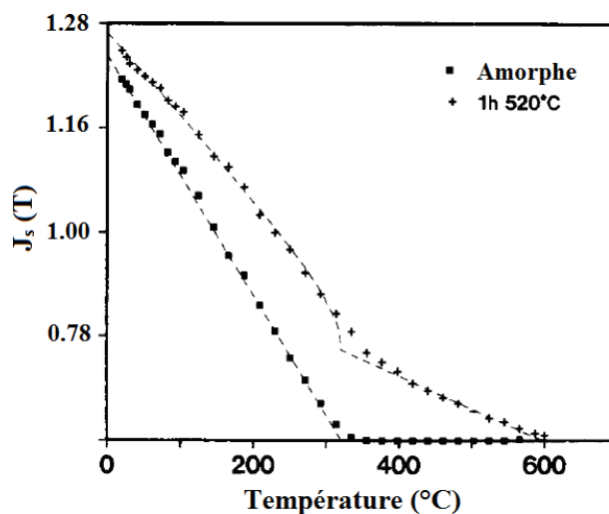


Figure 1-20 Évolution de la polarisation magnétique à saturation J_s en fonction de la température de mesure d'un alliage amorphe et d'un alliage nanocristallin de composition $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{13.5}B_9$ [42].

1.3.3.2 Perméabilité relative

La perméabilité relative des matériaux magnétiques nanocristallins peut être ajustée dans une large plage. La Figure 1-21 montre que les alliages nanocristallins présentent à la fois les avantages des amorphes à base de fer (basse perméabilité) et ceux des amorphes à base de cobalt (haute perméabilité). En revanche le grand inconvénient de ces matériaux est leur fragilité mécanique qui limite la géométrie de fabrication et rend difficile la production autrement qu'en circuit torique.

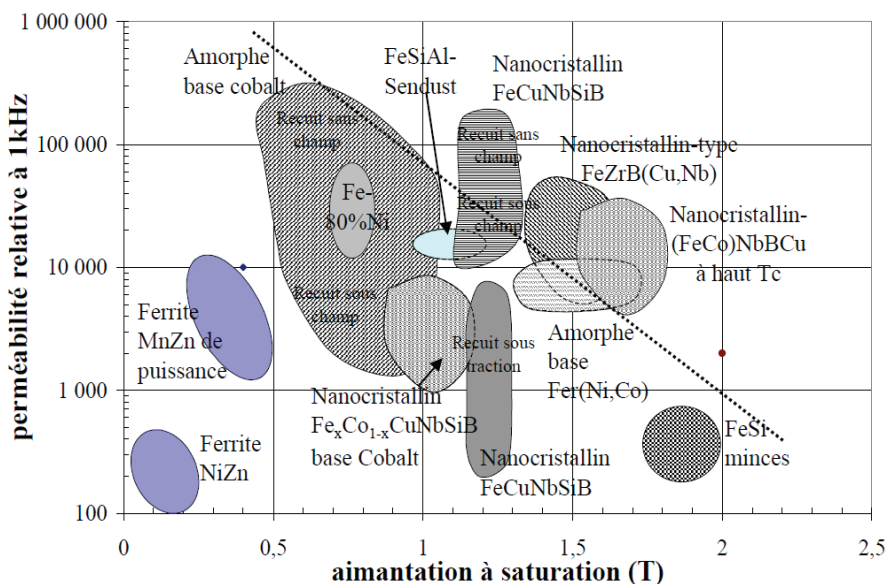


Figure 1-21 Perméabilité relative et aimantation à saturation des différents matériaux magnétiques doux [18].

1.3.3.3 Champ coercitif

En optimisant la composition et le traitement thermique, le champ coercitif dans les matériaux magnétiques nanocristallins peut atteindre des valeurs très faibles (<1 A/m). La Figure 1-22 présente l'évolution du champ coercitif, la perméabilité initiale et la rectangularité des matériaux magnétiques nanocristallins en fonction de la température.

La suppression de l'anisotropie magnétocristalline exige que les grains orientés aléatoirement soient couplés par une longueur d'échange plus grande que la taille des nanograins. Par conséquent, si la longueur d'échange est réduite, les anisotropies locales seront moins efficacement moyennées et les propriétés magnétiques douces se dégraderont [19].

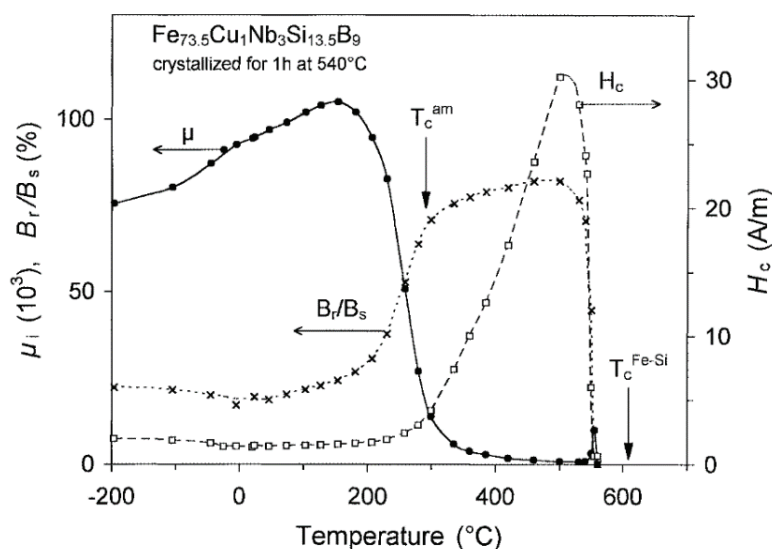


Figure 1-22 Évolutions de la perméabilité initiale μ_i , du champ coercitif H_c et de la rectangularité B_r/B_s , des alliages nanocristallins $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{13.5}B_9$ (recuit 1 h à 540°C + 4 h à 350°C avec un champ magnétique transversal) en fonction de la température de mesure ($f=50$ Hz) [19].

1.3.3.4 Pertes magnétiques

La Figure 1-23 montre que les pertes magnétiques totales dans les matériaux magnétiques nanocristallins sont 6 à 10 fois plus faibles (à 0.5T/10 kHz) par rapport à celles des ferrites. Ceci est dû au traitement thermique et à la très faible épaisseur du ruban du matériau nanocristallin ce qui limite la circulation des courants de Foucault.

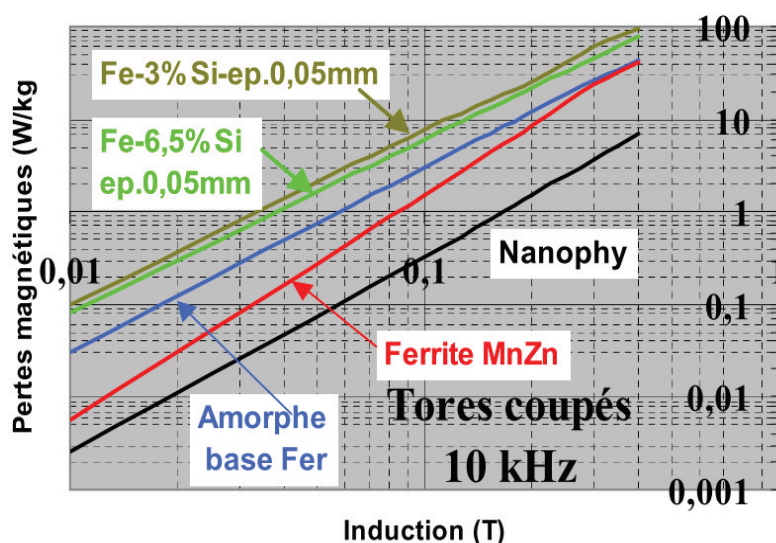


Figure 1-23 Pertes magnétiques à 10 kHz de tores coupés dédiés aux transformateurs de puissance, comparaison entre amorphe base Fer, Fe3%Si et Fe6,5%Si minces, ferrite MnZn et nanocristallin Nanophy [18].

1.4 Applications des matériaux magnétiques nanocristallins

En raison de leurs propriétés magnétiques intéressantes (citées dans la section 1.3.3), notamment le bon comportement à moyennes fréquences ($< 100\text{kHz}$), les noyaux nanocristallins sont de plus en plus sollicités dans un large champ d'applications (Tableau 1-1). En outre, la composition du matériau se base sur des éléments peu coûteux (le fer et le silicium). Tous ces éléments ont permis à la solution nanocristalline de concurrencer non seulement les alliages amorphes à base de Co, mais aussi les alliages cristallins classiques et les ferrites. Il en résulte une augmentation de leur utilisation dans les disjoncteurs différentiels, les inductances de mode commun et les dispositifs à moyenne fréquence notamment les transformateurs.

Parmi les diverses applications des matériaux magnétiques nanocristallins, nous présentons brièvement les capteurs de courant fluxgate. En effet, ces capteurs ont été utilisés dans notre étude de vieillissement sous deux contraintes (thermique et électrique) comme un moyen d'aimantation tout au long des périodes de vieillissement.

Tableau 1-1 Différentes applications des matériaux nanocristallins (recopié et traduit de [43])

Domaine d'application	Application	Exigences
Source d'alimentation	<ul style="list-style-type: none"> - Transformateur de puissance - Self mode commun - Self de stockage - Transformateur de commande - Amplificateur magnétique - Transformateur d'impulsions 	<ul style="list-style-type: none"> - $P_{fe}; B_s$ - $\mu(f); B_s$ - $\mu(H_{DC}); B_s; P_{fe}$ - $P_{fe}; \text{linéarité}$ - $\Delta B_{RS}; B_s; P_{fe}$ - $B_s; P_{fe}$
Telecommunication	<ul style="list-style-type: none"> - Transformateur de signal - Self mode commun 	<ul style="list-style-type: none"> - $\mu(H_{DC}); \mu(f)$ - $\mu(f); B_s$
Installation techniques	<ul style="list-style-type: none"> - Disjoncteur différentiel (AC) - Disjoncteur différentiel (Impulsions) - Transformateur de courant 	<ul style="list-style-type: none"> - $\mu'_i; \mu_{max}; \mu(T); B_s$ - $\mu'_i; \mu(T); P_{fe}; B_s; \text{linéarité}$ - $\mu'_i; B_s; \text{linéarité}$
Electronique automobile	<ul style="list-style-type: none"> - Convertisseur DC/DC 	<ul style="list-style-type: none"> - $\mu(H_{DC}); B_s; P_{fe}$

1.4.1 Les capteurs de courant fluxgate

Les matériaux magnétiques doux utilisés dans les capteurs de courant basés sur la technologie fluxgate devraient présenter une perméabilité magnétique élevée et un faible champ coercitif, une résistivité électrique élevée et de bonnes propriétés dynamiques. La majorité de ces exigences est satisfaite par des matériaux magnétiques amorphes et nanocristallins.

1.4.1.1 Capteurs de courant fluxgate à boucle fermée

Le principe de fonctionnement d'un capteur de courant intégrant la technologie fluxgate est similaire à celui d'un capteur de courant à sonde de Hall à boucle fermée. La sonde de Hall placée dans l'entrefer du circuit magnétique est remplacée par un matériau magnétique saturable entouré d'une bobine. La technique fluxgate repose sur la détection d'un changement d'inductance. L'inductance vue aux bornes de l'enroulement de l'élément saturable varie fortement en fonction du courant qui le traverse mais également en fonction du flux produit par une ou plusieurs sources magnétiques extérieures.

La présence d'un champ magnétique extérieur, induit une variation d'inductance vue au niveau de l'enroulement de l'élément saturable, variation de la tension secondaire $v(t)$. Cette variation est mesurée et renvoyée par l'intégrateur sous forme de courant dans l'enroulement de compensation pour annuler le flux dans le circuit magnétique principal [44]–[46].

Le matériau est périodiquement saturé par un courant d'excitation triangulaire $i(t)$. La tension relevée sur l'enroulement secondaire $v(t)$ est nulle pendant les phases où le matériau est saturé, et non nulle en dehors. Le changement de l'inductance en présence d'un champ magnétique extérieur, se traduit par le changement sur les allures des signaux (Figure 1-24) qui seront eux-mêmes exploités pour mesurer le courant I_p , notamment [45], [47]–[49] :

- La mesure de la composante continue du courant d'excitation.
- La mesure du rapport cyclique de la tension, la saturation n'est plus symétrique. Le principe de mesure de l'induction magnétique extérieure repose sur la mesure de cette dissymétrie.

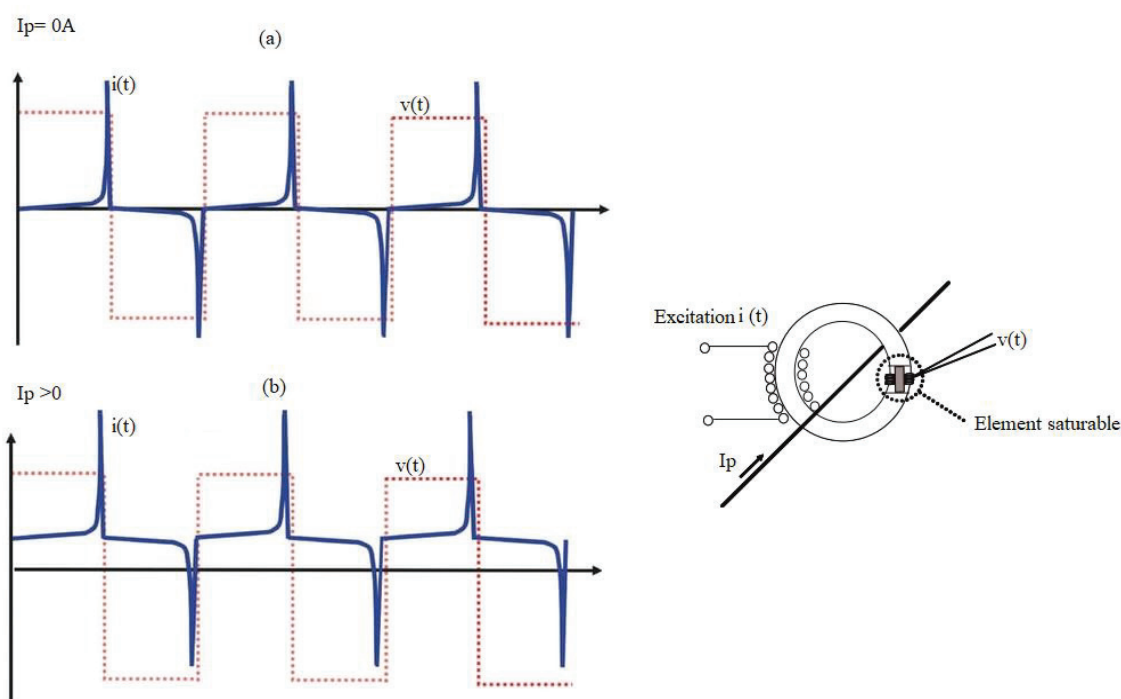


Figure 1-24 Réponse en courant à $I_p=0$ (a) et I_p non nul (b)[44], [45].

Une telle configuration est bien connue, cependant, compte tenu de la grande sensibilité des capteurs fluxgate, il est possible de les utiliser en boucle ouverte, sans bobine de compensation.

Ces capteurs offrent des caractéristiques métrologiques modestes par rapport à son homologue fluxgate à boucle fermée, cependant, il présente des avantages comparatifs, tels que son faible coût, sa petite taille, son poids léger et sa faible consommation d'énergie [50].

1.4.1.2 Capteurs de courant fluxgate à boucle ouverte (auto-oscillant)

Les capteurs de courant fluxgate en boucle ouverte étudiés dans le chapitre 4 fonctionnent avec des tores nanocristallins fermés (sans entrefer). Par ailleurs, le tore magnétique joue à la fois le rôle du concentrateur de flux et est aussi l'élément saturable.

Le circuit présenté sur la Figure 1-25-a explique le principe de fonctionnement du capteur fluxgate à boucle ouverte. Le dispositif se compose d'un transformateur, d'un comparateur de Schmitt U, d'une résistance de charge R_T et d'un filtre passe-bas. Le circuit secondaire est modélisé par une résistance supplémentaire r_s , qui représente la résistance de l'enroulement secondaire, plus la résistance du canal des transistors MOS. Avec R_T , elles forment la résistance secondaire totale : $R_s = R_T + r_s$.

Le comparateur agit comme une commutation à courant alternatif (CA), il fournit deux niveaux sur sa sortie, $\pm V_{DD}$, avec des niveaux de seuil de tension $\pm V_T$. Les niveaux de seuil de tension et la résistance de charge définissent les niveaux de seuil de courant secondaire comme $V/R = I_{Smax}$. La commutation prévoit que $I_s = i_p/n$, par ailleurs, les courants induisent un champ magnétique $H(t)$ dans le noyau [51]:

$$H(t) = \frac{-i_p + n(i_s(t) + I_S)}{l_e} \quad (1.20)$$

Où $i_s(t)$ est la composante CA du courant secondaire, $i_s(t) = i_S(t) - I_S$. La tension de sortie $v_0(t)$ oscille entre les tensions d'alimentation :

$$v_0(t) = \begin{cases} +V_{DD}, & t \in \Delta t_1 \\ -V_{DD}, & t \in \Delta t_2 \end{cases} \quad (1.21)$$

Tandis que $i_s(t)$ oscille entre $|i_s(t)| \leq V_T/R_T = I_{Smax}$ (Figure 1-25-B). La chute de tension maximale sur la résistance secondaire totale doit être inférieure à la tension d'alimentation ($R_s I_{Smax} < V_{DD}$) qui permet de fixer des limites de tension de seuil.

Le courant $i_s(t)$ sature le noyau magnétique, de sorte que le flux magnétique maximal est approximativement de :

$$\Phi_M(t) = \Phi(I_{S\max}) \approx nA_e B_S \quad (1.22)$$

Avec n : nombre de spires ; A_e section active du tore et B_S l'induction à saturation.

La période d'oscillation est donnée approximativement par [51]–[53] :

$$T_{\text{osc}} = \frac{1}{f_{\text{osc}}} = \Delta t_1 + \Delta t_2 \approx \frac{2\Phi_M}{V_{DD} - I_S R_S} + \frac{2\Phi_M}{V_{DD} + I_S R_S} = \frac{4 V_{DD} \cdot \Phi_M}{V_{DD}^2 - (I_S R_S)^2}$$

$$T_{\text{osc}} = \frac{1}{f_{\text{osc}}} = \frac{4 V_{DD} \cdot n A_e B_S}{V_{DD}^2 - (I_S R_S)^2} \quad (1.23)$$

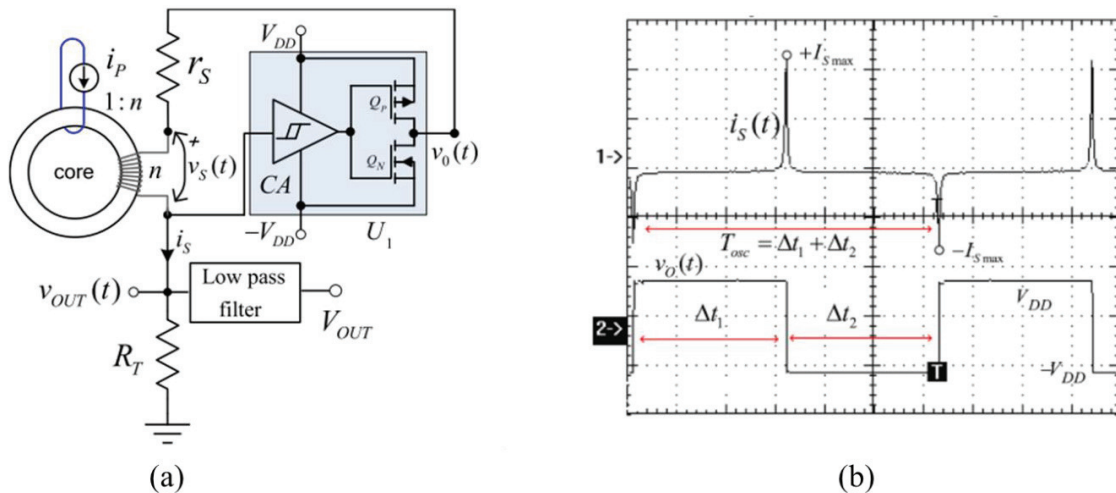


Figure 1-25 (a) : Schéma du circuit de base d'un capteur fluxgate auto-oscillant (b) : Diagrammes temporels de la tension de sortie du comparateur v_0 et le courant secondaire i_s [51].

La mesure du courant peut être faite par différentes méthodes, notamment, par les principes présentés précédemment pour la boucle fermée (ex : rapport cyclique).

1.4.1.3 Avantages et limites des capteurs de courant fluxgate

Les capteur de courant fluxgate sont connus pour les principaux avantages [45], [46] :

- **La faible dérive d'offset** grâce au principe de mesure du champ magnétique par un élément saturable travaillant en alternatif tout au long du cycle magnétique B-H, ce qui supprime tous les offsets magnétiques au niveau de la tête de mesure.

-
- **La haute résolution et la précision** pouvant atteindre 0,001 %, en comparaison avec les techniques Hall à boucle ouverte. Cet avantage est le plus marqué dans la mesure des courants de faible intensité où l'effet relatif de l'offset est plus important.
 - **La plage de mesure étendue** : il est possible de mesurer avec précision un courant de faible intensité (quelques mA) comme d'une très grande intensité (jusqu'à 1000 A)[49]. De plus, ces capteurs sont capables de mesurer des courants alternatifs (jusqu'à plusieurs kHz) et des courants continus.
 - **La large plage de température de fonctionnement** : les limites en température sont imposées par les matériaux et les composants.

Parmi les inconvénients principaux de ces capteurs, nous pouvons citer la bande passante limitée pour quelques modèles, le risque d'une injection de bruit (courant/tension) dans le conducteur primaire et donc dans le système électrique hôte, la consommation secondaire très élevée (comparable aux capteurs Hall en boucle ouverte) et enfin le coût de production assez élevé vu la complexité de fabrication.

L'utilisation des noyaux en matériau magnétique pour mesurer les champs magnétiques présente toutefois l'inconvénient de générer un offset magnétique dû aux effets de la rémanence et du champ coercitif. Bien que l'offset magnétique en fonctionnement nominal puisse être minimisé avec une fonction de désaimantation, une réinitialisation (désaimantation) conventionnelle peut ne pas être suffisante pour un fonctionnement précis du capteur. Les nouveaux capteurs de courant développés par LEM possèdent une fonction de désaimantation qui est plus efficace, d'autres avantages sont présents dans ce capteur, notamment [54] :

- Fournir différents modes de fonctionnement, y compris un mode de fonctionnement auto-oscillant avec un rapport cyclique variable, ou un mode à fréquence fixe qui peut être utilisé pendant la désaimantation. En effet, le fonctionnement à basse fréquence améliore l'efficacité de la désaimantation par rapport au fonctionnement à haute fréquence.
- Gérer les arrêts et les démarrages du capteur, par exemple pour une séquence de désaimantation ou pour mettre le capteur en mode veille.
- Limiter le nombre de composants (passifs, actifs, MCU).
- En plus du bobinage d'excitation, le capteur LEM contient un bobinage « test ». L'utilisateur peut l'utiliser dans différents buts notamment dans le diagnostic afin d'atteindre des niveaux de sécurité élevés.

Pour répondre à un maximum d'exigences du cahier des charges, le choix de l'instrumentation de mesure doit toujours être optimisé en termes de coût et de design.

La technologie fluxgate n'est pas seulement utilisée pour la mesure des courants, elle est aussi appréciée par les géologues pour la mesure du champ géomagnétique, par les militaires pour la détection des mines anti personnelles, dans le domaine spatial pour contrôler le positionnement d'un satellite [48].

1.5 Vieillessement des matériaux magnétiques

Les matériaux magnétiques sont utilisés dans de nombreuses applications industrielles (véhicules électriques, aéronautiques...) où ils sont sollicités pour fonctionner dans des conditions sévères, notamment une température élevée. Combinées avec le temps, ces contraintes peuvent provoquer des modifications des propriétés magnétiques de ces matériaux, on parle alors de « vieillissement magnétique ». Selon la nature du matériau utilisé, le vieillissement magnétique pourrait être provoqué par différents mécanismes.

Dans le cas des polycristallins FeCoV [55], utilisés dans la construction de la génératrice tournante haute vitesse, la raison principale de la détérioration des propriétés magnétiques est liée au changement de microstructure.

Dans le cas des aciers [56], l'azote et le carbone sont les principaux éléments acteurs dans le vieillissement. A partir de certains teneurs, ces éléments peuvent diffuser vers les dislocations même à des températures basses. La teneur en silicium, en aluminium et en manganèse joue aussi un rôle important pour contrôler le vieillissement. En effet, la présence de l'un de ces éléments peut ralentir ou accélérer la cinétique de formation ou de transition des précipités d'un état métastable à un état stable.

Dans le cas des alliages amorphe FeBSi pour une application 60 Hz [57], le vieillissement est causé par la précipitation du fer à la surface du ruban, en raison de l'oxydation excessive du bore et du silicium. Dans le cas des alliages amorphes FeSiBNb [58], l'instabilité des propriétés magnétiques est ainsi causée par les modifications de la microstructure, mais cette fois ci, par la formation d'une phase des grains bcc-Fe (cristallisation).

1.5.1 Vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins

Peu de travaux traitent du vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins. Selon [17], [19], le vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins est lié à la réorientation de l'anisotropie magnétique selon les directions locales d'aimantation de chaque domaine magnétique.

Les études menées dans [55], ont élaboré une étude plus détaillée sur le vieillissement des différentes nuances, la nuance $\mu 500\ 000$ (type-R) et la nuance $\mu 30\ 000$ (type-F). Plusieurs propriétés ont été suivies lors du vieillissement : macroscopique, magnétostriction à saturation, résistivité, microstructure...etc.

Les différentes mesures microscopiques (DRX, DSC, PTE) sur les nanocristallins n'ont montré :

- Aucune variation au niveau de la phase.
- Aucune variation de la taille des grains.
- Aucune variation de la fraction cristallisée.
- Aucune oxydation.

Par ailleurs, les variations des propriétés magnétiques macroscopiques lors du vieillissement n'ont pas été liées à des changements de microstructure mais plutôt à des modifications de l'énergie d'anisotropie prédominante dans le matériau. En effet, les mesures des courbes de première aimantation ont montré que l'énergie d'anisotropie totale a augmenté. Le degré de dégradation des propriétés magnétiques dépend de la compétition entre cette énergie instaurée lors du vieillissement et l'énergie prédominante dans le matériau.

En effet, les cycles quasi statiques des nanocristallins F-type (Figure 1-26-a) ne présentent pas des changements visibles lors du vieillissement à 240°C. Tandis que les nanocristallins type-R, montrent une forte dégradation au niveau des propriétés (augmentation du champ coercitif et diminution de la perméabilité maximale) (Figure 1-26-b).

Dans le cas des nanocristallins F-type, l'énergie prédominante est l'énergie uniforme transversale (induite lors du recuit). Lors du vieillissement, une anisotropie longitudinale est instaurée dans les domaines de fermeture, cette dernière va provoquer l'expansion des domaines de fermeture qui gênent la rotation des domaines majoritaires transversaux. Dans le cas des nanocristallins type-R, l'énergie prédominante est l'énergie locale aléatoire.

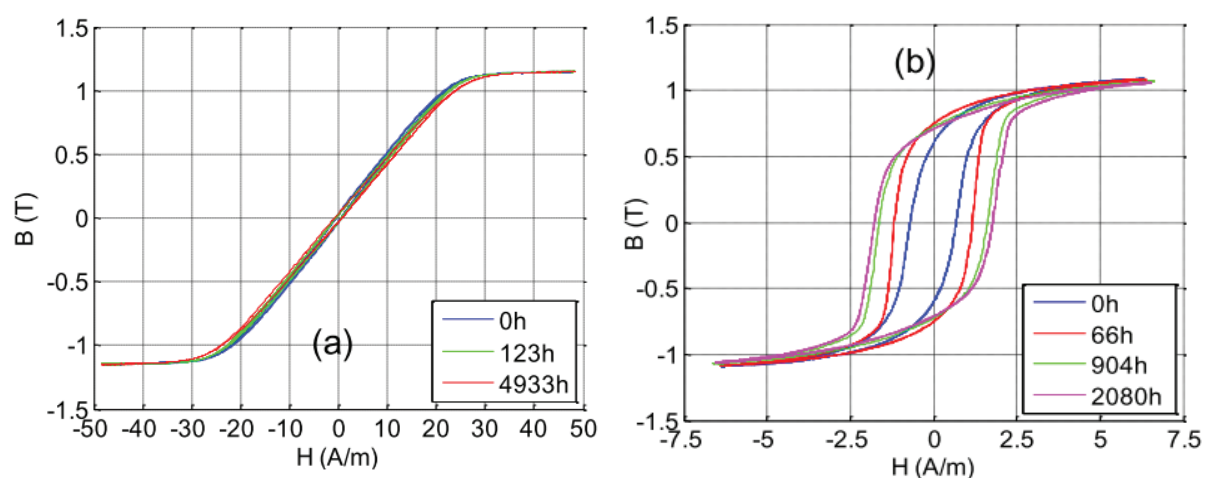


Figure 1-26 Cycles d'hystérésis mesurés à 1 Hz pour plusieurs durées de vieillissement à la température de 240°C. (a) : nanocristallin F-type ; (b) : nanocristallin type-R (avec désaimantation)[55].

Dans les mêmes travaux, l'effet de l'enrobage des matériaux lors du vieillissement a été étudié. Les matériaux enrobés ont montré plus de dégradations par rapport aux échantillons nus. Ceci a été lié à l'enrobage qui provoque des contraintes de compression sur le ruban nanocristallin. Par ailleurs, 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. D'autres travaux existent sur le vieillissement des matériaux nanocristallins [59], [60] et ont lié leur vieillissement au mécanisme de la diffusion lacunaire « vacancy diffusion ».

Pendant le processus de formation des nanocristaux (cristallisation), les atomes des inhibiteurs occupent des positions libres sachant qu'une formation de lacunes est favorisée quand le rayon atomique des inhibiteurs est grand (cas de niobium). En effet quand le rayon atomique est grand, l'inhibiteur est moins soluble dans la phase cristalline [61].

Lors du vieillissement, ces lacunes migrent vers des nouvelles positions ce qui modifie leurs interactions avec les parois de domaine. De plus, plusieurs lacunes peuvent migrer vers un même endroit en formant un cluster de lacunes [62]. Le cluster de lacunes rend le déplacement des parois difficiles ce qui entraînerait une augmentation de la force coercitive et une diminution de la perméabilité.

Ces hypothèses ont été menées grâce à une comparaison entre des nanocristallins avec des inhibiteurs différents. En effet, le vieillissement est très important sur la perméabilité maximale dans le cas des alliages avec le niobium (Nb) ou molybdène (Mo), tandis que les alliages avec le tungstène (W) montrent une meilleure stabilité dans le temps (Figure 1-27).

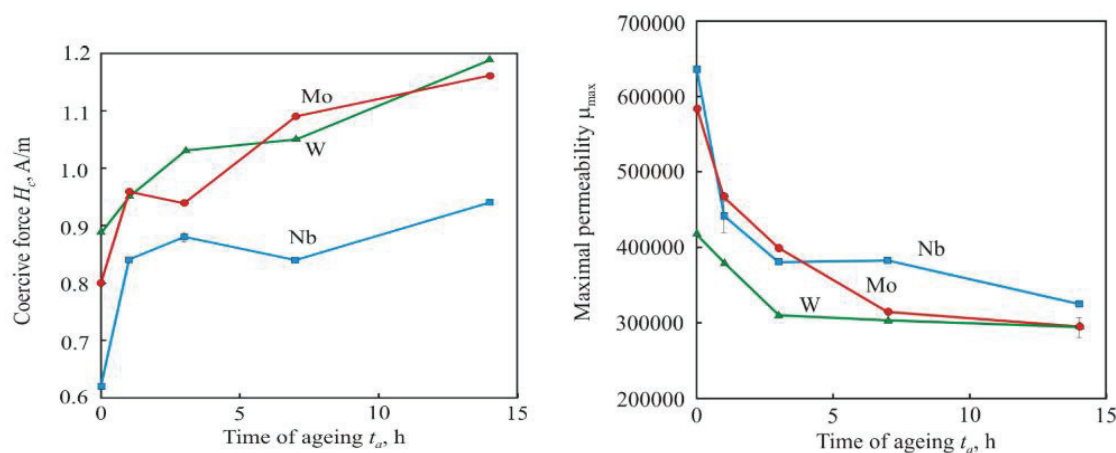


Figure 1-27 Évolutions de la perméabilité maximale et du champ coercitif H_c en fonction du temps de vieillissement des nanocristallins $Fe_{73.5}Cu_1M_3Si_{13.5}B_9$ ou ($M = Nb, W, Mo$) à $240^\circ C$ [13].

1.6 Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons rappelé les bases du magnétisme et le comportement magnétique macroscopique des matériaux.

A partir d'une recherche bibliographique, le processus d'élaboration des matériaux magnétiques nanocristallins a été présenté. Nous avons ensuite détaillé les différentes énergies d'anisotropies et l'impact des différents recuits sur le réglage de certaines propriétés magnétiques de ces matériaux. Nous avons aussi présenté les différentes applications des matériaux nanocristallins et plus précisément celle des capteurs de courant fluxgate avec leur principe de fonctionnement et leurs avantages.

Par la suite, nous avons introduit l'aspect du vieillissement en commençant par différents matériaux magnétiques (polycristallins et amorphes) pour terminer avec des travaux sur le vieillissement des matériaux nanocristallins effectués au laboratoire Ampère.

Notre travail de thèse contribue à compléter ces travaux initiés au laboratoire Ampère, d'une part, en rajoutant le vieillissement des nanocristallins recuits sous champ longitudinal type-Z, et, d'autre part, en menant deux études de vieillissement sur les nanocristallins, l'une sous contrainte thermique et la seconde sous contraintes thermique et électrique variable.

Chapitre 2 : Matériaux magnétiques et outils pour l'expérimentation

2.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les différents échantillons de matériaux, l'application capteur de courant et les outils dédiés à l'expérimentation magnétique (techniques de caractérisations macroscopique, mésoscopique et microscopique, matériels) utilisés dans cette étude du vieillissement.

Nous commençons par le recensement, les dimensions et les nuances des différents échantillons magnétiques étudiés.

Ensuite, nous présentons les différentes techniques et outils de caractérisations magnétiques utilisés pour suivre l'évolution des propriétés magnétiques lors du vieillissement :

- Le principe et le banc de caractérisation magnétique macroscopique en quasi statique que nous avons développé et automatisé au sein du laboratoire Ampère.
- Les cartes électroniques des capteurs de courant fluxgate fournis par notre partenaire LEM. Ces cartes sont utilisées dans les essais de vieillissement sous deux contraintes (thermique et excitation) pour aimanter les échantillons lors du vieillissement et comme un outil de caractérisation en dynamique.
- Le principe et le banc de mesures basé sur le bruit de Barkhausen. Les résultats d'expérimentation ont permis l'étude de la dynamique des parois et l'évolution des domaines magnétiques dans le temps d'une manière indirecte. Ces expérimentations ont été faites dans le cadre d'une collaboration avec le laboratoire de Génie Electrique et Ferroélectricité (LGEF) de l'INSA Lyon.

Finalement, nous présentons brièvement la technique du Microscope Optique à Effet Kerr (MOKE) qui a été faite par IFW Dresden à l'institut de recherche Leibniz en Allemagne.

2.2 Préparation des échantillons

2.2.1 Dispositifs thermiques

Différents appareils permettant de maintenir les échantillons à une température donnée sont utilisés dans cette étude :

- **Pour faire du vieillissement à haute température (240 °C) :** nous utilisons quatre étuves de la marque Memmert, dont trois étuves Memmert UN110 de 108L (Figure 2-1) et une étuve Memmert UN55 de 53L.



Figure 2-1 Étuves du laboratoire utilisées pour le vieillissement, modèle Memmert UN110 [63].

- **Pour faire du vieillissement à température négative :** nous avons utilisé un congélateur coffre à basse température (-60°C) de la marque Arctiko LTF85 de 71L (Figure 2-2).



Figure 2-2 Congélateur utilisé pour le vieillissement à -55°C, modèle Arctiko LTF85 [64].

- **Pour faire des mesures à des différentes températures :** nous avons utilisé l'enceinte climatique de la marque Binder MK115 de 115L (-50 à +180°C) présentée dans la Figure 2-3.



Figure 2-3 Enceinte climatique utilisée pour des mesures en température, modèle Blinder MK 115 [65].

Les dispositifs thermiques fonctionnent à des températures constantes de -55°C pour le congélateur et 110, 150, 200 et 240°C pour les étuves. D'autre part, l'enceinte climatique est utilisée pour fixer la température à 20°C pour les caractérisations magnétiques en quasi statique. Nous l'avons aussi employée pour faire les caractérisations sous température des matériaux magnétiques nanocristallins sur une plage allant de -50 à 125°C .

2.2.2 Recensement des tores magnétiques nanocristallins

Les matériaux nanocristallins étudiés se présentent sous forme d'un fin ruban (d'épaisseur environ $22\ \mu\text{m}$) enroulé pour former un tore. Trois nuances de matériaux nanocristallins ont été proposées par notre fabricant et fournisseur de matériaux magnétiques APERAM (Amilly-Imphy). Chaque nuance désignée ci-dessous est obtenue selon un recuit (traitement thermique) différent :

- Type-R : recuit thermique sans champ.
- Type-Z : recuit thermique avec l'application d'un champ magnétique dans le sens longitudinal du ruban.
- Type-F : recuit thermique avec l'application d'un champ magnétique dans le sens transversal du ruban.

L'impact des conditions de traitement thermique sur les propriétés magnétiques des alliages nanocristallins a été expliqué dans le chapitre 1.

Trois lots principaux de tores magnétiques nanocristallins ont été envoyés par notre partenaire, le fournisseur de matériaux APERAM (Amilly-Imphy) sous le nom commercial : Nanophy®.

2.2.2.1 Lot n°1 des échantillons

Des tores magnétiques de la nuance type-Z traités par un recuit A ont été envoyés en premier temps pour l'étude du vieillissement thermique. Les nuances type-R et type-F de ce lot ont été déjà étudiées dans les travaux antérieurs au laboratoire Ampère présentés dans le chapitre 1 [55].

Le recuit A appliqué sur ces tores, possède les caractéristiques générales suivantes :

- Un palier principal qui permet la cristallisation du précurseur amorphe aux alentours de 570°C pendant 1 heure.
- Des paliers secondaires qui permettent d'ajuster l'aimantation sous différents champs selon les propriétés recherchées (type-Z et type-F).

Ce lot contient aussi nos échantillons de base dont nous avons déroulés certains tores afin de préparer des bandes dédiées aux essais complémentaires de Barkhausen ou Effet Kerr,

2.2.2.2 Lot n°2 des échantillons

Un nouveau recuit (appelé recuit B) a été développé afin d'améliorer la stabilité des matériaux magnétiques nanocristallins dans le temps. Des tores nanocristallins type-R et type-Z qui ont subi ce nouveau traitement thermique ont été envoyés par APERAM afin de comparer leurs comportements magnétiques avant et après vieillissement par rapport à ceux du lot n°1. Non seulement le recuit est différent, mais aussi les dimensions sont différentes par rapport à celles du lot n°1 (Figure 2-4).

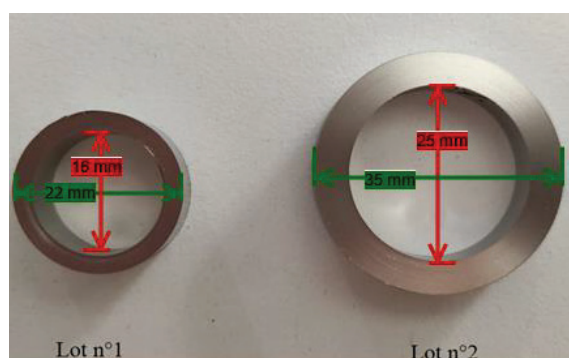


Figure 2-4 Différence de dimensions des tores entre les deux lots différents.

2.2.2.3 Lot n°3 des échantillons

Des tores nanocristallins type-R et type-Z (traités par le recuit A) dédiés à l'étude du vieillissement thermique avec excitation (capteurs de courant fluxgate LEM) sont envoyés en dernier lieu. Ce lot

contient des tores de dimensions différentes (Figure 2-5) selon les trois capteurs à étudier (A), (B) et (C).

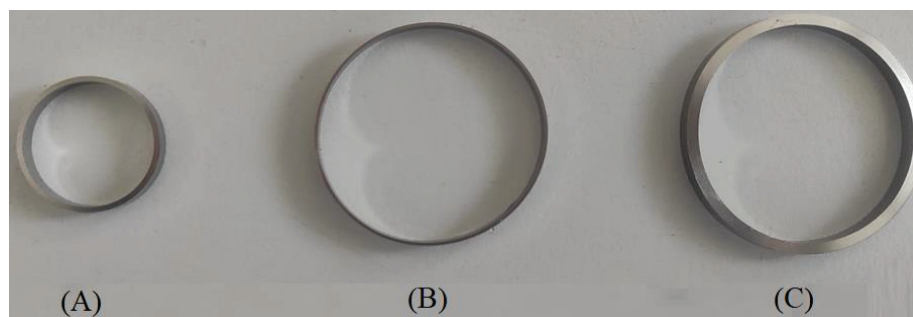


Figure 2-5 Échantillons de différentes dimensions du lot n°3.

Les dimensions des tores des trois lots sont données dans le Tableau 2-1:

Tableau 2-1 Dimensions des tores des trois lots

Lot		Diamètre extérieur (mm)	Diamètre intérieur (mm)	Hauteur (mm)	Masse (g)
N°1		22	17	7	6
N°2		35	25	5	14
N°3	Capteurs (A)	21	19.5	3	1
	Capteurs (B)	35	34		0.97
	Capteurs (C)	40	36		4

Au total, nous avons considéré 78 échantillons sous différentes conditions de vieillissement. Le recensement des différents échantillons est récapitulé dans le Tableau 2-2:

Tableau 2-2 Recensement du nombre d'échantillons par essai.

Conditions de vieillissement	Lot	-55°C	110°C	150°C	200°C	240°C	
Avec démagnétisation	N°1	2×Z	2×Z	2×Z	2×Z	Z	
	N°2	/	2×R+2×Z	2×R+2×Z	2×R+2Z	2×R+2×Z	
	N°3	/	/	/	R+Z	/	
Avec excitation	N°1	Excitation continue	/	/	/	/	R+Z+F
	N°3	Capteurs (A)	2×R+2×Z	2×R+2×Z	2×R+2×Z	2×R+2×Z	/
		Capteurs (B)	2×R+2×Z	2×R+2×Z	2×R+2×Z	2×R+2×Z	
Capteurs (C)		2×R+2×Z	2×R+2×Z	2×R+2×Z	2×R+2×Z		

2.2.3 Bobinage des tores magnétiques nanocristallins

Les échantillons mis dans les étuves sont déjà bobinés, c'est pourquoi, le fil de bobinage et le matériau constituant les boîtiers ont été choisis pour résister aux températures, tout au long de la phase du vieillissement.

Les nanocristallins sont des matériaux magnétiques fragiles mécaniquement, par conséquent chaque échantillon est mis dans un boîtier (en PEEK) pour le protéger lors du bobinage. Les tores ne sont pas collés à l'intérieur du boîtier car l'utilisation de la colle entraînerait l'application d'un état de contraintes sur le matériau variable en fonction de la température de vieillissement du fait que la colle réagit différemment en fonction de la température appliquée. Afin de mener une étude rigoureuse, il est impératif que l'état de contraintes au niveau des matériaux reste le plus stable possible. L'étude des colles est une étude à part entière à étudier en complément à ce travail de thèse.

Pour les caractérisations magnétiques des échantillons des essais du vieillissement thermique sans excitation (lots n°1 et n°2), nous avons effectué un bobinage au primaire d'une seule spire avec un fil émaillé de la classe 200°C et 0.5 mm de diamètre et un bobinage au secondaire de 10 spires avec un fil émaillé de la classe 240°C et 0.25 mm de diamètre.

Pour les tores magnétiques dédiés à l'étude du vieillissement avec excitation alternative (lot n°3), nous avons fait quatre bobinages avec du fil émaillé de la classe 240°C :

- a) Deux bobinages pour les caractérisations en quasi-statique, une spire au primaire et 10 spires au secondaire.
- b) Deux bobinages pour la magnétisation des échantillons via les cartes électroniques et aussi pour les caractérisations en dynamique :
 - Pour les capteurs (A) : un bobinage primaire et un bobinage secondaire avec un fil émaillé de 0.5 mm.
 - Pour les capteurs (B) et (C), le bobinage a été fait par l'entreprise TCT (Imphy, Nièvre) vu le nombre très important de spires (Figure 2-6 Bobinage des tores pour les capteurs (C) avec plus de 1000 spires au secondaire). Au contact du boîtier en PEEK, un bobinage primaire avec un fil de 0.5 mm de diamètre et un bobinage secondaire avec un fil émaillé de 0.335 mm de diamètre ont été fait.

Pour pouvoir mettre les échantillons à l'intérieur des dispositifs thermiques et maintenir les cartes électroniques à l'extérieur, nous avons prolongé tous les bobinages de 1.5 m à leurs extrémités en les torsadant.

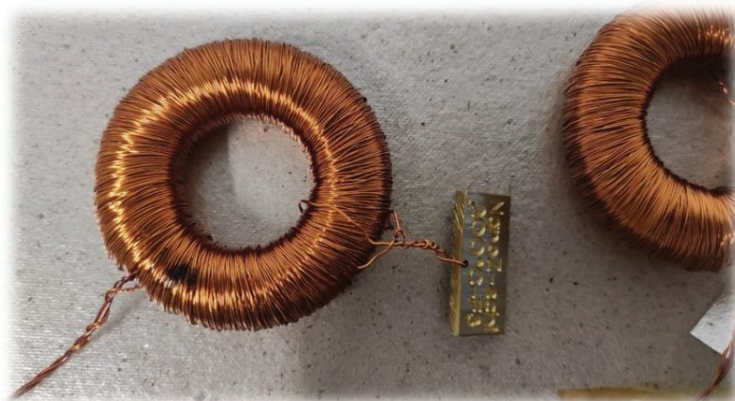


Figure 2-6 Bobinage des tores pour les capteurs (C) avec plus de 1000 spires au secondaire

2.3 Caractérisations magnétiques macroscopiques

Pour déterminer les propriétés magnétiques macroscopiques d'un matériau, plusieurs méthodes peuvent être utilisées. La méthode la plus utilisée est celle qui consiste à employer un circuit magnétique fermé constitué du matériau à caractériser. Généralement, des circuits toriques sont utilisés ou des cadres Epstein. La structure est celle d'un transformateur (Figure 2-7) où deux enroulements sont bobinés autour du circuit magnétique, le champ est appliqué en imposant un courant au bobinage primaire et l'induction magnétique est mesurée par intégration de la tension à vide aux bornes de l'enroulement secondaire ce qui permet d'obtenir le cycle B-H.

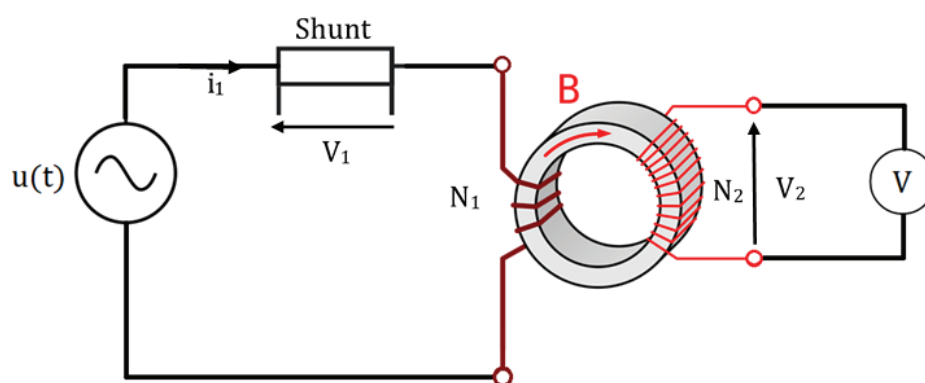


Figure 2-7 Caractérisation magnétique selon le principe du transformateur à vide.

2.3.1 Banc de caractérisations magnétiques en quasi statique

La Figure 2-8 présente le schéma de montage du banc de caractérisation macroscopique développé au laboratoire Ampère. Des caractérisations magnétiques en quasi statique sont faites grâce à ce banc à champ magnétique imposé. L'ordinateur commande une carte d'acquisition (module PicoScope) pour générer un signal sinusoïdal d'excitation de quelques volts et une fréquence de quelques mHz (300 à 1000 mHz) 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. La relation d'Ampère (2-1) relie le courant imposé au champ mesuré :

$$N_1 \cdot i_1(t) = \oint H(t) \cdot dl = H(t) \cdot l_{eff} \quad (2.1)$$

Où N_1 est le nombre de spires de l'enroulement primaire ; l_{eff} : la longueur moyenne du circuit magnétique ; $i_1(t)$: le courant dans l'enroulement primaire.

L'association du rhéostat en série avec l'amplificateur permet de réaliser une source de courant pour effectuer des mesures à champ H imposé. Le courant I_1 qui circule dans le bobinage primaire est récupéré par la carte d'acquisition grâce à la résistance shunt.

La tension secondaire est intégrée analogiquement ou numériquement pour avoir l'induction selon la loi de Lenz (2-2) et renvoyée à la carte d'acquisition :

$$v_2(t) = N_2 \cdot \frac{d\phi_A}{dt} \approx A_{eff} N_2 \frac{dB}{dt} \quad (2.2)$$

Où N_2 : le nombre de spires de l'enroulement secondaire ; A_{eff} : la section du circuit magnétique ; ϕ_A : le flux à travers cette section ; $v_2(t)$: la tension aux bornes de l'enroulement secondaire.

Le courant i_1 qui représente l'image de H et l'induction B sont ensuite transférés à l'ordinateur pour être traités, et enfin, tracer les courbes $B(H)$ et extraire les caractéristiques du matériau (champ coercitif, induction à saturation, pertes totales...etc) à l'aide d'un programme Matlab.

L'automatisation du banc de caractérisation nous a permis d'optimiser le temps des caractérisations et faire des différents essais (répétabilité, à température, désaimantation) pendant des heures sans intervenir.

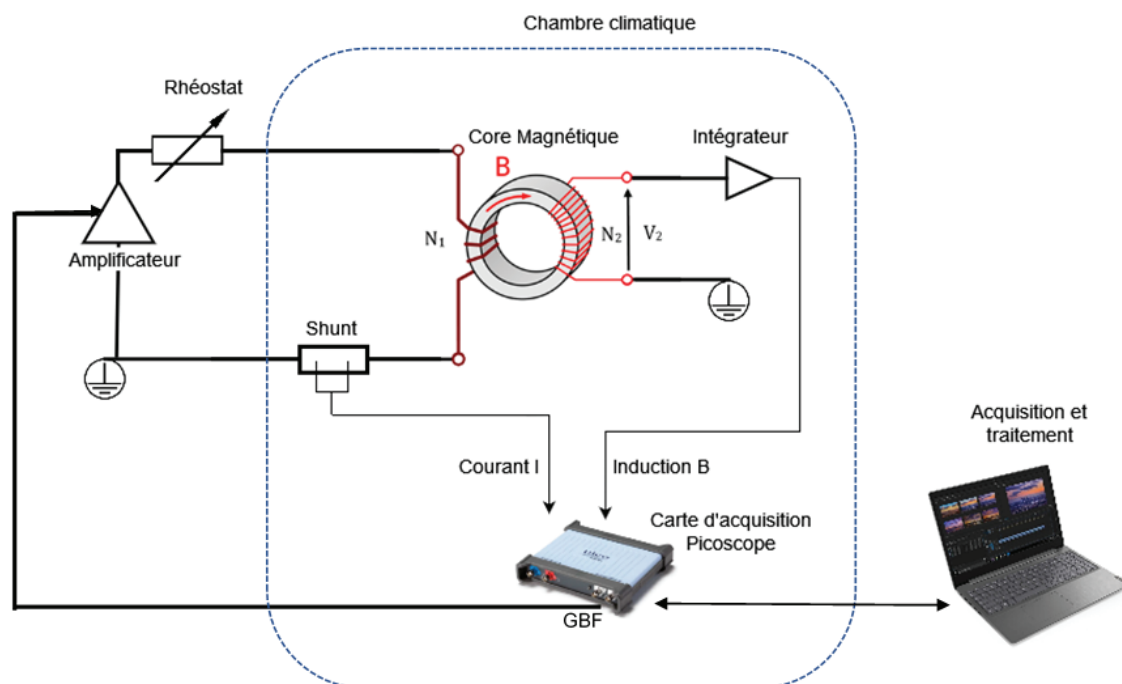


Figure 2-8 Principe du montage du banc de caractérisations magnétiques à champ imposé.

2.3.2 Incertitudes de mesure du banc de caractérisation magnétique

Nous avons mené une étude de répétabilité des mesures pour quantifier les incertitudes de mesure du banc de caractérisation macroscopique. En effet, cette étape est cruciale pour chaque étude expérimentale et notamment celle portant sur le vieillissement. Cette étude de répétabilité a pour but de décorrélérer les variations induites par le vieillissement de celles provoquées par les erreurs de mesures du banc sur de très longues périodes.

2.3.2.1 Influence de la variation de la température ambiante sur les mesures

Entre l'hiver et l'été, la température ambiante au laboratoire varie entre 15 et 35°C (écart de 20°C). Dans le but d'étudier l'influence de cette variation de température sur la précision des appareils de mesure et sur les propriétés du matériau magnétique, nous avons mené une étude de deux séries de mesures effectuées sur un échantillon nanocristallins de la nuance Z.

La première série de mesures, consiste à placer l'échantillon seul dans la chambre climatique et à faire varier très lentement la température en partant de 15°C jusqu'à 35°C. L'augmentation de la température est faite sur une durée de 22 heures. Le montage (dispositif de mesure) quant à lui est mis à une température ambiante constante de $T=33^\circ\text{C}$.

Pour la deuxième série de mesures, seul le montage qui sert à la caractérisation est mis dans la chambre climatique en appliquant toujours le même gradient de température, l'échantillon est maintenu à la température ambiante (au voisinage de 33°C).

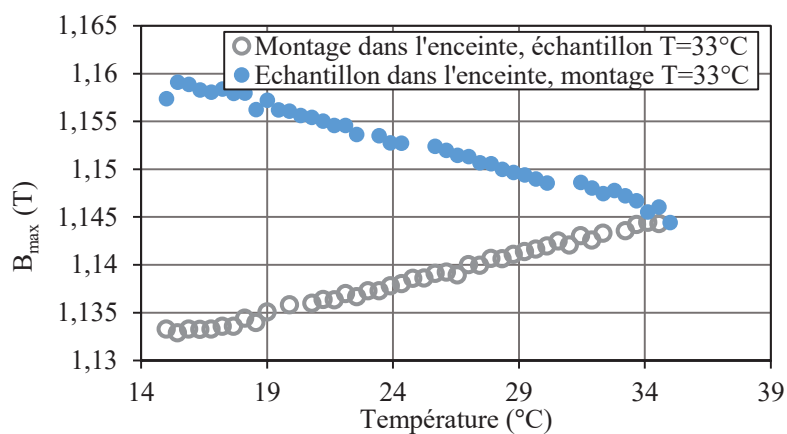


Figure 2-9 Variation de B_{\max} en fonction de la température (15-35°C) pour les deux séries de mesures.

La Figure 2-9 présente l'évolution de l'induction maximale (mesurée à $H_{\max}=50$ A/m) en fonction de la température pour les deux séries de mesures. La première série de mesures (courbe en bleu) montre que l'induction maximale diminue quand la température de l'échantillon augmente de 15 à 35°C. Cette allure est cohérente avec le comportement des matériaux nanocristallins expliqué par Herzer [17], [21].

Dans le cas de la deuxième série de mesures, l'induction maximale du matériau augmente quand la température du montage augmente. Nous expliquons cette variation par la sensibilité des composants de la carte d'intégration vis-à-vis de la variation de la température (condensateurs, résistance...etc).

Nous définissons le maximum d'incertitude de mesure par la relation (2-3) et le minimum d'incertitude de mesure par la relation (2-4) pour toutes les propriétés magnétiques relevées. Toutes les valeurs d'incertitudes sont récapitulées dans le Tableau 2-3.

$$\Delta PM^+(\%) = \left| \frac{PM_{\max} - PM_{\text{moy}}}{PM_{\text{moy}}} \right| \times 100 \quad (2.3)$$

$$\Delta PM^-(\%) = \left| \frac{PM_{\min} - PM_{\text{moy}}}{PM_{\text{moy}}} \right| \times 100 \quad (2.4)$$

Avec PM : propriété magnétique.

Tableau 2-3 Incertitudes des mesures à température variable (15-35°C)

		H _c	B _{max}	B _r	μ _{max}	P _{hys}	B _r /B _{max}
Première série : Echantillon en température variable	ΔPM _{0%} ⁺	1.553	0.596	0.466	2.18	0.629	0.24
	ΔPM _{0%} ⁻	1.027	0.692	0.508	2.32	0.665	0.157
Deuxième série : Montage en température variable	ΔPM _{0%} ⁺	0.375	0.493	0.382	3.46	0.539	0.322
	ΔPM _{0%} ⁻	0.679	0.514	0.461	3.00	0.968	0.198

Nous notons qu'un écart de température de 20°C de la température ambiante (entre l'été et l'hiver) peut créer une incertitude de maximum 3% sur les PM et ce quelle que soit la série de mesures (3% sur μ_{max} série 2). En conclusion, afin d'éviter ces incertitudes de mesures, nous placerons les échantillons ainsi que le montage de caractérisation dans une enceinte climatique à la température fixe de 20°C.

2.3.2.2 Répétabilité de mesures sur les nanocristallins type-Z à température fixe

L'étude consiste à faire plusieurs mesures en quasi-statique pendant plusieurs heures successives (avec un écart de 60 min entre chaque mesure) sur un tore nanocristallin type-Z en plaçant le montage et l'échantillon dans une enceinte climatique portée à 20°C. Grâce à l'automatisation du banc, chaque heure les deux caractérisations magnétiques suivantes sont effectuées :

- Une caractérisation à 50 A/m et 500 mHz afin de relever l'induction maximale B_{max}.
- Une caractérisation à 2A/m et 300 mHz pour relever les autres propriétés magnétiques.

Précisons que la dérive de l'intégrateur est corrigée :

- Avant la caractérisation : à l'aide d'un microcontrôleur qui permet de faire un « reset » de la carte d'intégration.
- Après la caractérisation : à l'aide d'un programme par une compensation de droite relevée dans un post traitement.

Les courbes de la Figure 2-10 présentent les variations relatives de chaque propriété magnétique par rapport à la valeur moyenne des 52 valeurs relevées (52 heures). Les incertitudes de mesure sur les différentes propriétés ne dépassent pas 1%, sauf pour la mesure de la perméabilité où la valeur de l'incertitude peut atteindre ~2%.

Le tableau suivant résume le minimum d'incertitude de mesure (2.4) et le maximum d'incertitude de mesure (2.3) :

Tableau 2-4 Incertitudes des mesures à température constante T=20°C.

PM	H _c	B _{max}	B _r	μ_r^{max}	P _{Hys}	B _r /B _{max}
$\Delta PM_{\%}^{+}$	0,534	0,098	0,01	1,465	0,478	0,092
$\Delta PM_{\%}^{-}$	0,667	0,057	0,072	1,302	0,283	0,083

Nous constatons des faibles incertitudes de mesure sur l'ensemble des propriétés magnétiques. Cependant, dans notre protocole de vieillissement, les essais de répétabilité sont faits chaque année, sur un échantillon témoin, afin de requantifier les incertitudes du banc et les recalibrer si des variations sont constatées. Les dernières incertitudes mesurées sur l'échantillon témoin après deux ans par rapport aux premières mesures donnent les résultats suivants :

$$H_c = 0.66 \pm 0.037(\text{A/m}); B_{\max} = 1.142 \pm 0.028 (\text{T}); B_r = 1.092 \pm 0.035 (\text{T});$$

$$\mu_r^{\max} = 985\,103 \pm 31\,301$$

Soient, en valeurs relatives :

$$H_c = 0.66 \pm 5.6\% (\text{A/m}); B_{\max} = 1.142 \pm 2.55\% (\text{T}); B_r = 1.092 \pm 3.2\% (\text{T});$$

$$\mu_r^{\max} = 985\,103 \pm 3.2\%$$

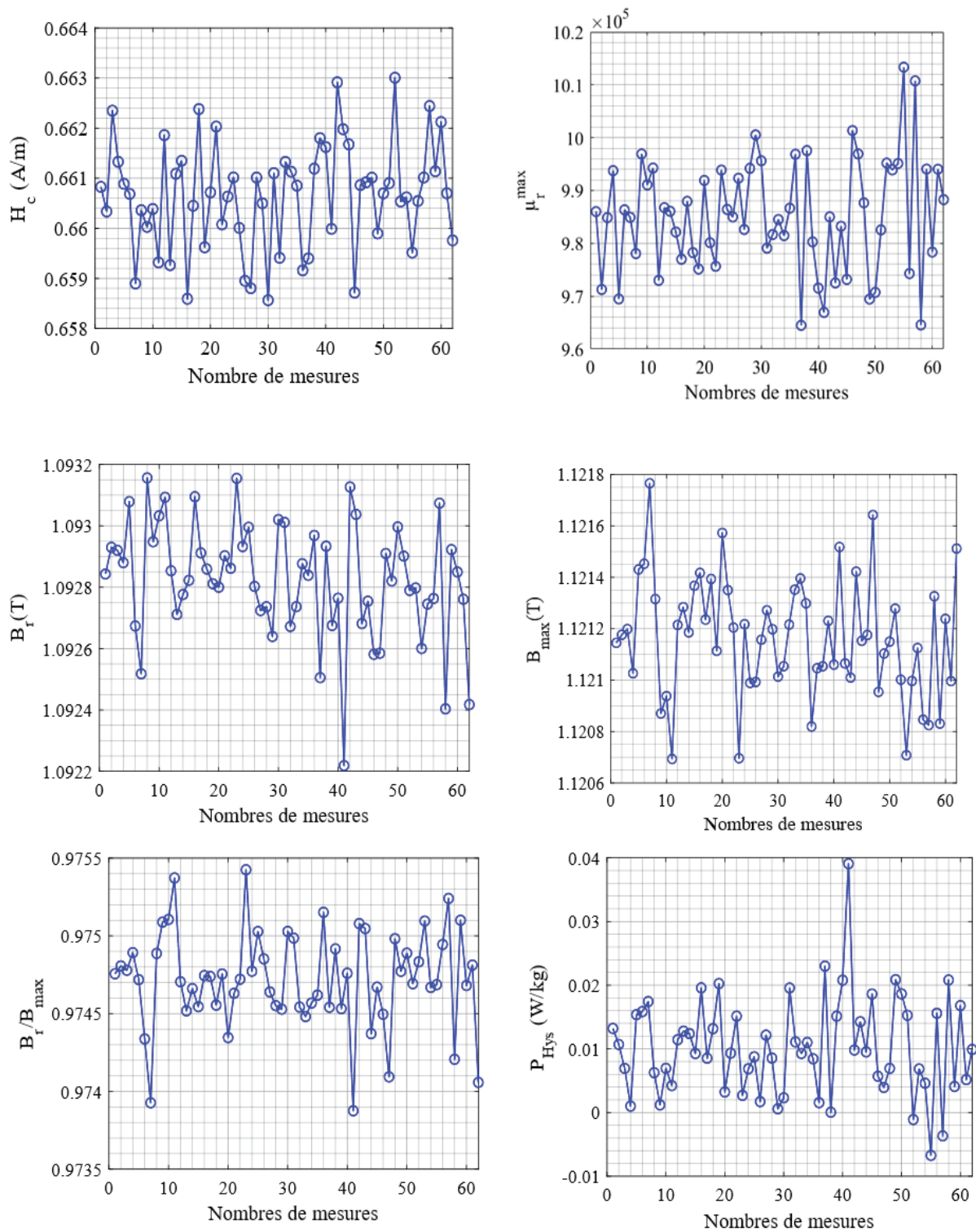


Figure 2-10 Mesures de répétabilité des différentes propriétés magnétiques des nanocristallins de type-Z.

2.3.3 Désaimantation et la courbe de première aimantation des matériaux magnétiques nanocristallins

L'état magnétique des matériaux nanocristallins lors du vieillissement est un paramètre très important à prendre en compte. En effet, comme l'explique Herzer [22] et démontré par des travaux antérieurs [66], pour les matériaux nanocristallins qui possèdent une induction rémanente élevée, le vieillissement à l'état désaimanté est totalement différent de celui des matériaux nanocristallins laissés à leur état magnétique rémanent.

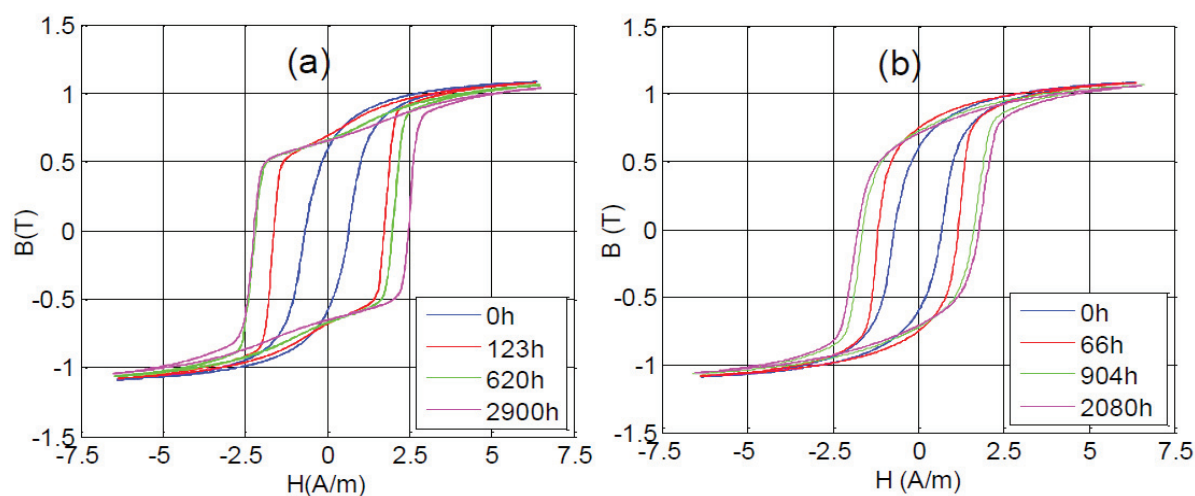


Figure 2-11 Cycles d'hystérésis statiques du nanocristallin type-R mesurés à 1 Hz pour plusieurs durées de vieillissement thermique accéléré à la température de 240°C. (a) : sans désaimantation ; (b) : avec désaimantation (reproduit de la source[66]).

En effet, la Figure 2-11 montre que la forme des cycles d'hystérésis des matériaux magnétiques nanocristallins de type-R vieillis à leur état magnétique rémanent devient de plus en plus rectangulaire, contrairement aux matériaux nanocristallins vieillis dans leur état désaimanté qui s'élargissent en gardant la forme du cycle rond.

Par ailleurs, la technique de désaimantation nous permet aussi d'avoir la courbe de première aimantation. Cette courbe constitue une mesure très importante dans notre étude car elle permet le calcul de l'énergie d'anisotropie totale du matériau qui est à son tour la clé pour comprendre le mécanisme du vieillissement des matériaux nanocristallins. De ce fait, la mise en place d'un protocole de désaimantation est une étape cruciale avant de commencer les essais du vieillissement.

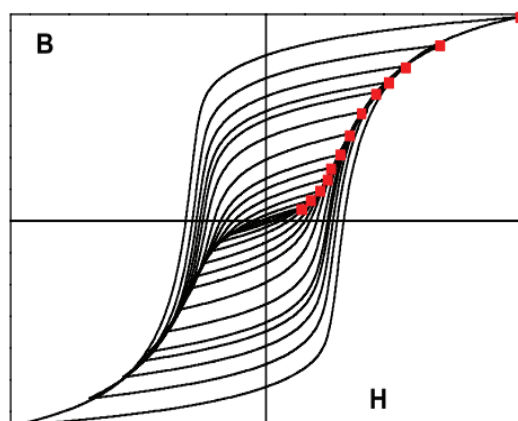


Figure 2-12 Famille de cycles d'hystérésis concentriques[67].

La méthode de désaimantation que nous avons utilisée est la méthode classique qui consiste à appliquer une excitation sinusoïdale amortie au matériau. Autrement dit, le matériau est excité jusqu'à la saturation puis le champ d'excitation diminue d'une manière lente jusqu'à un champ nul, avec l'obligation de garder la même dynamique du signal d'excitation.

Finalement, nous pouvons obtenir la courbe de première aimantation par deux procédés :

- En faisant une caractérisation puis en mesurant la courbe B-H sur un quart de période.
- En reliant les couples B_{\max} - H_{\max} des cycles mineurs centrés (Figure 2-12) obtenus grâce à une excitation amortie.

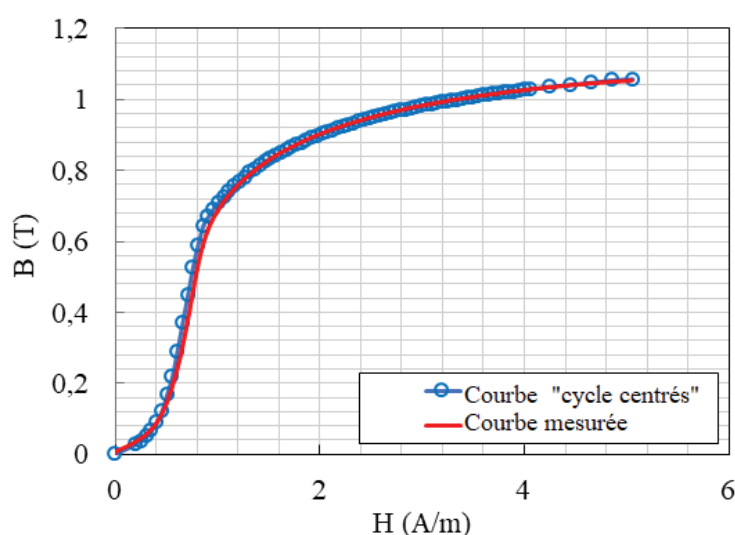


Figure 2-13 Comparaison entre la courbe de première aimantation construite à partir des « cycles centrés » (en bleue) et celle mesurée (en rouge) des nanocristallins de type-R.

En effet, la courbe de première aimantation « cycles centrés » et la courbe de première aimantation dite « mesurée » à partir d'un état désaimanté, présentent des profils similaires [6], [68]. Nous avons pu vérifier ce fait pour la nuance des matériaux nanocristallins type-R. La Figure 2-13 montre la superposition des deux courbes obtenues. Contrairement aux matériaux nanocristallins type-R, la courbe de première aimantation « cycles centrés » et la courbe mesurée des nanocristallins type-Z ne sont pas identiques (Figure 2-14). Nous remarquons que la courbe mesurée commence par un état magnétique rémanent, autrement dit, le matériau n'est pas dans un état désaimanté et donc la courbe mesurée ne représente pas réellement la courbe de première aimantation.

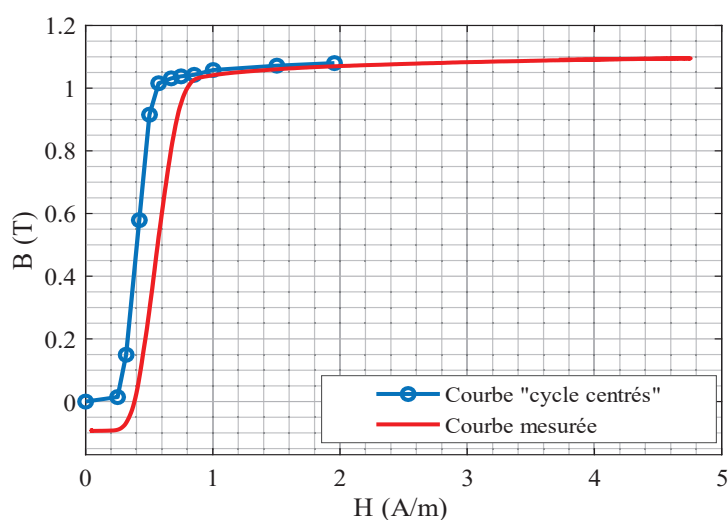


Figure 2-14 Comparaison entre la courbe de première aimantation construite à partir des « cycles centrés » (en bleue) et celle mesurée (en rouge) des nanocristallins type-Z.

Les matériaux magnétiques à cycle rectangulaire sont très difficiles à désaimanter vu la très forte non-linéarité de leurs cycles B-H et notamment à très bas champ magnétique proche de leur champ coercitif et leur champ rémanent très élevée ($B_r > 0.8$ T).

Nous avons testé l'influence de plusieurs paramètres en particulier le degré d'amortissement du champ appliqué en fonction de la non linéarité et notamment au niveau du coude et de la zone de Rayleigh. Malheureusement, nous n'avons jamais réussi à désaimanter totalement la nuance type-Z, néanmoins, nous avons pu définir les paramètres (le coefficient de dynamique $H \cdot f$, le champ d'excitation maximal appliqué H_{\max} et ΔH le décrément du champ d'excitation) qui nous permettent d'avoir une aimantation restante quasiment faible dans un intervalle de $B \leq \pm 90$ mT. Pour des raisons de répétabilité, nous avons utilisé la méthode des « cycles centrés » pour construire la courbe de première aimantation et ainsi, calculer l'énergie d'anisotropie totale

(chapitre 3). Le protocole décrit dans le diagramme Figure 2-15 a été automatisé, sachant que nous avons fait plusieurs essais pour fixer soigneusement certains paramètres. Le décrétement du champ appliqué ΔH a été choisi dans l'objectif d'avoir une désaimantation progressive lente et d'avoir une précision sur la courbe notamment dans la zone de Rayleigh et le coude. D'autre part, ce paramètre ne doit pas être trop faible pour ne pas augmenter le temps de caractérisation par échantillon.

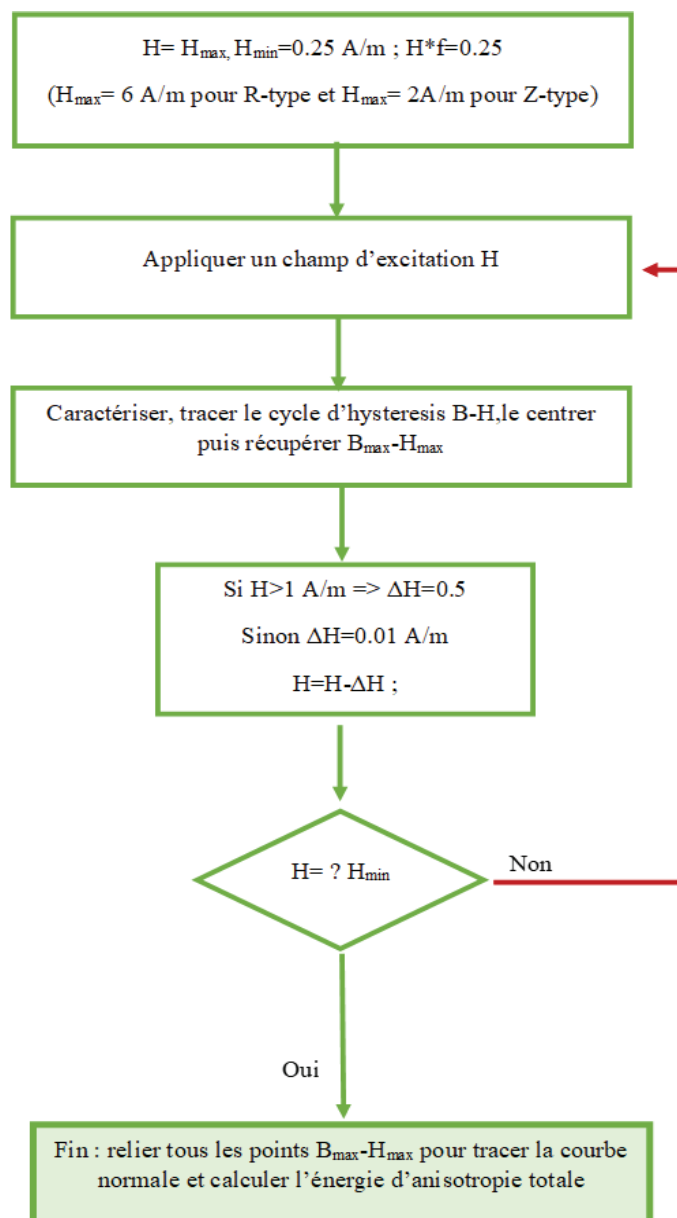


Figure 2-15 Protocole de la courbe de première aimantation avec la méthode des cycles concentriques pour les nanocristallins type-Z.

2.3.4 Caractérisations en dynamique

Dans la deuxième partie de ce travail de thèse, nous étudions le vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins sous contraintes thermiques combinés avec des contraintes électriques. Autrement dit, le matériau est magnétisé tout au long de la période de vieillissement sachant que la magnétisation est assurée par des cartes électroniques dédiées aux capteurs de courant fluxgate fournis par notre partenaire LEM.

En effet, LEM, leader sur le marché des solutions de mesure de grandeurs électriques propose des capteurs de courant utilisés pour la protection humaine dans les bornes de recharge, et aussi, des capteurs utilisés dans les systèmes de gestion des batteries. Ces derniers permettent aux fabricants de batteries pour véhicules électriques d'atteindre de grandes précisions dans la mesure des courants entrants et sortants des batteries. Cette précision de mesure permet aux constructeurs d'augmenter l'autonomie de leurs véhicules, de maintenir la batterie dans de bonnes conditions de vie et de maximiser l'utilisation du pack batterie. LEM, propose cette technologie de capteurs pas seulement pour l'automobile, mais aussi pour l'imagerie médicale et les énergie renouvelable (éoliennes, smart grid).

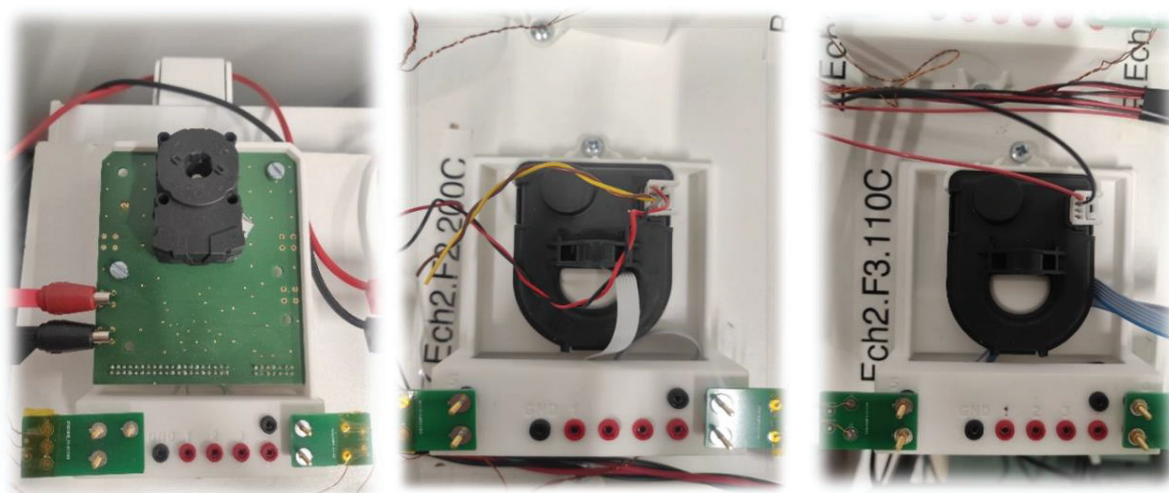


Figure 2-16 Capteurs de courant fluxgate LEM.

Dans cette thèse, nous avons utilisé trois capteurs de courant fluxgate (Figure 2-16 Capteurs de courant fluxgate LEM.) pour évaluer le vieillissement magnétique des nanocristallins. Les noms commerciaux de ces capteurs et les détails sur leur circuit d'asservissement ne peuvent pas être donnés dans ce manuscrit pour une raison de confidentialité.

Les cartes électroniques des capteurs fluxgate sont utilisées comme des dispositifs pour exciter de façon variable des nanocristallins lors du vieillissement. Ainsi, elles sont utilisées comme systèmes de caractérisation en dynamique avec des fréquences différentes :

- Capteur (A) : Une fréquence d'excitation de 22 kHz.
- Capteur (B) : Une fréquence d'excitation de 1100 Hz.
- Capteur (C) : Une fréquence d'excitation de 800 Hz.

La mise en place des essais de vieillissement avec excitation (Figure 2-17) a été très coûteuse en termes de temps et d'efforts : Soudure des composants sur les cartes électroniques, connexions entre les cartes électroniques et les supports, connecteurs pour l'alimentation des capteurs, connexions entre les supports et les tores, déplacements à l'entreprise TCT (Imphy) afin de bobiner les tores...etc.

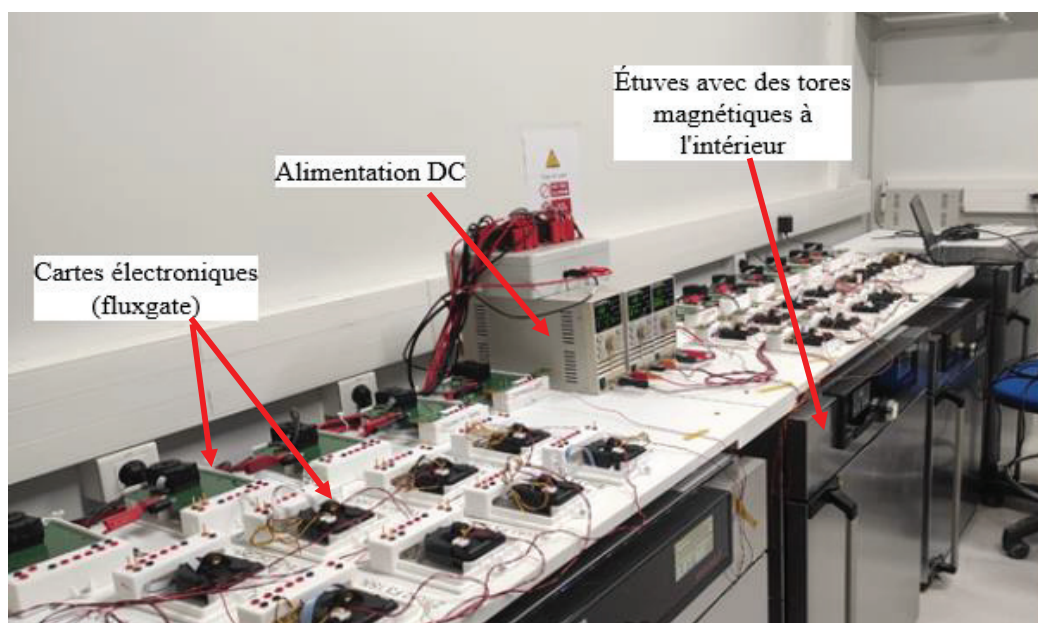


Figure 2-17 Banc d'essais du vieillissement thermique et électrique.

2.4 Bruit de Barkhausen (Magnetic Barkhausen Noise (MBN))

2.4.1 Principe de génération du bruit de Barkhausen

En 1919, les domaines magnétiques furent mis en évidence pour la première fois d'une façon indirecte par Barkhausen [69]. Cette découverte a montré que le processus d'aimantation d'un matériau ferromagnétique lors de l'application d'un champ extérieur, ne se fait pas d'une manière continue.

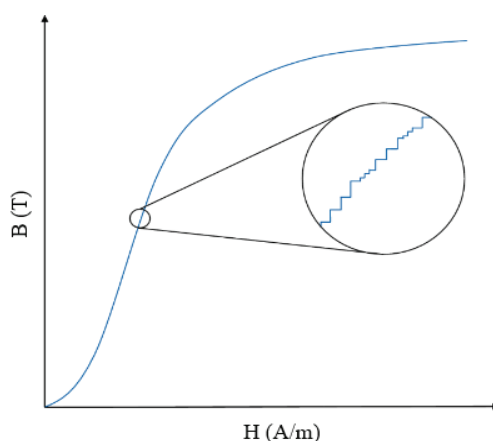


Figure 2-18 Aimantation dans un matériau suite à l'application d'un champ extérieur[70].

En réalité, l'aimantation se fait d'une manière discontinue (Figure 2-18) dû aux mouvements des parois qui se fait par des sauts face à des défauts microstructuraux (impuretés, dislocations, inclusions...).

Suite à l'application d'un champ magnétique, les parois de Bloch commencent à se déplacer mais elles se trouvent ancrées face à des défauts microstructuraux. En augmentant le champ extérieur, les parois commencent à se comprimer autour de ces défauts, puis elles se propagent d'un obstacle à un autre (Figure 2-19). Au moment, du désancrage de chaque paroi, une variation de flux brusque est émise, c'est ce qui représente un saut de Barkhausen.

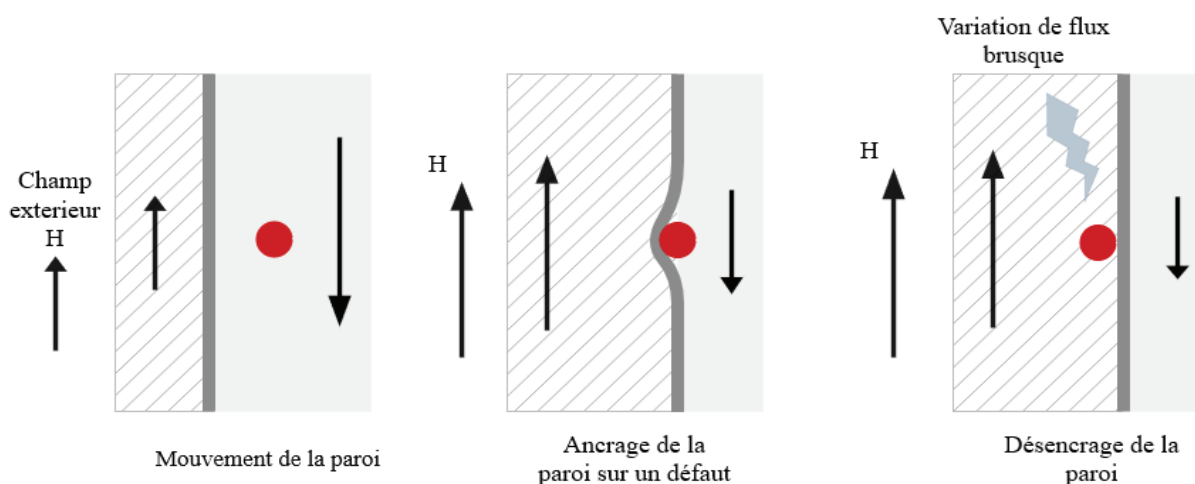


Figure 2-19 Désancrage d'une paroi lors du processus d'aimantation.

La plupart des activités dues aux sauts de Barkhausen se produisent près du champ coercitif (Figure 2-20) qui représente la valeur moyenne des forces de désancrage des parois. L'emplacement et la taille des pics peuvent changer en raison de changements dans la distribution des défauts, en effet, les travaux de G.A Matzkanin et al [71] montrent que pour deux échantillons du même matériau

mais avec des distributions de défauts différentes, le profil du bruit de Barkhausen et la position des pics sont différents.

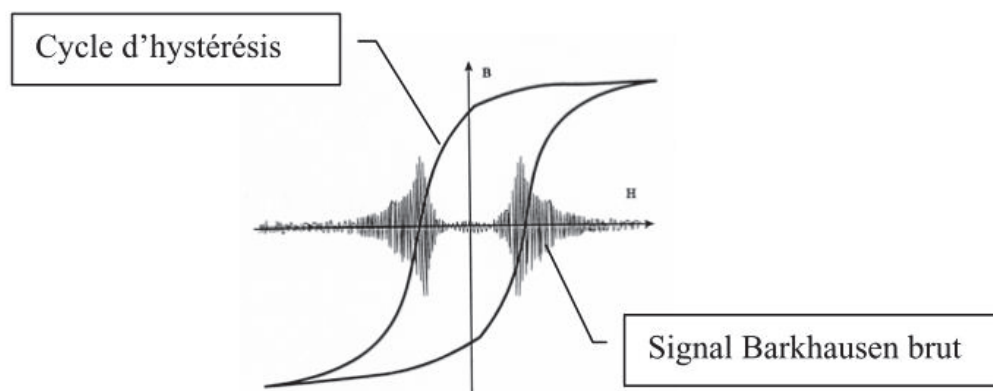


Figure 2-20 Distribution du bruit de Barkhausen[72].

2.4.2 Utilisation du bruit de Barkhausen dans des applications

Étant une mesure locale non destructive et sensible à la microstructure (magnétique et cristalline), l'effet Barkhausen est très utilisé pour caractériser les états de changements microstructuraux des matériaux magnétiques. Les domaines d'applications industrielles de cette technique sont nombreux :

- Contrôle de la taille des grains.
- Évaluation de la dureté.
- Décarburation superficielle des aciers.
- Étude du vieillissement.
- Évaluation des distributions des dislocations.
- Évaluation des contraintes résiduelles.
- Étude de fatigue dans les aciers.

Étude de vieillissement :

Par exemple, Buttle et al. [73] ont étudié l'évolution de la taille des impuretés non-magnétique lors du vieillissement dans l'alliage Incoloy 904 ($\text{Ni}_{33.8}\text{Fe}_{51}\text{Co}_{14}\text{Ti}_{1.2}$) en se basant sur l'évolution du bruit de Barkhausen.

J.N. Mohapatra et al [56], ont analysé l'évolution du bruit de Barkhausen pour expliquer le mécanisme du vieillissement des aciers 5Cr-0.5Mo. En effet, le vieillissement de ce type de

matériau a été associé à la migration du carbone vers les joints de grains, de plus, les mesures TEM ont montré la formation de nouveaux carbures. Ces carbures non seulement exercent des forces d'épinglage mais produisent également un grand champ de démagnétisation qui retarde le mouvement de la paroi des domaines.

Évaluation des contraintes résiduelles :

Maillard [74] a étudié l'évolution du signal de Barkhausen en fonction d'une contrainte appliquée de traction pour différents aciers. Dans cette étude, le bruit de Barkhausen augmente nettement avec la contrainte appliquée. Comparé à la réponse de Barkhausen du même matériau hors contrainte, le signal obtenu sera alors de faible amplitude, positionné à forte valeur de champ et la largeur mi-hauteur plus grande.

En ce qui concerne les matériaux magnétiques nanocristallins, peu de travaux basés sur le bruit de Barkhausen existent. Dans les travaux [75][76], une forte corrélation a été démontrée entre l'évolution de la taille des grains et le bruit de Barkhausen et le champ coercitif lors du recuit.

Dans nos travaux, nous avons utilisé les paramètres du bruit de Barkhausen qualitativement pour étudier l'évolution de la taille des domaines magnétiques lors du vieillissement.

2.4.3 Technique de mesure du bruit de Barkhausen

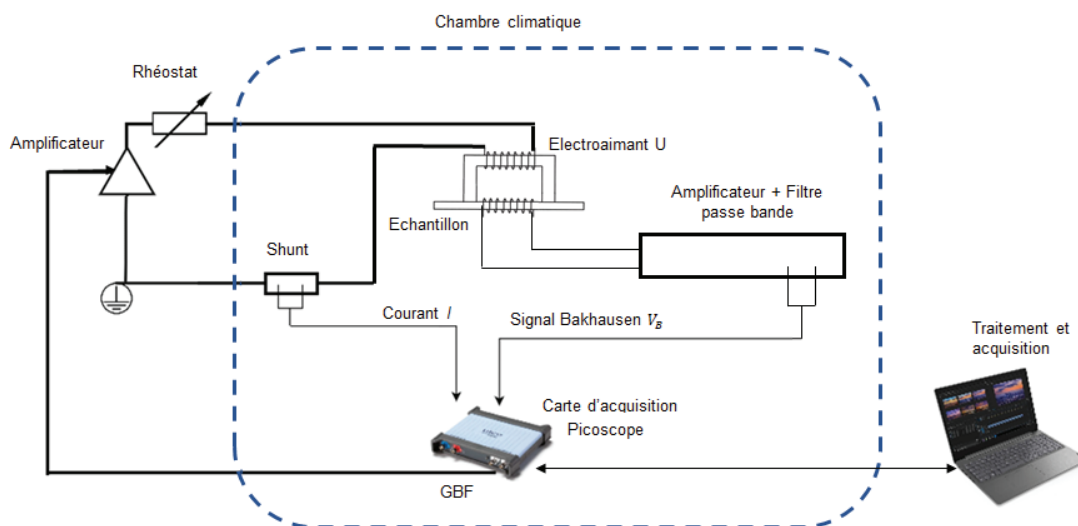


Figure 2-21 Schéma de montage de la mesure du bruit de Barkhausen.

Les mesures du bruit de Barkhausen sont faites en utilisant le système expérimental présenté dans la Figure 2-21. Un champ magnétique variable est appliqué sur un échantillon ferromagnétique par l'injection d'un courant à travers des spires primaires. La réponse magnétique de l'échantillon est

recueillie par la mesure de la tension V_B aux bornes des deux bobines d'Helmutz connectées en opposition autour de l'échantillon. Ceci permet de supprimer la composante continue du signal en ne conservant que les sauts discontinus (sauts de Barkhausen). Le signal Barkhausen est donné par la loi de Faraday :

$$V_B(t) = N_{s2} \cdot \left(\frac{d\phi_1(t)}{dt} - \frac{d\phi_2(t)}{dt} \right) \quad (2.5)$$

Ce signal est reproductible et plus facile à exploiter, néanmoins, la mesure de l'enveloppe engendre une perte d'informations puisque le signal est lissé. Dans ce cas, il faut optimiser le choix de la période de filtrage T_e .

Après l'obtention de l'enveloppe V_{MBN} , nous pouvons l'exploiter en analysant, la position du pic, la largeur mi-hauteur, la valeur maximale du pic, la distribution des sauts...etc[77]. Ces paramètres servent à évaluer dans plusieurs travaux la microstructure cristalline des matériaux magnétiques.

2.5 Microscope Optique à Effet Kerr (MOKE)

Lorsqu'une onde électromagnétique est réfléchiée sur un milieu magnétique, la polarité de celle-ci n'est pas la même que celle de l'onde incidente. En effet, les domaines magnétiques du matériau vont influencer la polarisation de l'onde réfléchiée, c'est l'effet Kerr [78] [79]. Ce changement de polarisation est traduit par une variation de l'intensité du faisceau par un analyseur. Le faisceau est ensuite capté et transformé en image via un traitement d'image (Figure 2-22).

La rotation est faible, généralement inférieur à un degré, et dépend de la microstructure du matériau, de la direction et de l'amplitude de la magnétisation par rapport au plan d'incidence du faisceau de lumière. Si le matériau n'est pas magnétique, il n'y a pas de rotation du plan de la polarisation de la lumière incidente. En raison du petit angle de rotation du plan de polarisation, le contraste entre les domaines adjacents tend à être faible, donc tous les éléments optiques doivent être de haute qualité et bien ajustés. Cependant, la méthode Kerr est idéale pour l'observation des domaines magnétiques (Figure 2-23) qui peut être appliquée aux échantillons massifs à la fois et aux films minces.

Le dispositif expérimental utilisé dans cette étude de vieillissement est composé d'un système optique et d'un système d'imagerie comportant une caméra reliée à un dispositif de traitement d'images.

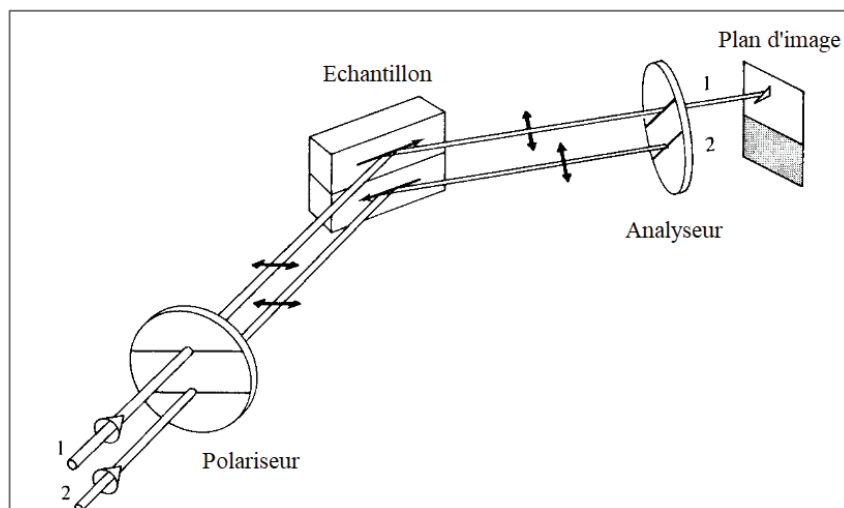


Figure 2-22 Réflexion d'une onde polarisée sur un échantillon ferromagnétique [4].

Il y a trois configurations différentes de l'effet Kerr selon la direction de l'aimantation :

- L'effet Kerr polaire : la magnétisation est perpendiculaire à la surface. Les effets sont simplement bien plus faibles, à cause de la faible profondeur de pénétration.
- L'effet Kerr transversal : où l'aimantation est parallèle à la surface et perpendiculaire au plan d'incidence.
- L'effet Kerr longitudinal : où l'aimantation est parallèle à la surface et parallèle au plan d'incidence. On observe une rotation de polarisation de l'onde réfléchie fonction de l'aimantation. C'est cet effet que l'on met à contribution pour la visualisation des structures en domaines dans les matériaux magnétiques doux.

Pour un angle d'incidence faible, les trois effets présentent une dépendance différente du champ magnétique. Une combinaison des configurations (polaire-longitudinal, polaire-transversal) est possible mais est parfois très difficile à interpréter.

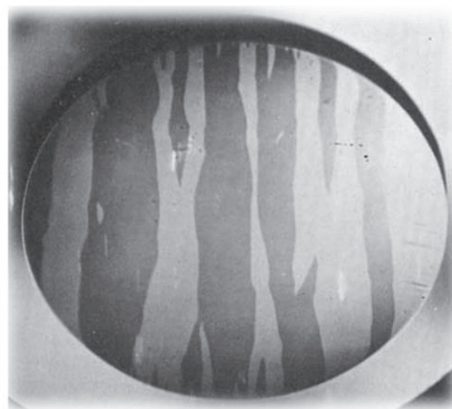


Figure 2-23 Domaines magnétiques permalloy 81 observés par MOKE [4].

2.6 Conclusions du chapitre

Les travaux expérimentaux effectués ont été très coûteux en termes d'efforts et de temps, notamment, la préparation des échantillons (bobinage et caractérisations), la mise en place des protocoles de vieillissement, la mise en place de la mesure du bruit de Barkhausen et la mise en place des essais du vieillissement avec excitation par le capteur de courant fluxgate.

L'automatisation du banc de caractérisation magnétique macroscopique (en quasi statique) nous a permis d'optimiser le temps de caractérisation et de procéder aux différents essais de répétabilité, de mesures en températures et de désaimantation ; Signalons que cette dernière reste une étape longue malgré les optimisations faites.

Nous avons essayé d'effectuer d'autres mesures microscopiques : microscopie électronique en transmission (TEM) et la microscopie à force magnétiques (MFM), malheureusement, les résultats n'étaient pas exploitables. A la fin, nous avons défini un protocole de vieillissement thermique que nous présentons dans le chapitre 3 et un protocole pour le vieillissement thermique et électrique que nous présentons dans le chapitre 4.

Chapitre 3 : Évolution des propriétés magnétiques des matériaux nanocristallins lors du vieillissement thermique

3.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les différents résultats du vieillissement thermique des matériaux magnétiques nanocristallins du lot N°1 traités par le recuit A. Nous commençons par les résultats des caractérisations magnétiques macroscopiques de la nuance type-Z (recuit sous champ longitudinal) lors du vieillissement à l'état désaimanté. Ensuite, nous présentons des résultats des deux autres nuances, type-R (recuit sans champ) et, type-F (recuit sous champ transversal) qui ont été étudiées dans les travaux de recherche [55].

Afin de définir l'origine de la dégradation des propriétés macroscopiques, nous explorons l'évolution de la microstructure à l'aide de mesures microscopiques (DRX...) et de mesures locales (Barkhausen). A partir de ces mesures et d'autres mesures (de magnétostriction, effet Kerr) nous envisageons une analyse des énergies d'anisotropie lors du vieillissement pour chaque nuance.

Par la suite, nous présentons une étude en appliquant cette fois un champ dans le sens longitudinal du ruban afin de saturer les échantillons lors du vieillissement. Cet essai permet de vérifier les hypothèses faites sur l'origine du mécanisme de vieillissement dans les nanocristallins type-Z et le rôle des énergies d'anisotropies lors du vieillissement des autres nuances.

Ensuite, nous présentons l'influence de la température de mesure sur l'évolution des propriétés magnétiques des matériaux nanocristallins. Nous commençons par comparer le comportement magnétique d'un nanocristallin type-Z à un nanocristallin type-R sous différentes températures de caractérisations (-55 à 125°C). Puis, nous étudions l'influence du vieillissement sur le comportement en température des nanocristallins type-Z.

Finalement, nous étudions le vieillissement thermique avec désaimantation des nanocristallins type-R et type-Z du lot N°2, élaborés par un nouveau traitement thermique (recuit B) développé par l'entreprise APERAM Imphy. Le but de ce recuit est de stabiliser les performances des

matériaux nanocristallins à long terme, par ailleurs, nous comparons leur stabilité dans le temps par rapport à celle des échantillons traités par le recuit A.

(Les informations des traitements thermiques (recuits A et B) sont strictement confidentielles et sont la propriété d'APERAM, par conséquent, elles ne peuvent pas être publiées dans ce manuscrit).

3.2 Vieillessement des matériaux nanocristallins au niveau macroscopique

3.2.1 Protocole du vieillissement

Nous étudions la nuance type-Z sous cinq températures de vieillissement -55, 110, 150, 200 et 240°C. Nous considérons deux échantillons par température pour vérifier la dispersion des propriétés magnétiques entre les tores. Les étapes du protocole de vieillissement sont :

- Deux caractérisations magnétiques en quasi-statique à champ d'excitation magnétique imposé sont faites à $t = 0$ heure (avant vieillissement) :
Caractérisations à champ d'excitation imposé élevé de 50 A/m et $f = 1$ Hz pour relever l'induction maximale B_{\max} . Le coefficient de foisonnement est réglé pour fixer $B_{\max, 50 \text{ A/m}} = 1.15$ T.
Caractérisations à champ d'excitation faible (2 à 6 A/m) et $f = 300$ mHz pour relever avec précision les propriétés magnétiques telles que le champ coercitif H_c , la perméabilité maximale μ_r^{\max} , les pertes statiques P_{Hys}
- L'étape qui suit les caractérisations, consiste à désaimanter les échantillons. La désaimantation est faite avec la méthode des cycles concentriques afin de relever la courbe de première aimantation et pouvoir calculer l'énergie d'anisotropie totale E_K (section 2.3.3).
- Après la désaimantation, tous les échantillons sont replacés dans des étuves.
- Après un intervalle de temps X empiriquement choisi, les échantillons exposés à la plus haute température sont sortis de l'étuve, une fois refroidis, ces échantillons sont mis dans une chambre climatique réglée à 20°C et caractérisés (voir étape 1). Si les caractérisations des échantillons ne révèlent pas de changement de propriétés alors on double l'intervalle de temps de vieillissement pour toutes les températures ($2 \times X$). Si les caractérisations révèlent des changements alors nous caractérisons les échantillons soumis à des

températures inférieures puis on double l'intervalle de temps de vieillissement suivant ($2 \times X$).

Les deux nuances type-F et type-R des matériaux nanocristallins ont été étudiées dans les travaux [55], [80] à quatre températures (100, 150, 200 et 240°C) en suivant le même protocole de vieillissement détaillé ci-dessus, à l'exception de la non désaimantation des nanocristallins type-F vu leur induction rémanente qui est très faible.

Le Tableau 3-1 présente les valeurs moyennes sur 8 échantillons de chaque nuance des propriétés magnétiques en quasi statique avant vieillissement, des nanocristallins type-Z mesurés à $H_{\max}=2$ A/m, $f=300$ mHz et des nanocristallins type-R mesurés à $H_{\max}=6$ A/m, $f=1$ Hz et des nanocristallins type-F mesurés à $H_{\max}=50$ A/m, $f=1$ Hz.

Tableau 3-1 Propriétés magnétiques en quasi-statique des trois nuances de nanocristallins avant vieillissement.

Nuance	H_c (A/m)	B_r (T)	μ_r^{\max}	E_K (J/m ³)
Type-Z	0.60	1.02	1100000	1.8
Type-F	0.4	0.02	39000	16
Type-R	0.66	0.6	43000	3.74

Les propriétés magnétiques (PM) relevées pour chaque étape de vieillissement sont représentées en valeurs relatives par rapport aux valeurs avant vieillissement :

$$\frac{\Delta PM}{PM} (\%) = \frac{PM(t = 0h) - PM(t = t_a)}{PM(t = 0h)} \cdot 100 \quad (3.1)$$

Avec t_a : temps de vieillissement.

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 .

3.2.2 Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-Z

La Figure 3-1 montre l'évolution des cycles d'hystérésis mesurés en quasi statique pour différentes durées de vieillissement à 200°C.

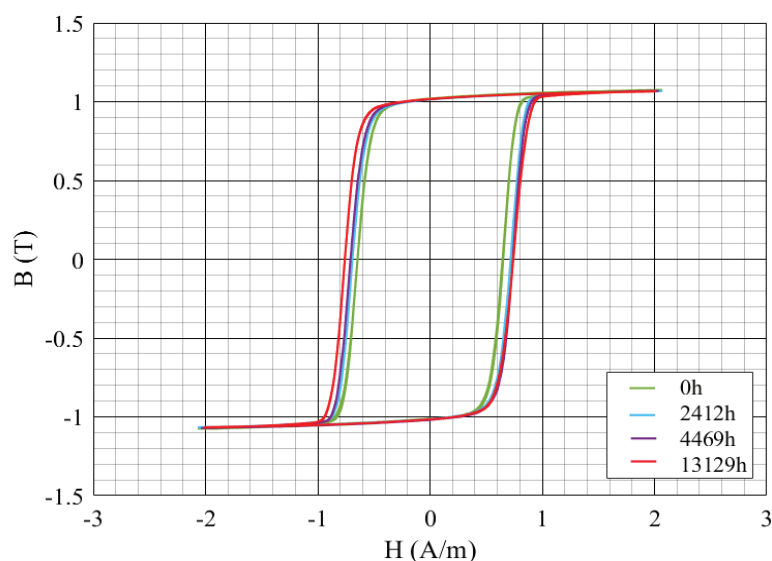


Figure 3-1 Évolution des cycles B-H quasi statique (2A/m, $f=300$ mHz) des nanocristallins type-Z lors du vieillissement avec désaimantation (VAD) à 200°C.

Les cycles s'élargissent en fonction de la durée de vieillissement ce qui traduit une augmentation du champ coercitif et des pertes par hystérésis. La perméabilité maximale diminue, cependant la rectangularité (B_r/B_{max}) des cycles et l'induction maximale restent constantes tout au long de la durée du vieillissement.

La Figure 3-2 présente l'évolution du champ coercitif lors du vieillissement à trois températures. L'évolution est nettement sensible pour le vieillissement accéléré (200°C) où le champ coercitif a augmenté de 16 % après 13 000 heures de vieillissement. Pour la température de 150°C, le champ coercitif a augmenté de 4% après 8000 heures. Pour les températures 150 et 110°C les variations restent noyées dans l'incertitude de mesure ($\pm 5.6\%$). La température négative -55°C n'est pas présente car aucune variation n'est constatée à ce jour (13 000 heures).

La Figure 3-3 présente l'évolution de la perméabilité maximale lors du vieillissement à quatre températures. L'évolution est la plus importante pour le vieillissement accéléré à 200°C où la perméabilité μ_r^{max} a diminué de 16% après 13 000 heures de vieillissement. Tandis que pour les températures 150 et 110°C, les variations sont très faibles et restent dans l'intervalle d'incertitude de mesure ($\pm 3.2\%$).

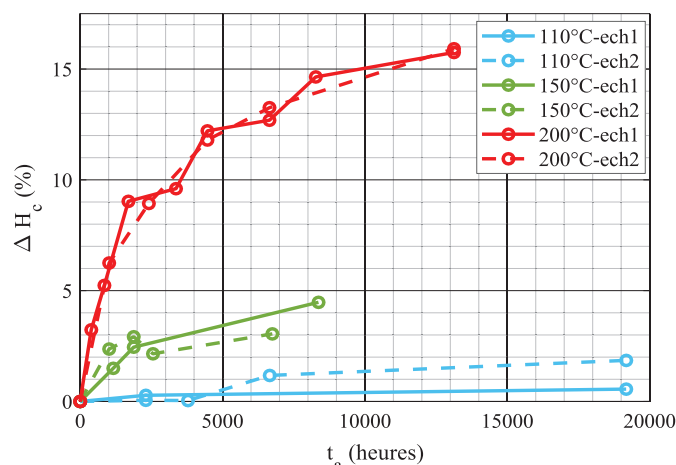


Figure 3-2 Évolution du champ coercitif des nanocristallins type-Z lors du vieillissement avec désaimantation (VAD).

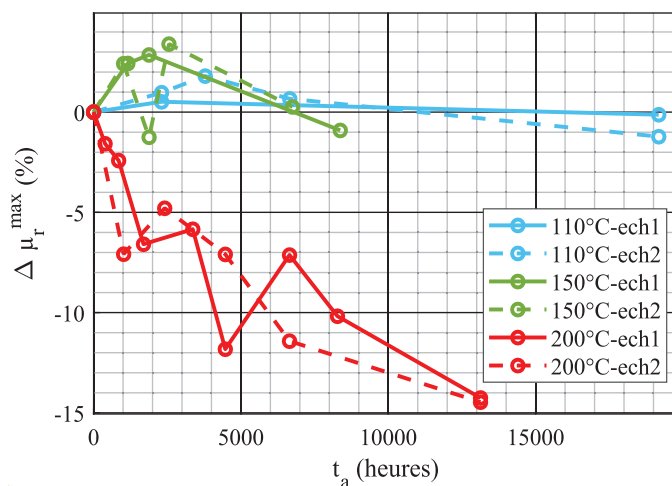


Figure 3-3 Évolution de la perméabilité maximale des nanocristallins type-Z lors du vieillissement avec désaimantation (VAD).

Les pertes par hystérésis sont calculées par la surface du cycle d'hystérésis mesuré en quasi statique. La Figure 3-4 présente l'évolution des pertes par hystérésis sous différentes températures de vieillissement. La variation la plus importante est constatée pour le vieillissement accéléré à 200°C où les pertes ont augmenté en suivant la même cinétique que celle du champ coercitif représenté dans la figure précédente (16% après 13 000 heures de vieillissement). Pour la température de 150°C, les pertes augmentent de 4% de leur valeur initiale après 8000 heures. Pour -55°C et 110°C, aucune variation n'est constatée.

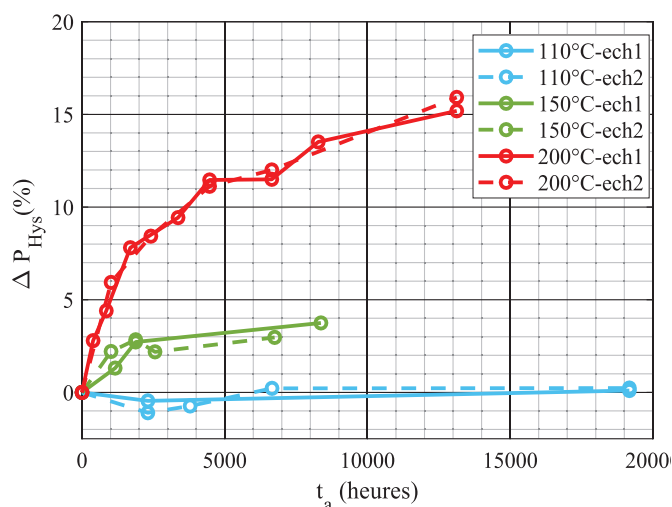


Figure 3-4 Évolution des pertes par hystérésis des nanocristallins type-Z lors du vieillissement avec désaimantation (VAD).

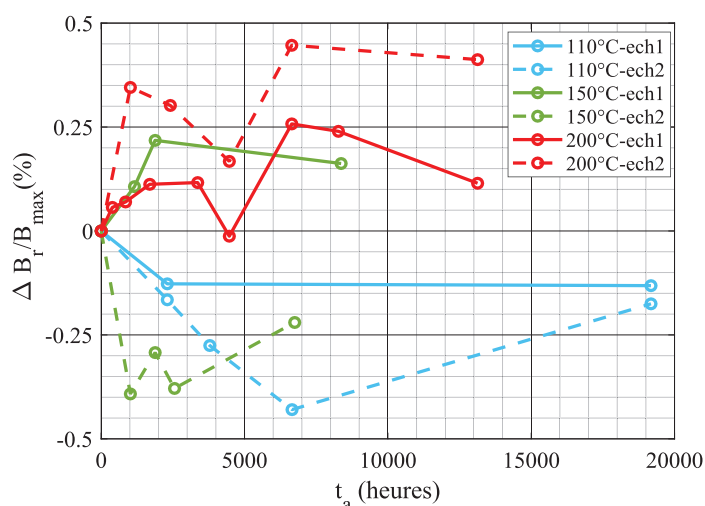


Figure 3-5 Évolution de B_r/B_{\max} des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement avec désaimantation (VAD).

La Figure 3-5 montre que la rectangularité des cycles des nanocristallins type-Z n'a pas changé lors du vieillissement aux quatre températures, les variations observées ($<0.5\%$) sont dues aux incertitudes de mesures.

3.2.3 Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-F

Après presque 13 000 heures de vieillissement thermique, les matériaux nanocristallins type-F montrent une forte dégradation de certaines propriétés magnétiques à 200°C et 240°C.

La Figure 3-6 montre que pour les vieillissements à 100 et 150°C, H_c présente une diminution faible (diminution de 8% après 5000 heures de vieillissement à 100°C et une augmentation de 2%

après 2500 heures de vieillissement à 150°C). Pour le vieillissement à 240°C, H_c présente des évolutions notables et semble atteindre une asymptote de stabilisation après 50% d'augmentation. Quant à la perméabilité maximale (Figure 3-6), elle a diminué de 13% de sa valeur initiale lors du vieillissement à 240°C pendant 13000 heures. Pour les quatre températures, la cinétique de l'évolution est la même jusqu'à 1000 heures. Après 1000 heures de vieillissement, l'évolution suit une autre cinétique.

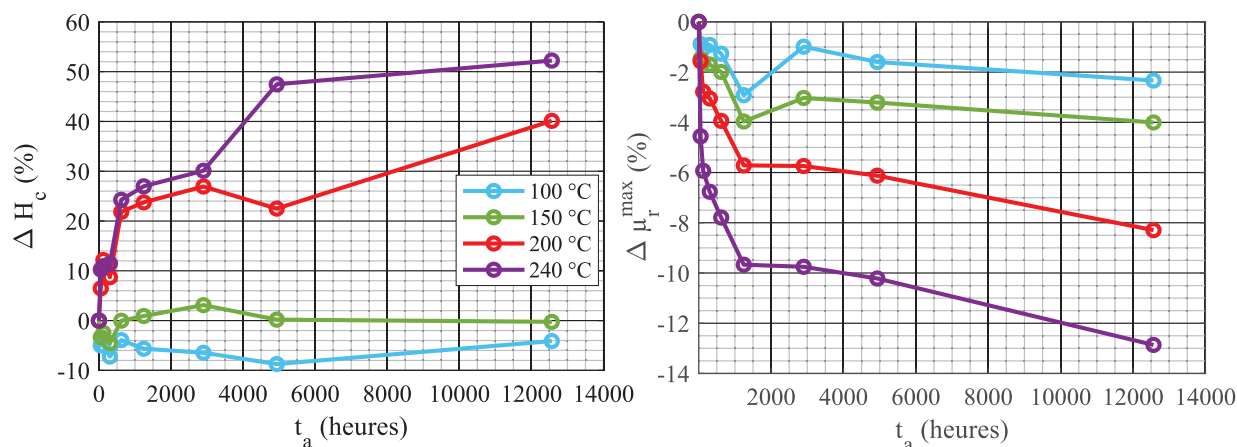


Figure 3-6 Évolutions du champ coercitif (à gauche) et de la perméabilité maximale (à droite) des matériaux nanocristallins type-F lors du vieillissement thermique [50].

3.2.4 Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-R

Après 5000 heures de vieillissement thermique, les matériaux nanocristallins type-R montrent une forte dégradation de leurs propriétés magnétiques pour les hautes températures. La Figure 3-7 montre que pour le vieillissement à 100°C, le champ coercitif H_c ne présente aucune variation, d'autre part, une augmentation de la même cinétique est constatée pour les autres températures (175% après 5000 heures à 240°C).

Une faible diminution (moins 2% après 5000 heures) est constatée au niveau de la perméabilité maximale à 100 et 150°C ce qui est dû aux incertitudes de mesure contrairement au vieillissement à hautes températures (200 et 240°C) où nous remarquons une forte diminution. Pour les deux propriétés magnétiques nous n'avons toujours pas atteint une asymptote de stabilisation après 5000 heures de vieillissement.

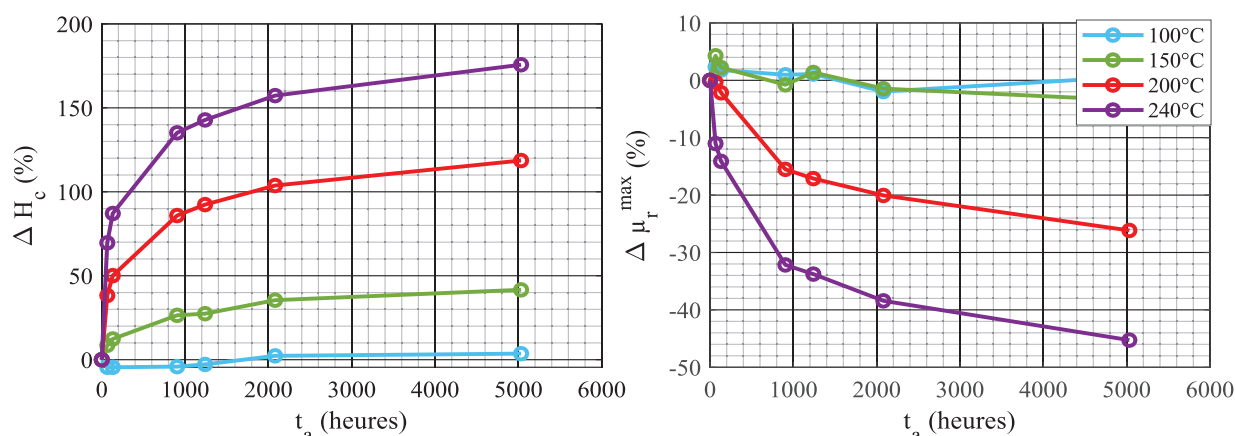


Figure 3-7 Évolutions du champ coercitif (à gauche) et de la perméabilité maximale (à droite) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement thermique avec désaimantation (VAD) [50].

D'après ces résultats, nous constatons que le comportement lors du vieillissement est différent pour chacune des nuances. Afin de comprendre l'origine du vieillissement dans les matériaux nanocristallins et de trouver une corrélation avec la microstructure, nous avons effectué différentes mesures locales et microscopiques sur des échantillons vieillis et non vieillis.

3.3 Évolution de la microstructure

Des mesures de DRX (Diffraction aux Rayons X) sont faites sur les matériaux nanocristallins type-F et type-R avant et après le vieillissement à 240°C dans les travaux [50, 54, 55]. Ces mesures donnent des informations sur l'évolution de la fraction cristallisée, la taille des grains et aussi pour évaluer les contraintes internes.

3.3.1 Taille des grains et fraction cristallisée

Rappel sur le principe de la DRX

Le principe de la mesure par diffraction aux rayons X (DRX) est d'envoyer un flux de rayons X selon un angle donné par rapport à la surface d'un échantillon considéré. Un capteur permet ensuite de compter les photons qui ont été diffractés par le matériau (Figure 3-8).

Les rayons X diffusés présentent des maxima qui sont, en fait, des pics de diffraction qui correspondent à un plan cristallographique particulier et peuvent être déterminés en utilisant la loi de Bragg et connaissant l'organisation atomique du matériau étudié :

$$2. d. \sin(\theta) = n. \lambda \quad (3.2)$$

Avec d : la distance inter réticulaire (distance entre deux plans cristallographiques), 2θ : l'angle de déviation (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.

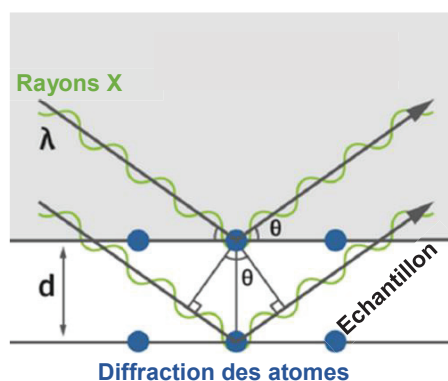


Figure 3-8 Principe de fonctionnement de la DRX : Géométrie expliquant la loi de Bragg [81].

La Figure 3-9 présente deux diffractogrammes DRX avant et après 5000 heures de vieillissement à 240°C du nanocristallin type-R et du nanocristallin type-F. Le pic de grande amplitude correspond au plan cristallin (110) et le pic de petite amplitude correspond au plan cristallin (200). Pour les deux nuances, aucun nouveau pic n'apparaît lors du vieillissement à 240°C, ce qui exclut l'apparition d'une nouvelle phase à cette température et aussi aux températures de vieillissement inférieures (100, 150 et 200°C).

Le calcul de la largeur à mi-hauteur du pic (110) avant et après vieillissement renseigne sur l'évolution des domaines cristallins (la taille des grains D et la fraction cristallisée f_x) grâce à la formule de Scherrer qui relie D à la largeur mi-hauteur [4], [82], [83] :

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos(\theta)} \quad (3.3)$$

où β est la largeur à mi-hauteur du pic (110) ; K est la constante de Scherrer ; λ est la longueur d'onde du rayon X incident et θ est l'angle de Bragg.

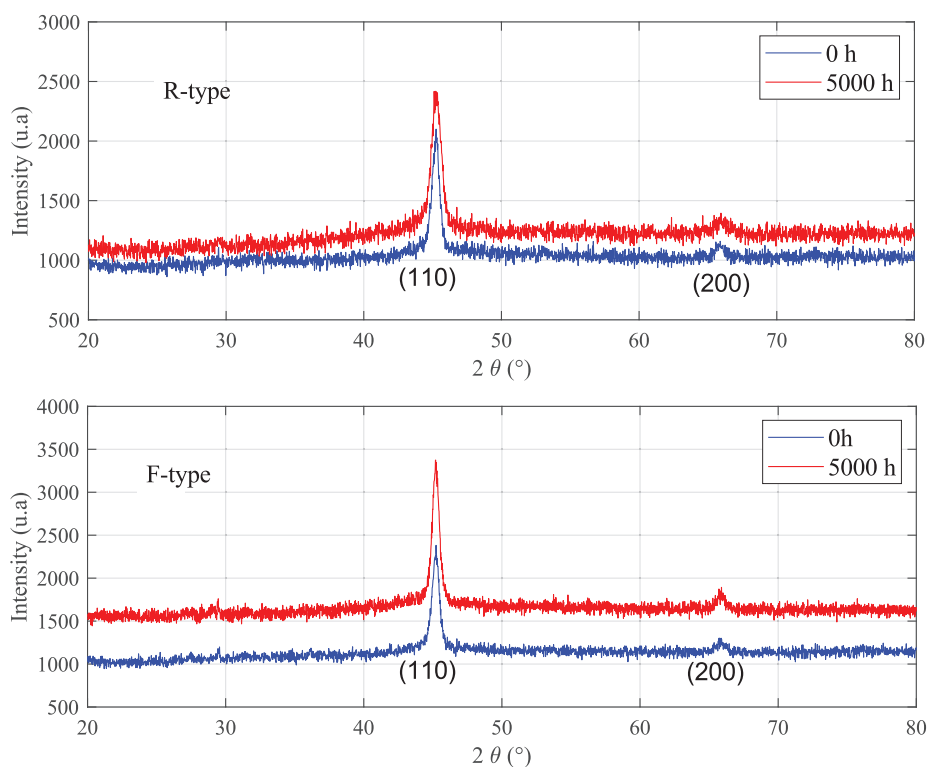


Figure 3-9 Diffractogrammes DRX des nanocristallins type-R et nanocristallins type-F non vieillis et vieillis à 240°C [55].

Le Tableau 3-2 résume l'évolution des diffractogrammes : intensité, largeur mi-hauteur (FWHM) et position des pics (110) et (200) lors du vieillissement à 240°C pour les deux nuances étudiées. Nous remarquons une faible augmentation de la largeur à mi-hauteur du pic (110) après vieillissement liée à l'incertitude de l'appareil de mesure.

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

Tableau 3-2 Évolution des pics de DRX dans les nanocristallins lors du vieillissement à 240°C.

Nuance	Pic (110)				Pic (200)			
	Type-R		Type-F		Type-R		Type-F	
Heure	0	5000	0	5000	0	5000	0	5000
Intensité du pic (u.a)	2100	2418	2281	3372	1139	1135	1301	1857
FWHM (°)	0.64	0.8	0.74	0.62	/	/	/	/
Position du pic (°)	45.25	45.05	45.25	45.19	65.59	65.63	65.87	65.7

Compte tenu de leurs incertitudes, les mesures DRX sont souvent accompagnées par des mesures directes de la microstructure à l'aide de la microscopie électronique en transmission (TEM). Nous avons sollicité le centre technologique de la microstructure « CT μ » à l'université de Lyon, pour appliquer cette technique sur un échantillon nanocristallin type-R non vieilli afin de tester la faisabilité de cette technique sur un tel matériau. La Figure 3-10 présente deux mesures TEM du même échantillon prises à deux endroits différents. Les points noirs représentent les nanograins tandis que la couleur plus claire représente la phase amorphe. Le dégradé de couleur représente les nanograins dans l'épaisseur de l'échantillon, autrement dit, l'épaisseur de l'échantillon n'est pas suffisamment petite pour avoir des images plus claires et la fragilité mécanique des échantillons nanocristallins ne permet pas de la réduire davantage.

Nous remarquons que la forme et la taille des nano grains n'est pas tout à fait la même sur tout l'échantillon, de plus, la distribution des nanograins n'est pas complètement homogène, donc les résultats dépendent fortement de l'endroit où les mesures sont faites.

Par ailleurs, il faut étudier le même échantillon au même endroit avant et après vieillissement. Ceci n'est malheureusement pas possible étant donné que cette technique est une mesure destructive.

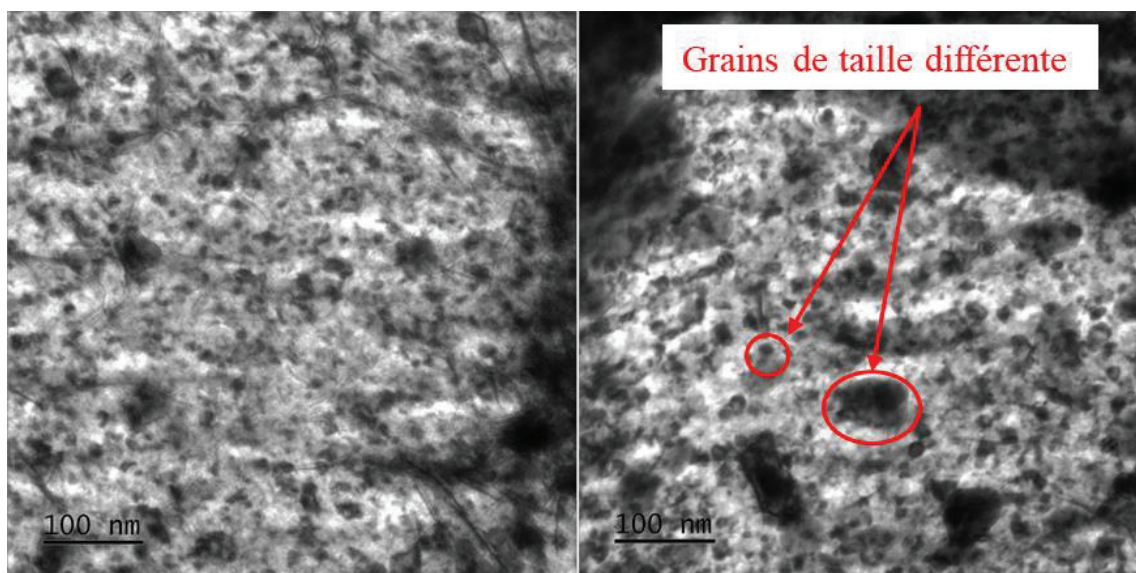


Figure 3-10 Images TEM sur un échantillon nanocristallin type-R à deux endroits différents.

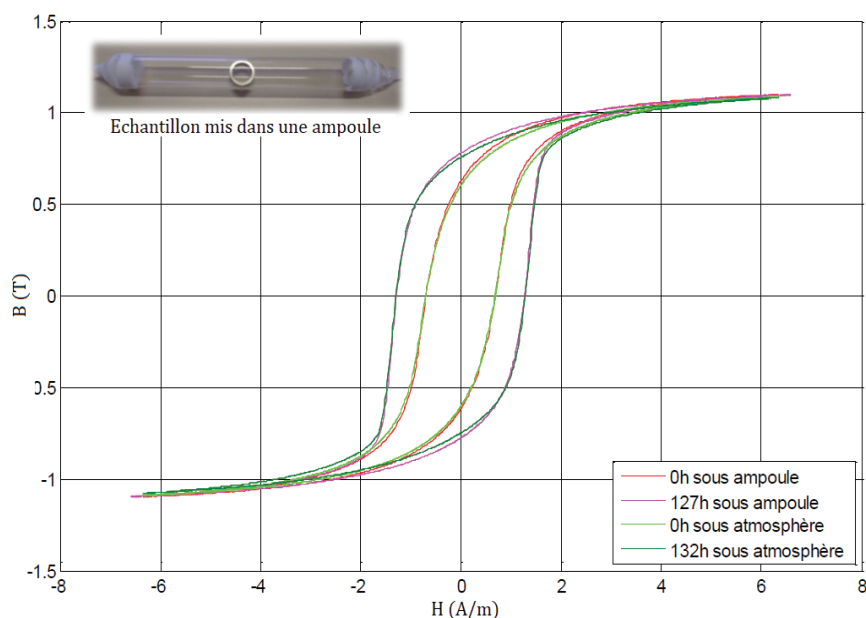
3.3.2 Contrainte interne

Le stress interne représente à la fois le stress résiduel et le stress externe appliqué [4]. La contrainte externe ne change pas car aucune contrainte mécanique n'a été appliquée pendant toute notre étude du vieillissement.

Le stress résiduel correspond aux différentes interactions entre les cristaux et la phase amorphe, ainsi que le stress au sein du réseau cristallin. Le stress résiduel est analysé à l'aide de schémas de diffraction DRX. En effet, la position et la largeur du pic qui représentent le stress résiduel, comme expliqué dans [4], [83], n'ont montré aucun changement notable après le vieillissement à 240°C (Figure 3-9). La largeur à mi-hauteur du pic 110 a augmenté de 0.16° dans la nuance de type-R et elle a diminué de 0.12° dans la nuance de type-F. Tandis que la position du pic a diminué de 0.2° dans la nuance de type-R et de 0.06° dans la nuance de type-F après 5000 heures de vieillissement (Tableau 3-2).

De plus, les températures de vieillissement étudiées sont beaucoup trop basses par rapport aux températures de relaxation des contraintes, même après 5000 heures de vieillissement [84].

3.3.3 Oxydation



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. Après un vieillissement de l'échantillon type-R 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 (Figure 3-11).

D'autres techniques pour explorer la microstructure du matériau nanocristallin ont été utilisées :

- **DSC**, 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.
- **PTE**, le « **Pouvoir Thermo-Electrique** » 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.
- **Nanoindentation** est un type d'indentation, technique largement utilisée pour caractériser les propriétés mécaniques des matériaux. Ce procédé consiste à faire pénétrer une pointe de propriété mécanique connue dans un matériau pour en déduire les propriétés mécaniques et en particulier la dureté de celui-ci.

Toutes ces mesures n'ont montré aucune transformation de phase, ni de variation structurale, ni d'oxydation lors du vieillissement à 240°C.

3.3.4 Bruit de Barkhausen

3.3.4.1 Protocole d'essais

Nous suivons l'évolution du MBN (Magnetic Barkhausen Noise) des trois nuances de matériaux nanocristallins lors de leur vieillissement sous une seule température de vieillissement de 200°C. Nous considérons un échantillon de chaque nuance (type-R, type-F et type-Z) sous forme d'un ruban déroulé.

Après un intervalle de temps X choisi en se basant sur les essais du vieillissement antérieurs, nous caractérisons les échantillons :

- Si les caractérisations des échantillons révèlent un changement, nous gardons le même intervalle de temps de vieillissement.
- Sinon, le prochain point de caractérisation est fait après deux fois l'intervalle choisi ($2 \times X$).

Le dispositif de mesure du bruit de Barkhausen est présenté dans la partie 2.4.3 du chapitre 2 en fixant les conditions de caractérisations suivantes :

- Signal d'excitation sinusoïdal de 50 A/m et $f=500$ mHz.
- Gain du préamplificateur : 50 dB.
- Filtre passe bande : 4-50 kHz.

Après l'acquisition du signal brut de Barkhausen $V_B(t)$, nous traçons l'enveloppe RMS (Figure 3-12) en calculant la valeur efficace de V_{MBN} sur une fenêtre glissante de $N_e=500$ échantillons (sachant que le nombre total d'échantillons acquis est $3 \cdot 10^6$).

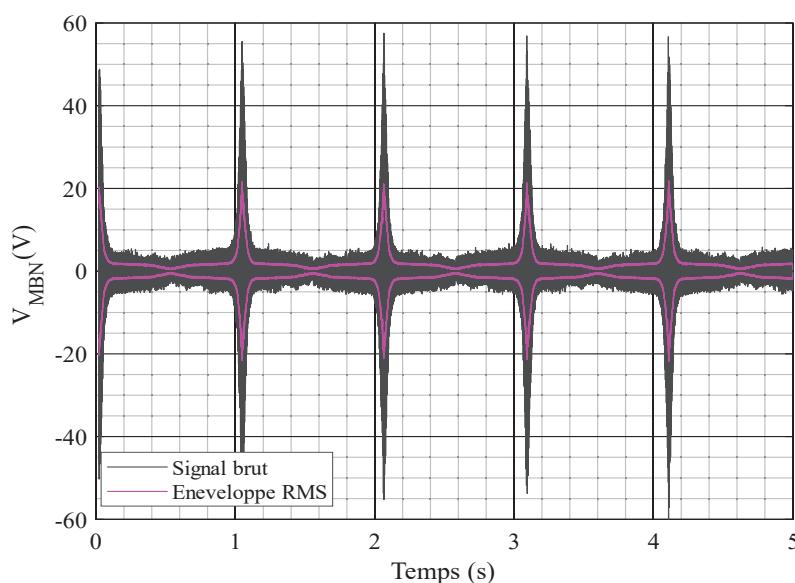


Figure 3-12 Bruit de Barkhausen brut (V_B) et enveloppe RMS (V_{MBN}) d'un nanocristallin type-Z.

A la fin, les caractéristiques de l'enveloppe RMS en fonction du champ d'excitation (la hauteur du pic du MBN, la largeur mi-hauteur (FWHM) et la position du pic) sont analysées, ces paramètres peuvent fournir plusieurs informations sur la microstructure [4], [77], [85].

3.3.4.2 Résultats [86]

La Figure 3-13 et la Figure 3-14 présentent respectivement l'évolution de V_{MBN} dans les matériaux nanocristallins type-R et type-Z lors du vieillissement à 200°C. Nous constatons, sur les deux nuances, que la hauteur des pics a augmenté et que la FWHM a diminué. La position du pic ne sera pas analysée car elle présente une forte corrélation avec le champ coercitif qui est très faible (<1 A/m), par conséquent, un petit déplacement du pic est très difficile à détecter.

Hauteur du pic

Elle est sensible à la densité d'obstacles, le nombre de parois de Bloch, le volume moyen de déplacement d'une paroi et du stress résiduel.

Dans les paragraphes 3.3.1 et 3.3.2, nous avons conclu à partir des résultats de DRX que la microstructure cristalline et le stress résiduel n'auraient pas changé lors du vieillissement. Par ailleurs, l'augmentation des pics MBN dans les nanocristallins type-R doit être soutenue par l'augmentation du nombre de parois, augmentant ainsi le nombre d'interactions entre les parois et les sites d'épinglage et diminuant le volume parcouru par chaque paroi. Ces variations vont dans le sens d'augmentation du champ coercitif (force de désancrage). Les variations du pic dans les nanocristallin type-Z et type-F restent faibles.

Largeur mi-hauteur FWHM

Un grand nombre d'obstacles (sites d'ancrage, dislocations, défauts...etc) au mouvement de la paroi crée un plus grand nombre d'événements Barkhausen, autrement dit une grande FWHM.

Lorsqu'il n'y a pas beaucoup d'obstacles et que la résistance au mouvement des parois du domaine est faible, un plus petit nombre d'événements MBN est observé (faible FWHM). Dans cette situation, le pic du bruit de Barkhausen est observé à des valeurs de champ magnétique faibles (position du pic).

La diminution du FWHM est le résultat d'une réduction des obstacles rencontrés par les parois lors de leur déplacement. En d'autres termes, elle peut résulter d'une diminution du nombre de sites d'accrochage et/ou d'un chemin libre moyen plus court pour le déplacement des parois.

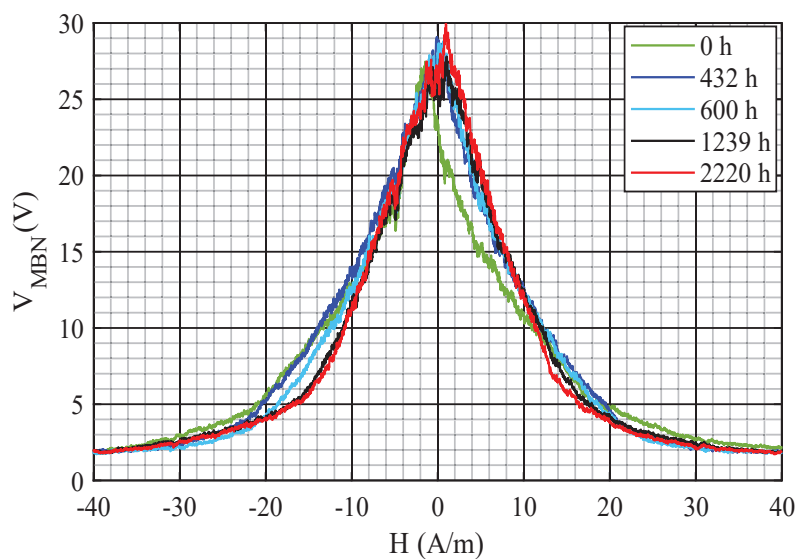


Figure 3-13 Évolution du bruit de Barkhausen dans les nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C.

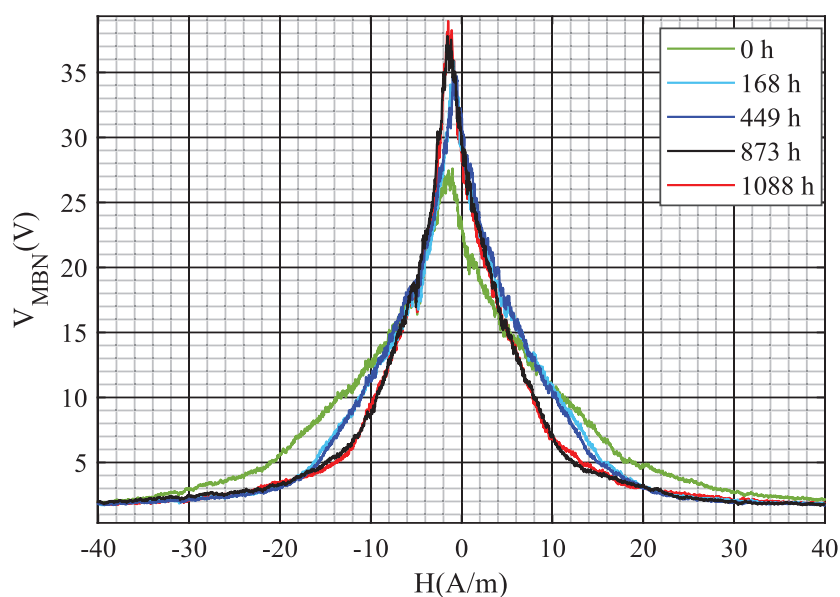


Figure 3-14 Évolution du bruit de Barkhausen dans les nanocristallins type-R lors du vieillissement à 200°C.

Le signal MBN des nuances de type-F dans la Figure 3-15 n'a pas montré de changement remarquable lors du vieillissement à 200°C ce qui est cohérent avec les petites variations des PM macroscopiques. Nous pouvons en déduire que la contribution des mouvements des parois de Bloch aux phénomènes de vieillissement de la nuance de type-F est négligeable. En effet, le processus d'aimantation dominant dans les matériaux de type-F est dû aux rotations des domaines.

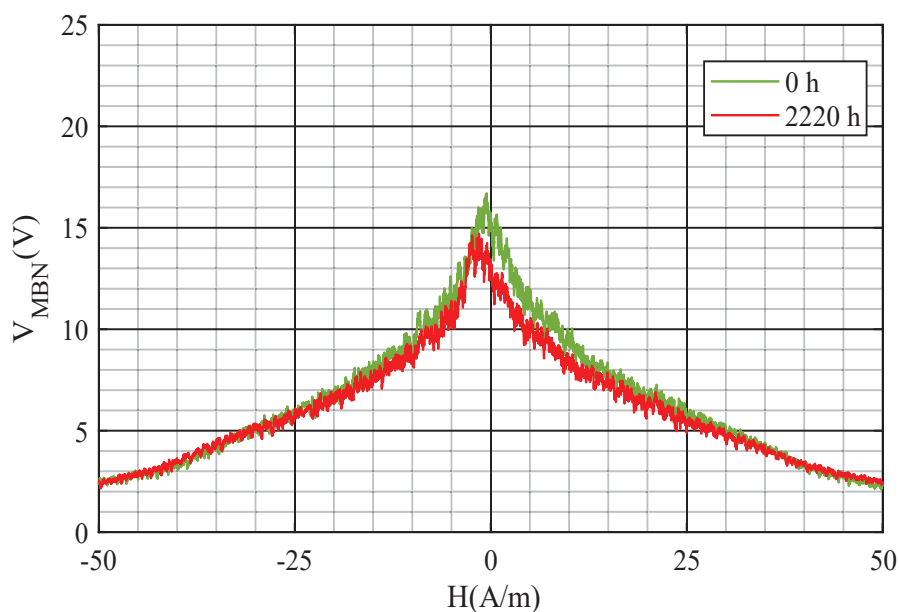


Figure 3-15 Évolution du bruit de Barkhausen dans les nanocristallins type-F lors du vieillissement à 200°C.

Les résultats du MBN sont cohérents avec les caractérisations magnétiques macroscopiques où le vieillissement est majeur dans les nanocristallins type-R avec une augmentation de 41% au niveau de la hauteur du pic et une diminution de 66% au niveau de la FWHM (Tableau 3-3).

Tableau 3-3 Évolution des paramètres d'enveloppe MBN lors du vieillissement à 200°C.

Nuance	Type-R	Type-F	Type-Z
t_a (heures)	1088	2220	2220
FWHM (%)	-66	+0.7	-18
Pic (%)	+41.15	-9.53	+9%

En conclusion, le nombre de parois et l'organisation des domaines magnétiques dans les nanocristallins type-R auraient changé lors du vieillissement.

3.4 Rôle des énergies d'anisotropies dans le vieillissement

L'énergie totale en J/m^3 développée pendant l'aimantation à partir d'un état désaimanté est égale la somme des différentes énergies [15] :

$$E_K \approx E_{\langle K_1 \rangle} + E_{Ku} + E_{\lambda\sigma} \approx \int_0^{B_{\max}} H \cdot dB \quad (3.4)$$

Où B_{\max} est l'induction maximale ; $E_{\langle K_1 \rangle}$ est l'énergie d'anisotropie magnétocristalline aléatoire ; $E_{\lambda\sigma}$ est l'énergie d'anisotropie magnétoélastique et E_{Ku} est l'énergie d'anisotropie induite.

L'énergie d'anisotropie totale E_K est aussi donnée fonction de l'angle φ entre l'aimantation spontanée et l'axe de facile aimantation par la formule approchée :

$$E_K \approx \langle K \rangle \cdot \sin^2 \varphi \quad (3.5)$$

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. Dans ce cas, E_K est proportionnelle la constante d'anisotropie $\langle K \rangle$.

La Figure 3-16 présente plusieurs courbes de première aimantation en fonction du temps de vieillissement à 240°C . La surface comprise entre la courbe de première aimantation et l'axe des ordonnées représente l'énergie d'anisotropie totale E_K aussi définie selon l'équation (3.4), notons que cette surface devient de plus en plus grande en fonction du temps de vieillissement.

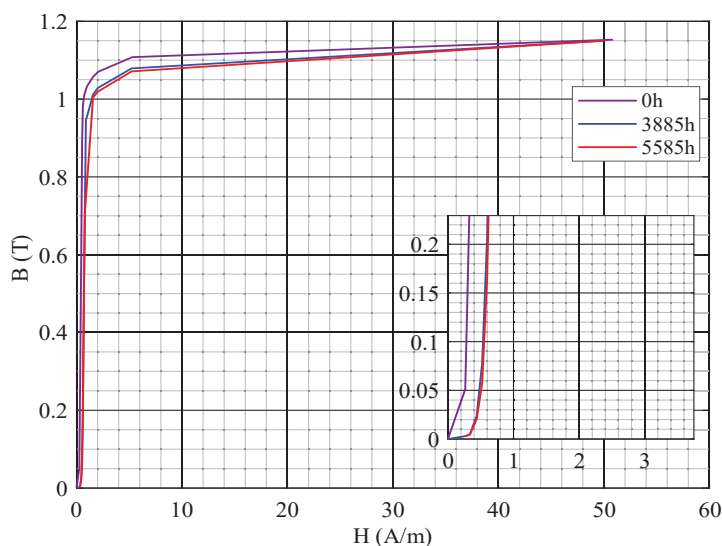


Figure 3-16 Évolution des courbes de première aimantation des nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 240°C .

Nous présentons dans la Figure 3-17 l'évolution de l'énergie d'anisotropie totale des nanocristallins type-Z lors du vieillissement en valeur relative et en valeur absolue (J/m^3) où cette dernière est calculée par l'équation suivante : $\Delta E_K(t_a) = E_K(t = t_a) - E_K(t = 0 \text{ h})$.

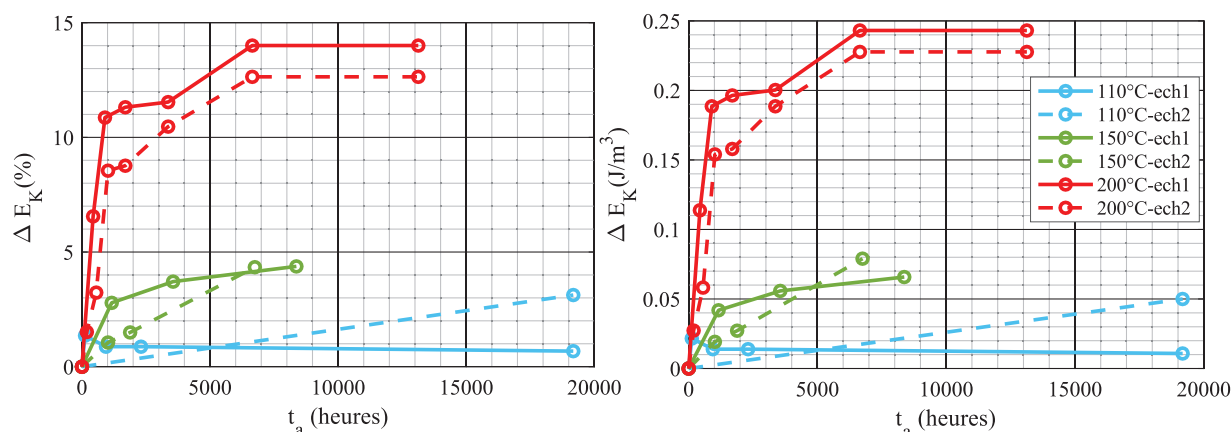


Figure 3-17 Évolution de l'énergie d'anisotropie totale dans les nanocristallins type-Z lors du vieillissement.

Au début du vieillissement à 200°C, nous constatons une forte augmentation de E_K jusqu'à 6000 heures de vieillissement où une asymptote de stabilisation autour de 0.22 J/m^3 est atteinte. Pour les autres températures de vieillissement, nous remarquons une faible augmentation ($<0.1 \text{ J/m}^3$). La Figure 3-18 présente l'évolution de l'énergie d'anisotropie totale E_K des nanocristallins de type-F en fonction du temps de vieillissement pour quatre températures. Nous constatons une augmentation de E_K au début du vieillissement accéléré à 200 ou à 240°C contrairement aux basses températures, où nous remarquons des faibles variations.

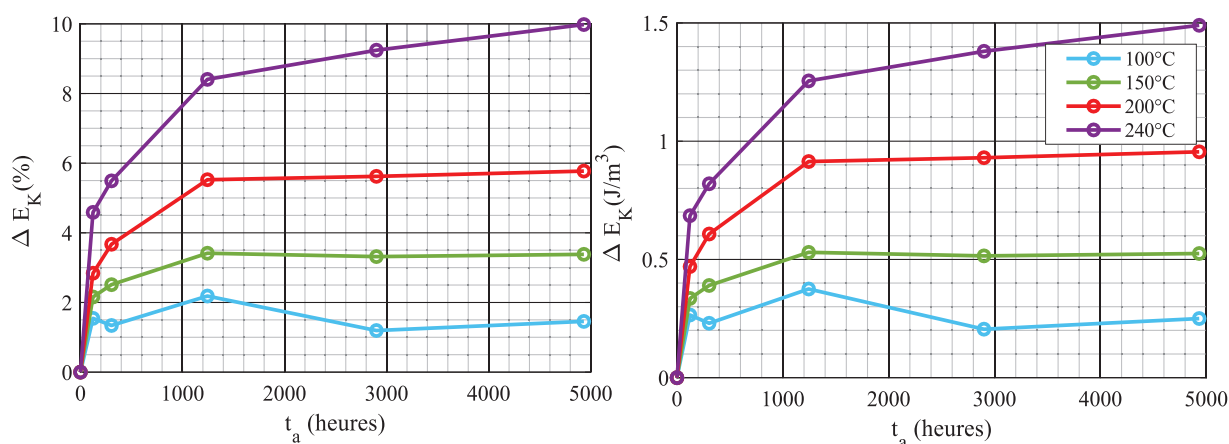


Figure 3-18 Évolution de l'énergie d'anisotropie totale dans les nanocristallins type-F lors du vieillissement à quatre températures[55].

La Figure 3-19 présente l'évolution de l'énergie d'anisotropie totale E_K des nanocristallins type-R en fonction du temps de vieillissement. Au début du vieillissement, nous constatons une augmentation de E_K pour les quatre températures jusqu'à 1100 heures, ensuite E_K commence à se stabiliser.

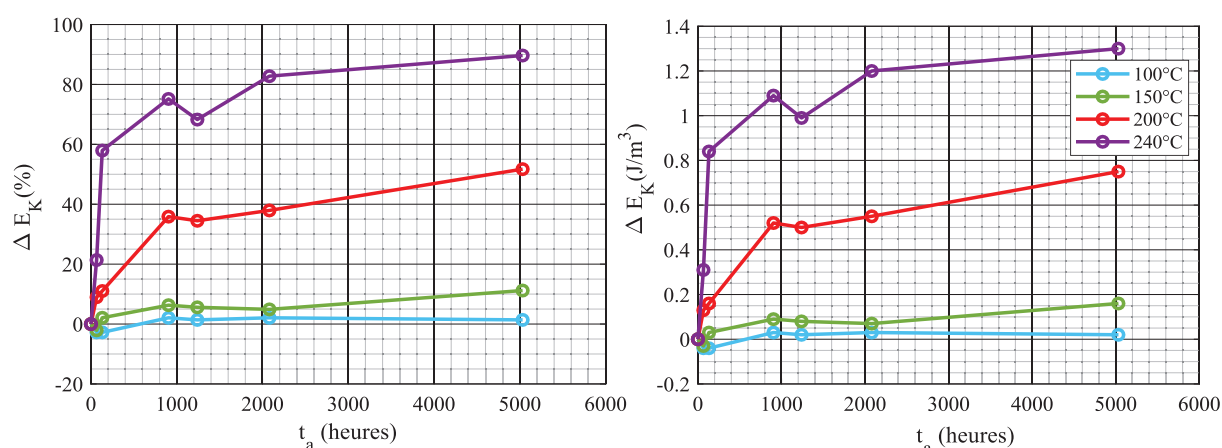


Figure 3-19 Évolution de l'énergie d'anisotropie totale dans les nanocristallins type-R lors du vieillissement à quatre températures[55].

Selon l'équation (3.4), l'énergie d'anisotropie totale E_K est la somme de trois énergies d'anisotropie $E_{\langle K_1 \rangle}$, E_{K_u} et $E_{\lambda\sigma}$. Par ailleurs, l'évolution de E_K durant le vieillissement est liée à l'évolution d'une ou plusieurs de ces trois énergies d'anisotropie. Afin de déterminer l'origine de cette augmentation d'énergie dans chaque nuance, nous procédons à une analyse de chacune de ces trois énergies d'anisotropie.

3.4.1 Evolution de l'énergie d'anisotropie magnétoélastique

Dans les matériaux magnétiques nanocristallins, avoir des propriétés excellentes nécessite la minimisation de l'énergie d'anisotropie magnétoélastique donnée par la formule suivante [19] :

$$E_{\lambda\sigma} = K_{\lambda\sigma} \cdot \sin^2\varphi \quad (3.6)$$

Nous considérons que l'aimantation spontanée suit la direction de difficile aimantation ($\varphi=90^\circ$) afin d'évaluer le maximum d'énergie d'anisotropie. L'énergie magnétoélastique serait proportionnelle à $K_{\lambda\sigma}$ sachant que :

$$K_{\lambda\sigma} = -\frac{3}{2} \cdot \lambda_s \cdot \sigma_i \quad (3.7)$$

Avec σ_i la contrainte interne et λ_s le coefficient de magnétostriction à saturation.

Des mesures de la constante de magnétostriction à saturation sont faites dans les travaux [55] sur les nanocristallins type-R avec le banc SAMR du laboratoire SATIE (Small Angle Magnetization Rotation) afin d'évaluer l'énergie magnétoélastique [18]. Par ailleurs, les mesures initiales (avant vieillissement) de λ_s sur le banc SAMR donnent sur un ruban nanocristallin type-R $\lambda_s = 0.15$ ppm

et une énergie d'anisotropie $E_{\lambda\sigma}^{0h}$ d'environ 0.4 J/m^3 . Après vieillissement à 240°C pendant 2136 heures, la Figure 3-20 montre une forte diminution (42%) de λ_s , cela correspond à $E_{\lambda\sigma}^{7250h} = 0.23 \text{ J/m}^3$.

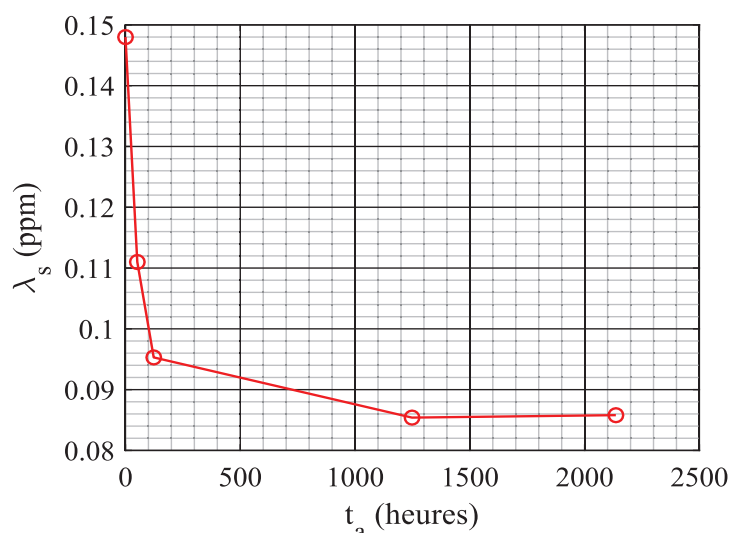


Figure 3-20 Évolution de la constante de magnétostriction λ_s à saturation du matériau nanocristallin type-R en fonction du vieillissement à 240°C [55].

Concernant la contrainte interne σ_i , à l'aide des mesures de DRX, nous avons vérifié dans la section 3.3.2 que σ_i n'aurait pas évolué lors du vieillissement. De plus, nous n'avons pas appliqué de contraintes mécaniques pendant le vieillissement. De même pour la nuance de type-F, les mesures montrent une diminution de 10 % du coefficient λ_s après 7250 heures de vieillissement à 240°C [55]. Par ailleurs, la variation de l'anisotropie $E_{\lambda\sigma}$ serait alors proportionnelle à celle de λ_s , donc $E_{\lambda\sigma}$ aurait diminué d'autant. La contribution de $E_{\lambda\sigma}$ dans l'énergie totale est presque nulle avant vieillissement. De plus, lors du vieillissement elle diminuerait et deviendrait de plus faible. Par conséquent, la contribution de cette énergie sera négligée dans le reste de cette étude.

3.4.2 Évolution de l'anisotropie aléatoire et de l'anisotropie induite uniforme

En négligeant la contribution de l'énergie magnétoélastique, l'expression générale de la constante d'énergie d'anisotropie totale dans les matériaux nanocristallins est donnée par la relation suivante [8], [87] :

$$\langle K \rangle \approx \sqrt{K_u^2 + \beta^2 \langle K_1 \rangle^2} \quad (3.8)$$

Le paramètre β provient principalement des conventions utilisées pour définir les constantes d'anisotropie pour les différentes symétries ($\beta=0.4$ pour la symétrie cubique). K_u présente la constante d'anisotropie induite uniforme sous champ et $\langle K_1 \rangle$ la constante d'anisotropie magnétocristalline aléatoire. Cette dernière est une moyenne des énergies magnétocristalline K_1 sur un nombre de grains ($N = f_x \cdot (L_{ex} / D)^3$) compris dans le volume de corrélation ferromagnétique ($V = L_{ex}^3$) déterminé par la longueur d'échange donnée [8], [19], [87] :

$$\langle K_1 \rangle = \frac{f_x \cdot K_1}{\sqrt{N}} = \sqrt{f_x} \cdot K_1 \cdot \left(\frac{D}{L_{ex}} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (3.9)$$

Avec K_1 : Constante de l'énergie magnétocristalline locale de chaque grain ; D : Taille des nanograins ; N : Nombre de grains compris dans le volume de corrélation ferromagnétique ($V = L_{ex}^3$) déterminé par la longueur d'échange L_{ex} :

$$L_{ex} = \sqrt{\frac{A}{\langle K \rangle}} \quad (3.10)$$

Avec A : Constante d'échange.

Quand les matériaux magnétiques nanocristallins sont recuits sous champ magnétique (type-Z et type-F), l'énergie d'anisotropie induite E_{Ku} est uniforme et dominante, dans ce cas la constante d'anisotropie totale $\langle K \rangle$ est donnée par [8], [87] :

$$\langle K \rangle \approx K_u + \frac{1}{2} f_x \sqrt{\beta K_1 K_u} \cdot \left(\frac{D}{L_{ex}} \right)^3 \quad (3.11)$$

Dans les travaux antérieurs [55], la constante d'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$ a été considérée constante lors du vieillissement étant donné que la DRX n'a montré aucun changement pour la taille des grains D ni pour la fraction cristallisée f_x . Par contre, ces résultats de DRX démontrent seulement la non variation de la constante de l'anisotropie magnétocristalline K_1 , mais pas celle de l'anisotropie aléatoire $\langle K_1 \rangle$. En effet, K_1 est liée à la symétrie du cristal alors que $\langle K_1 \rangle$ dépend d'une part de K_1 , et, d'autre part, de la longueur d'échange sur laquelle ces énergies locales ont été moyennées (formule (3.9)).

La formule (3.11) est valable seulement si $K_u \gg \langle K_1 \rangle$. Cela est vrai à l'état initial des matériaux, pour notre analyse lors du vieillissement, nous utilisons la formule générale (3.8) qui prend en considération la contribution de la constante d'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$. Nous donnons plus de détails sur l'évolution de cette anisotropie dans la section 3.4.2.1c.

3.4.2.1 Anisotropies dans les nanocristallins type-Z

Les matériaux magnétiques nanocristallins type-Z sont recuits sous champ longitudinal, une énergie d'anisotropie uniforme parallèle à ce champ est instaurée grâce à l'ordre atomique (Si-Si) créé dans les nanograins « Atom pair ordering par Néel ».

Au niveau mésoscopique, des domaines magnétiques uniformes sont formés avec une aimantation locale qui suit la direction du champ appliqué lors du recuit. Selon les travaux présentés dans [34], la structure en domaine magnétique des nanocristallins possédant une anisotropie uniforme macroscopique (cas des nanocristallins type-Z et type-F), varie faiblement à des températures inférieures à 300°C (Figure 3-21). De ce fait, nous supposons que les nanocristallins type-Z et type-F gardent la même structure en domaine quand on passe de la température ambiante à la température de vieillissement (maximum 240°C).

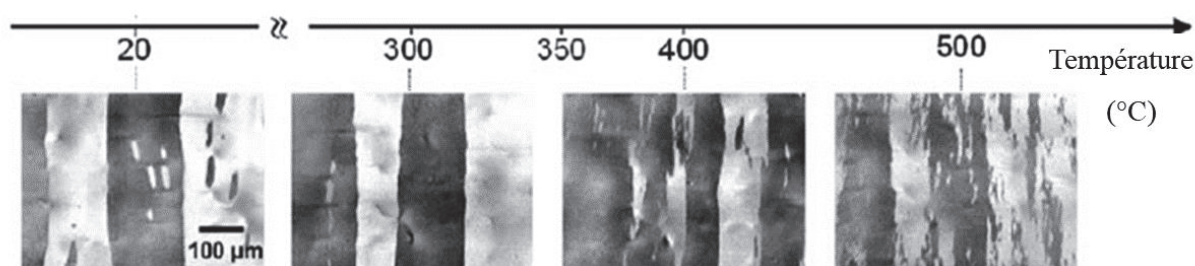


Figure 3-21 Évolution des domaines magnétiques en fonction de la température de mesure dans les nanocristallins avec un fort K_u transversal (à l'état désaimanté)[34].

Lors du vieillissement thermique, l'augmentation de la constante d'anisotropie totale $\langle K \rangle$ dans les type-Z pourrait être liée à une ou plusieurs sources :

- L'augmentation de $K_u^{//}$ dans les gros domaines longitudinaux.
- La redistribution de $K_u^{//}$ selon l'aimantation locale dans les parois.
- L'augmentation de la constante magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$.

a. Augmentation de $K_u^{//}$ dans les domaines

En fonction du vieillissement, cette structure favorise le renforcement et la continuité de l'introduction de l'anisotropie dans toute la structure en domaines longitudinaux. Nous notons l'augmentation de cette énergie lors du vieillissement par : $K_{loc}^{//}$.

b. Réorientation de $K_u^{//}$ dans les parois [15], [88]

Dans le chapitre 1 nous avons expliqué que l'aimantation dans les parois change de direction graduellement (Figure 3-22-a), autrement dit, l'aimantation locale dans les parois ne suit pas l'axe de $K_u^{//}$. Par conséquent, lors du vieillissement thermique à l'état désaimanté, $K_u^{//}$ dans ces zones du matériau va changer de direction et « s'orienter » selon l'aimantation locale des parois (Figure 3-22-b), et devenir une anisotropie locale non uniforme « localement » (nous la notons K_{loc}^{\sim}).

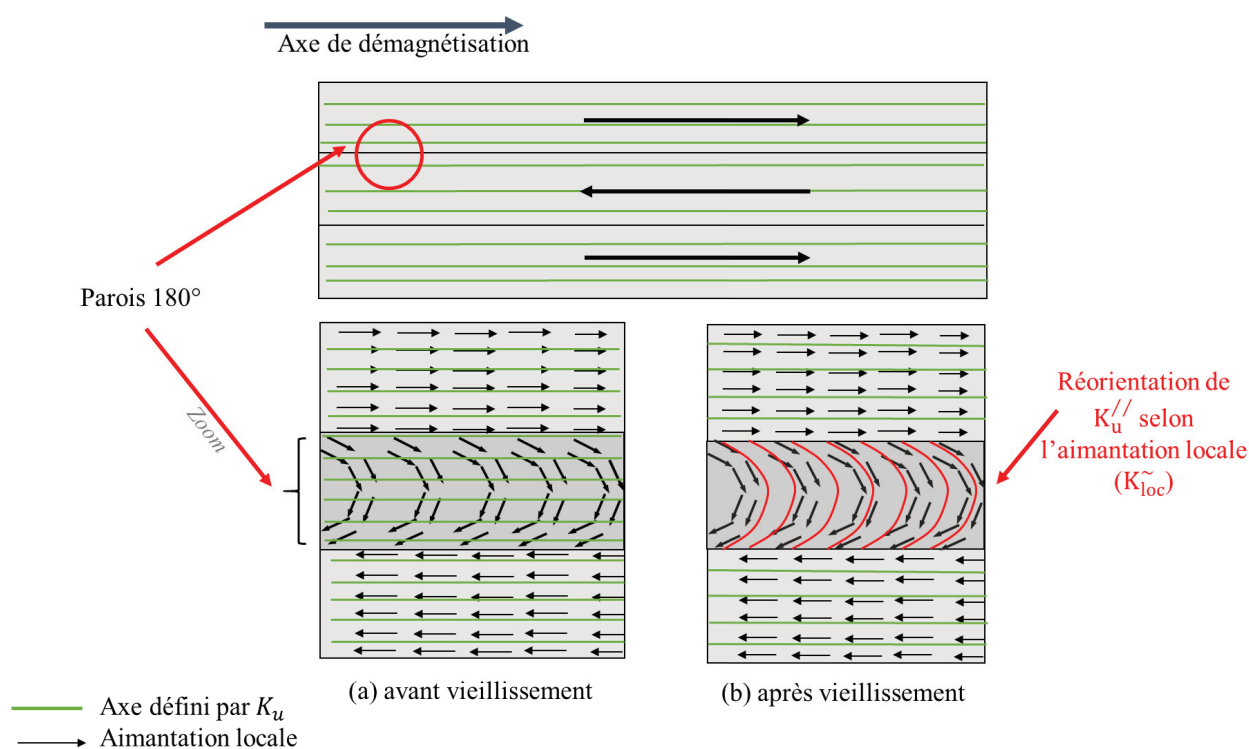


Figure 3-22 Illustration de structure en domaines magnétiques des matériaux nanocristallins type-Z avant et après vieillissement.

c. Augmentation de la constante de l'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$

Selon l'équation (3.9), la constante de l'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$ dépend de la constante K_1 et de la longueur d'échange L_{ex} sur laquelle les anisotropies magnétocristallines locales sont moyennées. La constante K_1 est intrinsèque aux cristaux de FeSi et sa valeur dépend de la composition chimique. Étant donné que la composition chimique (f_x et D) n'a pas changé en fonction du vieillissement (pas de changement au niveau des pics de DRX), la constante K_1 peut être considérée comme constante. D'autre part, la constante d'échange A n'aurait pas varié car elle dépend de la température de mesure et de la constante K_1 . Par ailleurs, selon l'équation (3.10), la longueur d'échange L_{ex} aurait diminué. Selon l'équation (3.9), la non variation de K_1 d'une part,

et la diminution de L_{ex} d'autre part, irait dans le sens de l'augmentation de $\langle K_1 \rangle$. Nous déduisons à partir des paragraphes a, b et c, que l'anisotropie totale après vieillissement est donnée par la somme $E_K^{Vieilli} = E_{K_{loc}}^{//} + E_{K_{loc}}^{\sim}$, plus la contribution éventuelle de l'anisotropie magnétocristalline aléatoire $E_{\langle K_1 \rangle}$.

Le processus de magnétisation dans le type-Z est défini par le mouvement des parois, par ailleurs, K_{loc}^{\sim} est supposée être la source majeure du mécanisme de vieillissement dans cette nuance. Afin de vérifier ces hypothèses, le comportement des domaines magnétiques a été visualisé à l'aide de la microscopie Kerr magnéto-optique (par Rudolf Schaefer de l'institut « Leibniz Institute for Solid State and Materials Research (IFW) Dresden, Germany »). Ces mesures sont faites sur des échantillons après désaimantation dans le plan et dans le sens longitudinal du ruban (section 2.5). La Figure 3-23 présente les domaines magnétiques des échantillons nanocristallins type-Z avant et après un vieillissement à 240°C pendant 4700 heures. Dans les deux cas, avant et après vieillissement, nous constatons des gros domaines homogènes qui suivent l'axe du ruban.

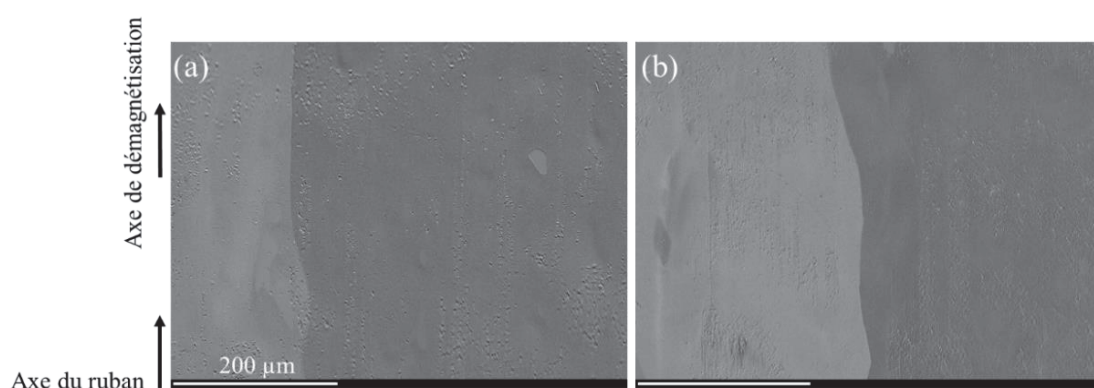


Figure 3-23 Domaines magnétiques des nanocristallins type-Z à l'état désaimanté (a) échantillon non vieilli (b) échantillon vieilli à 240°C pendant 4700 heures.

A une échelle différente, cette non-variation lors du vieillissement est confirmée dans la Figure 3-24 où nous voyons des gros domaines homogènes, ce qui est cohérent avec nos explications que le K_u dans les gros domaines continue à augmenter.

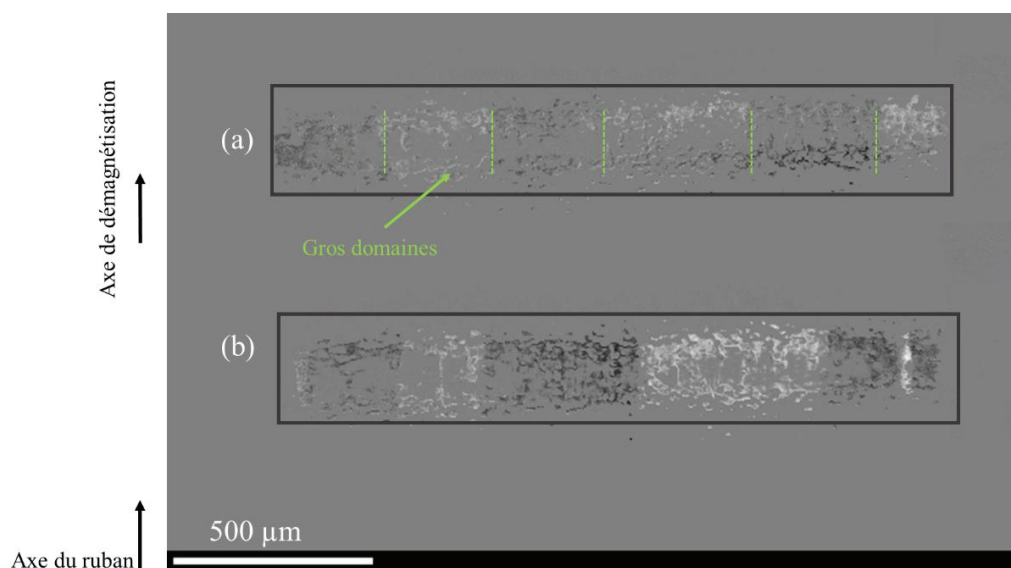


Figure 3-24 Évolution des domaines magnétiques dans les nanocristallins type-Z à l'état désaimanté (a) échantillon non vieilli (b) échantillon vieilli à 240°C pendant 4700 heures.

Cependant, les mesures faites lors de l'aimantation dynamique à 0.02 mT (Figure 3-25) montrent l'apparition de petits domaines au milieu des gros domaines après vieillissement à 240°C. Cela signifie que les gros domaines ont du mal à se former à cause d'un ancrage des parois dans leur position de vieillissement. En conclusion, les petits domaines pourraient être des zones où le $K_u^{//}$ a été réorienté lors du vieillissement en devenant K_{loc}^{\sim} .

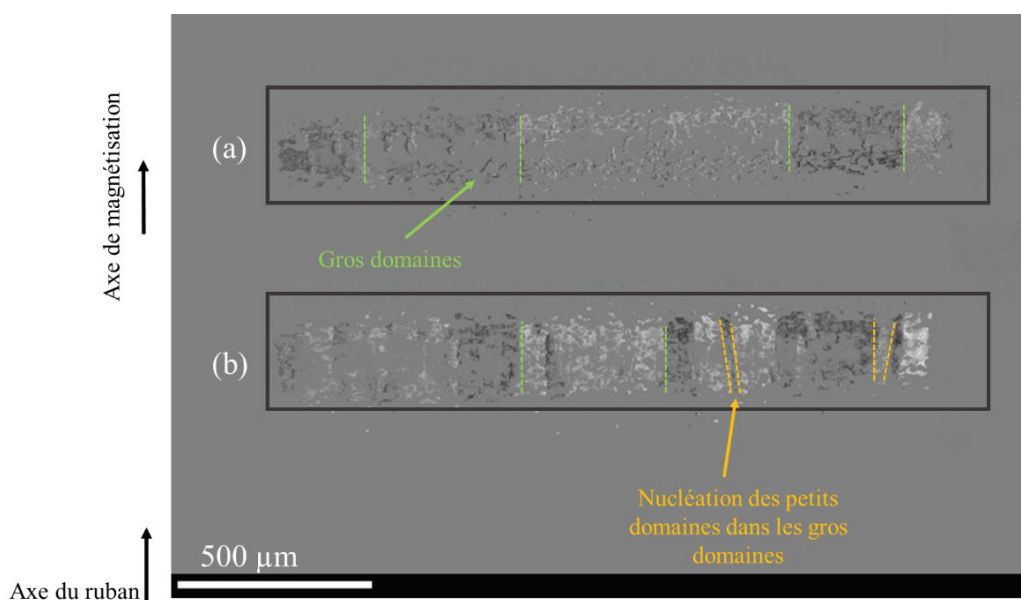


Figure 3-25 Domaines magnétiques des nanocristallins type-Z lors de l'aimantation en dynamique (a) échantillon non vieilli (b) échantillon vieilli à 240°C pendant 4700 heures.

3.4.2.2 Anisotropies dans les nanocristallins type-F

Dans le cas des nanocristallins type-F, une forte énergie d'anisotropie E_{Ku} est instaurée dans le sens transversal du ruban pendant le recuit sous l'effet du champ magnétique. Le résultat est une structure en domaines magnétiques présentant de gros domaines dans le sens transversal et des domaines de fermeture dans le sens longitudinal (Figure 3-26-a). Les domaines de fermeture se forment pour minimiser l'énergie magnétostatique (le flux magnétique doit se refermer sur lui-même dans le matériau).

a. Augmentation de K_u^\perp dans les domaines transversaux

En fonction du vieillissement, la constante d'anisotropie K_u^\perp continue à augmenter dans toute la structure en domaines transversaux (on la note K_{loc}^\perp).

b. Réorientation de K_u^\perp en $K_{loc}^{//}$ dans les domaines de fermeture

D'autre part, l'aimantation locale dans chaque domaine de fermeture est orientée selon l'axe longitudinal (Figure 3-26-b), formant un angle de 90° par rapport à l'axe de facile aimantation. Cette aimantation provoque lors du vieillissement une réorientation de l'anisotropie locale vers l'axe longitudinal pour devenir $K_{loc}^{//}$.

c. Réorientation de K_u^\perp en K_{loc}^\sim dans les parois

Au niveau des parois, il se passe le même mécanisme expliqué pour le vieillissement de la nuance type-Z.

Par ailleurs, l'énergie d'anisotropie totale après vieillissement E_K^{Vielli} représente la somme des trois énergies et devient : $E_K^{Vielli} = E_{K_{loc}^\perp} + E_{K_{loc}^{//}} + E_{K_{loc}^\sim}$ plus les contributions de l'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$ comme expliqué dans le cas du type-Z (section c).

Nous déduisons des paragraphes a b et c, que le vieillissement dans la nuance type-F est majoritairement provoqué par les parois et les domaines de fermeture dont l'anisotropie locale dans ces zones a été réorientée de 90° par rapport à sa direction initiale (avant vieillissement).

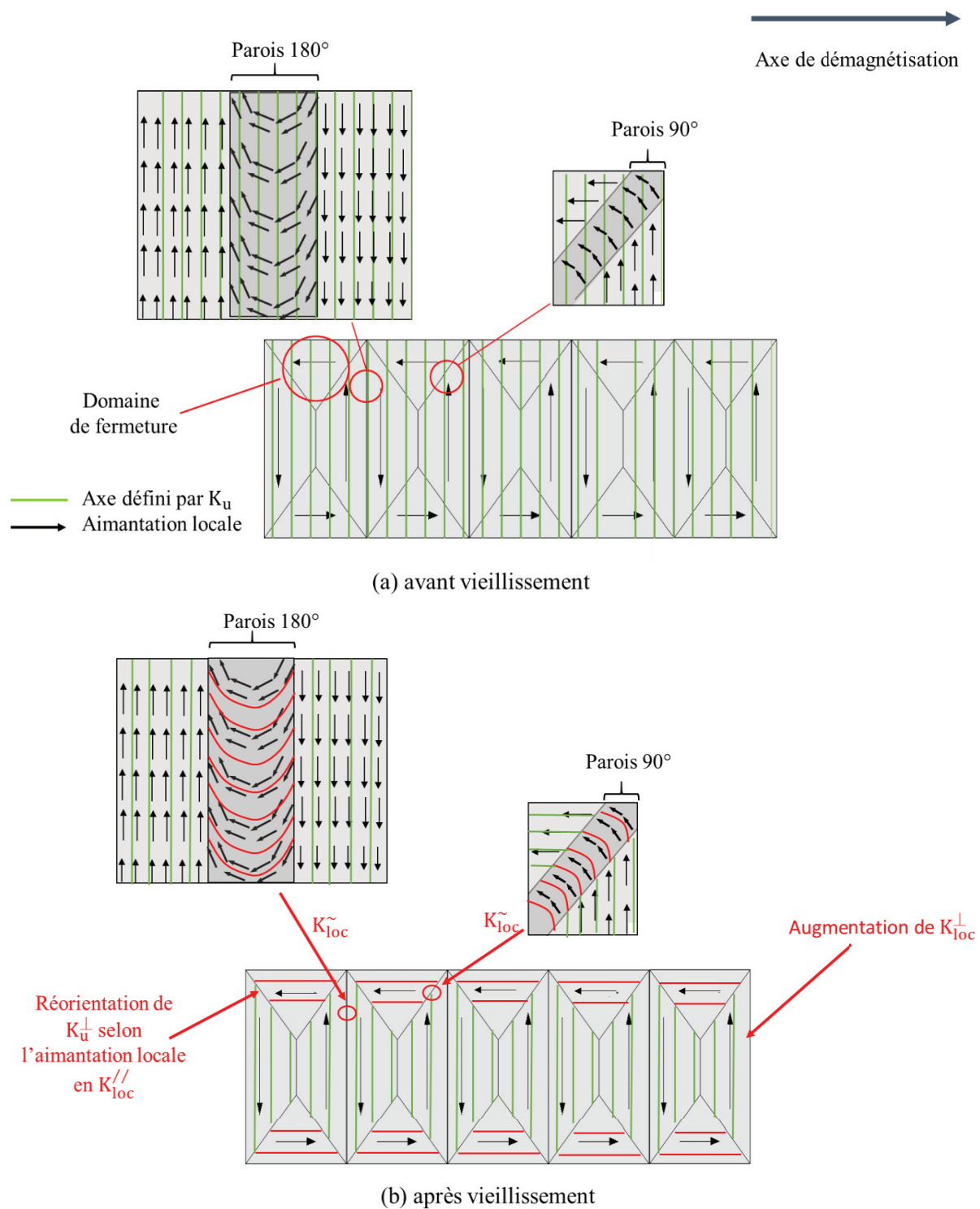


Figure 3-26 Illustration de l'évolution des domaines magnétiques des matériaux nanocristallins type-F lors du vieillissement.

Afin de vérifier ces hypothèses, des mesures d'effet Kerr (configuration : polarisation transversale) ont été faites sur deux échantillons nanocristallins type-F sous forme du ruban (déroulé) aplati : un échantillon non vieilli et un échantillon vieilli à 240°C pendant 4700 heures. Dans la Figure 3-27, nous ne constatons aucune variation lors du vieillissement au niveau des domaines magnétiques. Dans les deux cas, les domaines sont larges et homogènes dans le sens transversal avec quelques zones d'ancrage (vraisemblablement dû aux défauts dans le matériau).

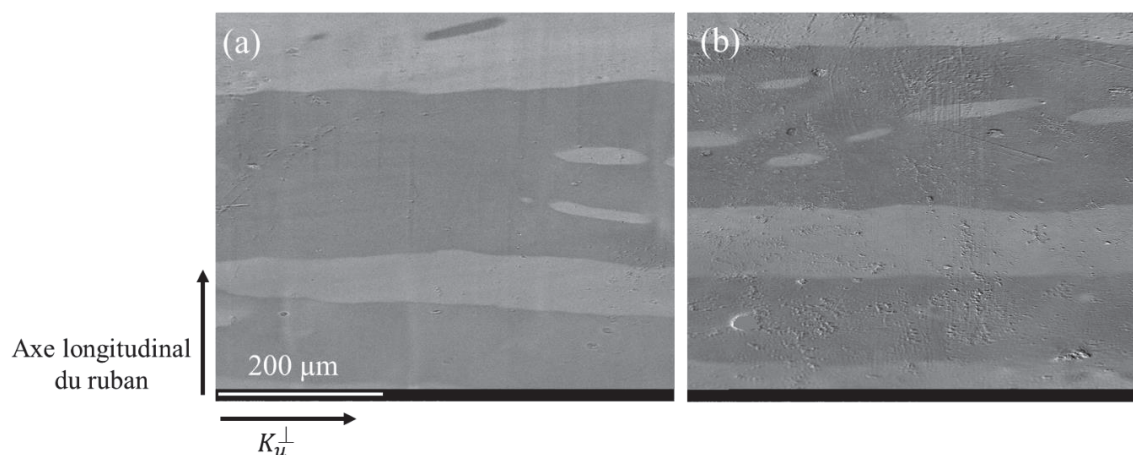


Figure 3-27 Images Kerr prises au milieu de l'échantillon : Domaines magnétiques des nanocristallins type-F à l'état désaimanté (a) échantillon non vieilli (b) échantillon vieilli à 240°C pendant 4700 heures.

Au niveau des bords du ruban, la Figure 3-28-a montre qu'avant vieillissement les domaines de fermeture ne sont pas visibles sur les images prises, nous supposons que la fermeture du flux est faite au niveau de l'épaisseur de l'échantillon [89]. Cela n'exclut pas la possibilité d'avoir des domaines de fermeture surfaciques dans un autre endroit de l'échantillon.

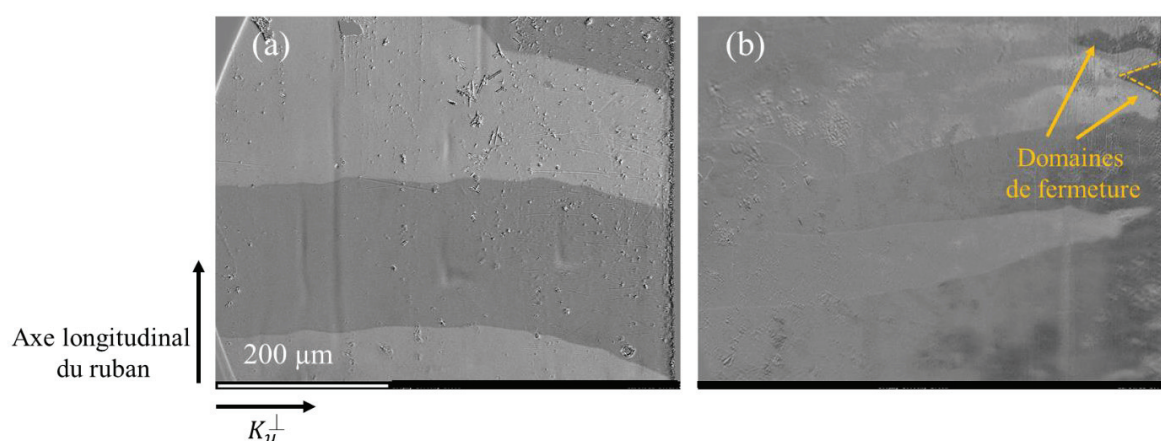


Figure 3-28 Images Kerr prises au bord de l'échantillon : domaines magnétiques des nanocristallins type-F à l'état désaimanté (a) échantillon non vieilli (b) échantillon vieilli à 240°C pendant 4700 heures.

Après vieillissement (Figure 3-28-b), nous remarquons l'apparition de conséquents domaines de fermeture irréguliers. Cette nouvelle organisation en domaines magnétiques serait le résultat de la réorientation de l'anisotropie locale dans les domaines de fermeture vers l'axe longitudinal comme expliqué.

3.4.2.3 Anisotropies dans les nanocristallins type-R

Quand les matériaux magnétiques nanocristallins sont recuits sans champ magnétique (type-R), cela ne signifie toutefois pas qu'il n'y a pas d'anisotropies induites. Celles-ci sont toujours induites le long de la direction de l'aimantation spontanée locale dans un domaine tant que la température de recuit est inférieure à la température de Curie de la phase cristalline. La présence d'un champ magnétique extérieur ne fait qu'induire une anisotropie uniforme. Ainsi, le traitement thermique sans champ produit une distribution aléatoire d'anisotropies uniaxiale induites parallèlement au vecteur d'aimantation dans chaque domaine [19], [90]. Par ailleurs, dans l'équation (3.8), il faudrait parler d'une constante anisotropie K_{loc} induite sous « aimantation locale » de chaque domaine au lieu d'une anisotropie « uniforme induite sous champ » K_u .

Pour cette nuance, l'augmentation de la constante d'anisotropie totale constatée dans la Figure 3-19 lors du vieillissement, pourrait être attribuée à la modification de K_{loc} dans chaque domaine créé initialement lors du recuit, plus l'augmentation de la constante magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$.

a. Modification de K_{loc} dans les petits domaines et les parois

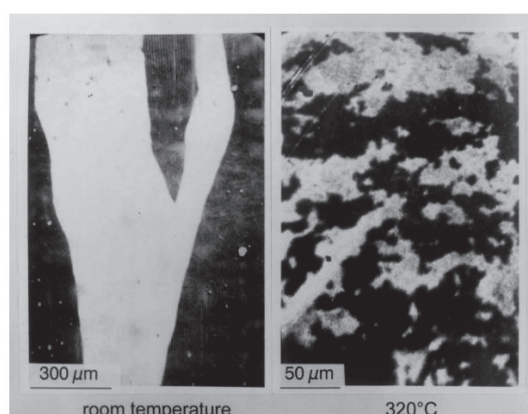


Figure 3-29 Structure des domaines magnétiques dans les nanocristallins type-R à une température de mesure ambiante et à 320°C [19], [91].

Contrairement aux nanocristallins type-Z et type-F, quand un nanocristallin type-R est exposé à une haute température, les domaines magnétiques deviennent plus petits et irréguliers (Figure

3-29)[16], [19], [90]. Ceci est dû à la diminution du couplage ferromagnétique entre les nanograins, quand la température se rapproche de la température de Curie de la phase amorphe. Par ailleurs, les anisotropies magnétocristalline sont moins efficacement moyennées.

Nous estimons que quand les échantillons type-R sont mis dans les étuves à hautes températures, les domaines magnétiques prennent une configuration de petits domaines tout au long de la période de vieillissement. Néanmoins, les domaines restent plus grands que ceux présentés à 320°C (Figure 3-29) étant donné que les températures de vieillissement ne dépassent pas 240°C.

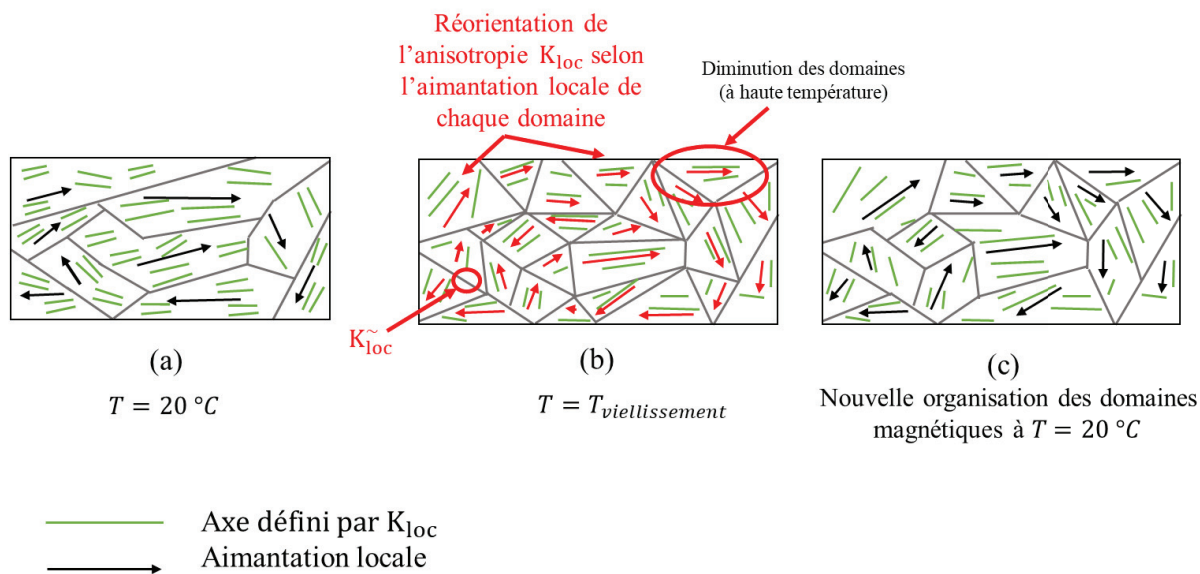


Figure 3-30 Illustration de l'évolution des domaines magnétiques dans les nanocristallins type-R (a) avant vieillissement (b) après vieillissement à haute température (c) après vieillissement à température ambiante.

Le refroidissement instantané lors du process d'élaboration crée et fige des axes aléatoires de K_{1oc} dans chaque domaine (Figure 3-30-a). Les domaines deviennent plus petits à haute température (Figure 3-30-b), ce qui provoquerait la réorientation de K_{1oc} pendant le vieillissement, d'une part selon l'axe aléatoire de l'aimantation dans chaque « petit domaine » (nous la notons K'_{1oc} , constante d'anisotropie locale après vieillissement), et d'autre part, selon l'aimantation des nouvelles parois comme expliqué pour les autres nuances (3.4.2.1b).

Par ailleurs, après vieillissement, la structure en domaines (à température ambiante) va s'organiser sous formes de petits domaines (Figure 3-30-c) avec une énergie d'anisotropie totale donnée par $E_K^{\text{Vieilli}} = E'_{K_{1oc}} + E_{\tilde{K}_{1oc}}$, plus les contributions de la magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$ comme expliqué dans le cas du type-Z (section c).

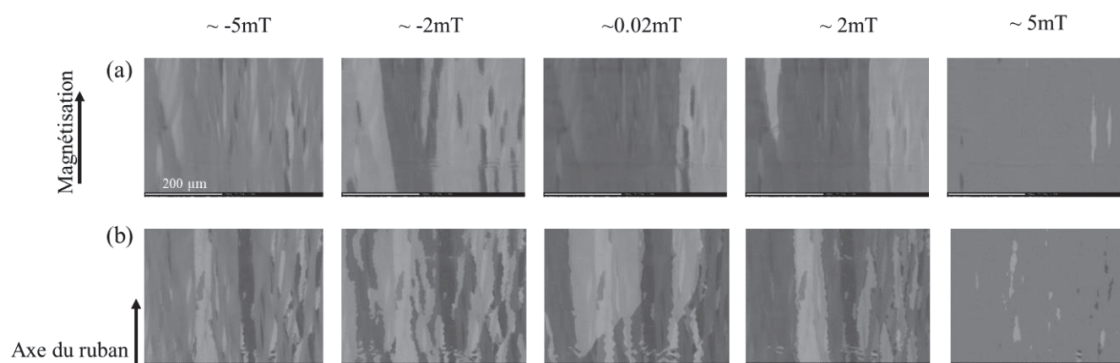


Figure 3-31 Évolution des domaines magnétiques lors de l'aimantation dynamique des matériaux nanocristallins type-R (a) échantillon non vieilli (b) échantillon vieilli à 240°C pendant 4700 heures. (Par Klara Jelenkova : CEITEC Nano Research Infrastructure, Tchéquie).

Les hypothèses liées au changement de l'organisation des domaines magnétiques après vieillissement sont confortées par des mesures à effet Kerr, en effet, la Figure 3-31 présente l'évolution des domaines magnétiques dans les matériaux nanocristallins type-R avant et après 4700 heures de vieillissement à 240°C et à différents niveaux d'aimantation.

Nous pouvons bien voir sur les images à effet Kerr faites à -2 mT, que les domaines magnétiques sont devenus plus petits et plus irréguliers après vieillissement, suite à l'augmentation des anisotropies locales aléatoires. D'une part les domaines semblent avoir des difficultés à se former (K'_{loc}), et d'autre part, les parois ont plus de difficulté à se déplacer de leurs positions ($K\tilde{c}$).

3.4.3 Corrélation entre les énergies d'anisotropie et les propriétés magnétiques macroscopiques

Les mesures mésoscopiques ont montré une forte variation au niveau des gros domaines magnétiques des nanocristallins type-R après vieillissement par rapport aux nanocristallins recuits sous champ (type-Z et F-type). Ces résultats sont cohérents avec les caractérisations magnétiques macroscopiques présentées à la Figure 3-32, dans le sens où le champ coercitif H_c se dégrade fortement pour la nuance type-R (175 % à 5000 heures), contrairement aux nanocristallins recuits sous champ (type-F et type-Z) où le champ coercitif a augmenté de 50 % de sa valeur initiale. Quant à la perméabilité maximale μ_r^{\max} , elle atteint une asymptote de stabilité de 10% après 1100 heures dans les nanocristallins type-F, alors qu'elle continue à diminuer dans les nanocristallins type-Z et type-R.

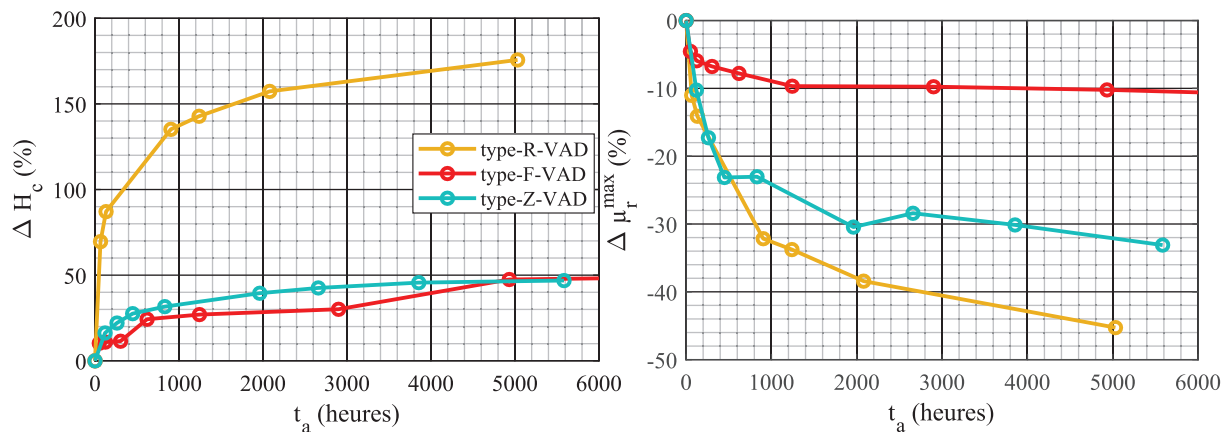


Figure 3-32 Évolutions du champ coercitif (à gauche) et de la perméabilité maximale lors du vieillissement à 240°C des trois nuances.

La facilité de mouvement des parois de domaine est la clé de la réalisation de matériaux magnétiquement doux. Par conséquent, un faible champ coercitif et une perméabilité élevée sont obtenus pour un matériau ayant une petite barrière d'énergie du mouvement de la paroi. Cette énergie est définie par l'amplitude de fluctuation de l'énergie d'anisotropie (δK) et la coercivité due au mouvement de la paroi face aux obstacles. L'expression approximative de « pinning » ou d'ancrage pour un nanocristallin [21], [90] est :

$$H_c \approx \frac{\delta K}{J_s} \quad (3.12)$$

Lors du vieillissement, l'induction à saturation est restée constante, par ailleurs, l'évolution du champ coercitif H_c dépend seulement de δK . Ce modèle explique la forte augmentation du champ coercitif dans le type-R par rapport aux autres nuances. En effet, dans le nanocristallin type-R la fluctuation des anisotropies aléatoires est plus importante lors du vieillissement ($\delta K = \langle K_1 \rangle + K_{loc}$), tandis que dans les nuances type-Z et type-F, le degré de fluctuation des anisotropies aléatoires δK est limité grâce à l'anisotropie uniforme K_u induite lors du recuit sous champs.

Quant à la perméabilité dans les nuances possédant une anisotropie macroscopique uniforme K_u , elle dépend de l'angle entre l'axe macroscopique et l'axe de l'aimantation. Dans les nanocristallins type-F, l'échantillon est magnétisé selon l'axe perpendiculaire de K_u^\perp , la perméabilité est proportionnelle à l'inverse de K_u^\perp ($\mu_r^{\max} \propto K_u^\perp$). En fonction du vieillissement, la constante d'anisotropie K_u^\perp continue à augmenter dans toute la structure en domaines transversaux, ce qui explique la baisse des perméabilités μ_r^{\max} . Dans les nanocristallins type-Z, l'échantillon est aimanté

selon l'axe parallèle de $K_u^{//}$, la perméabilité est déterminée par l'ancrage des parois de Bloch et par ailleurs elle est donnée par ($\mu_r^{\max} \propto 1/\delta K$) [90].

En conclusion, le vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins est différent pour chaque nuance. Par ailleurs, le phénomène de vieillissement n'est pas seulement lié à la température et au temps de vieillissement, mais notamment aux conditions du recuit (sous champ ou sans champ) et à l'état magnétique du matériau lors du vieillissement. En effet, l'état magnétique permet de contrôler l'axe d'orientation des anisotropies locales lors du vieillissement. En l'absence d'un champ extérieur lors du vieillissement, il n'est pas possible de créer un ordre à grande échelle pour obtenir une anisotropie uniforme macroscopique.

Afin de confirmer que l'état magnétique du matériau lors du vieillissement joue un rôle important, nous avons effectué une étude de vieillissement des échantillons nanocristallins dans un état saturé assuré par l'application d'un champ magnétique dans le sens longitudinal lors du vieillissement. Cet essai permet de montrer que même à une température plus basse que celle du recuit, nous pouvons créer une anisotropie induite uniforme.

3.4.4 Vieillissement sous excitation continue (VAS)

Les essais du vieillissement sous saturation permettent de montrer que les anisotropies développées lors du vieillissement pourraient être modifiées par l'état magnétique du matériau.

De plus, ces essais nous permettent de confirmer les hypothèses émises sur l'origine du vieillissement dans les nanocristallins type-Z à savoir l'influence des parois. En effet, la saturation du matériau implique que la structure soit en mono-domaine avec une aimantation locale qui suit le champ magnétique extérieur, en conséquence, les parois ne sont plus présentes lors du processus de ce type de vieillissement.

3.4.4.1 Protocole d'essai

Nous avons étudié les trois nuances type-Z, type-F et type-R lors du vieillissement à une température de 240°C. Les trois échantillons sont excités par un bobinage primaire pour assurer la saturation avec un champ appliqué de 50 A/m tout au long de la durée du vieillissement.

- Après un intervalle de temps X aléatoirement choisi, les échantillons sont sortis de l'étuve, refroidis, mis dans une chambre climatique à 20°C et caractérisés.

- Des caractérisations magnétiques en quasi-statique à champ d'excitation magnétique imposé (2-6 A/m et $f=300$ mHz pour relever les propriétés magnétiques des deux nuances type-Z et type-R. 50 A/m et $f=1$ Hz pour relever les propriétés magnétiques de la nuance type-F) sont faites à $t=0$ heure et après chaque intervalle de vieillissement.
- L'étape qui suit les caractérisations consiste à désaimanter les échantillons afin de relever la courbe de première aimantation et pouvoir calculer l'énergie d'anisotropie totale E_K (section 2.3.3).
- Si les caractérisations des échantillons ne révèlent pas de changement alors on double l'intervalle de temps de vieillissement ($2 \times X$), sinon, on garde le même intervalle.
- Les échantillons sont remis dans l'étuve pour un nouvel intervalle de vieillissement sous champ appliqué.

3.4.4.2 Comparaison entre le vieillissement à saturation et le vieillissement à l'état désaimanté des nanocristallins type-Z

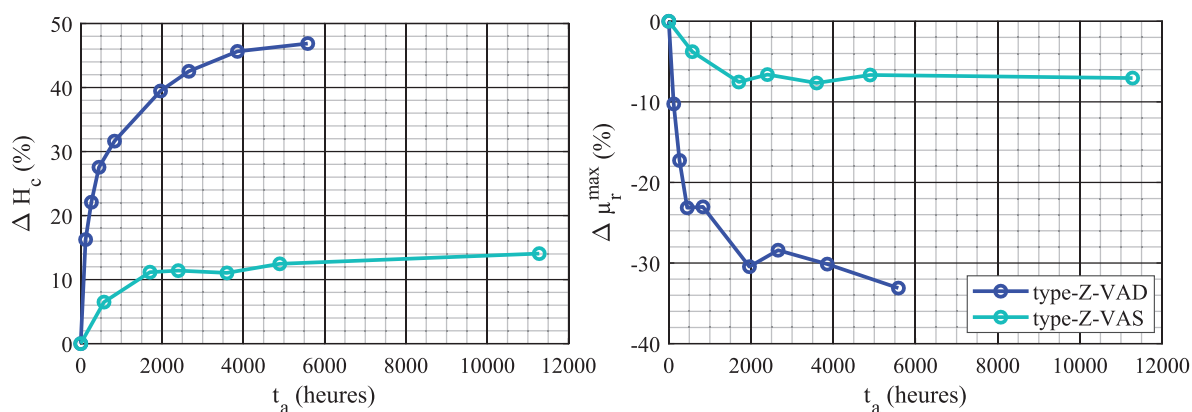


Figure 3-33 Comparaison entre le vieillissement avec désaimantation (VAD) et vieillissement à saturation (VAS) des nanocristallins type-Z : Évolutions du champ coercitif (à gauche) et de la perméabilité maximale (à droite).

La Figure 3-33 montre que l'échantillon vieilli avec saturation (VAS) est plus stable que celui vieilli avec désaimantation (VAD), en effet, nous constatons une augmentation de 12% pour le cas du VAS par rapport à une augmentation de 48% pour celui du VAD. D'autre part, la perméabilité chute de 8% pour l'échantillon VAS et de 32% pour l'échantillon VAD.

Quant à l'énergie d'anisotropie totale présentée dans la Figure 3-34, elle augmente faiblement dans le cas du vieillissement VAS, contrairement au cas du vieillissement VAD où elle augmente de 1.3 J/m^3 après 5600 heures de vieillissement à 240°C .

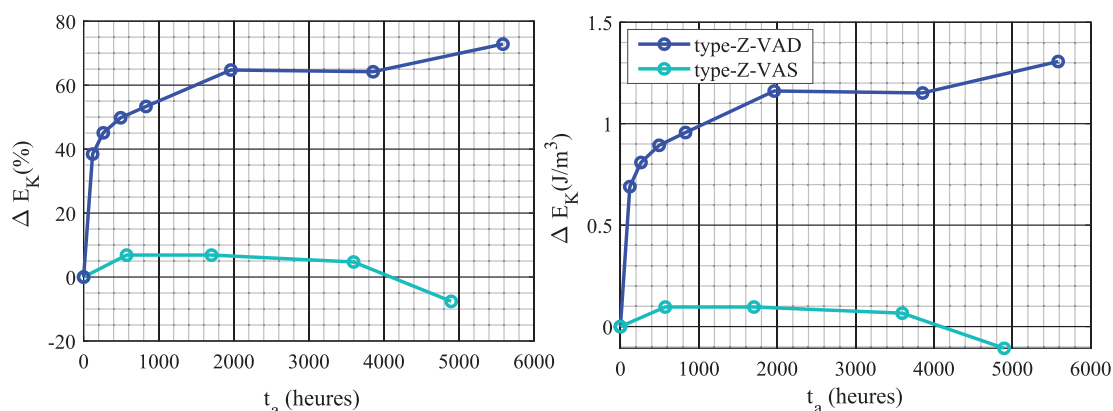


Figure 3-34 Comparaison entre les évolutions de l'énergie d'anisotropie totale lors du vieillissement à 240°C avec désaimantation (VAD) et vieillissement avec saturation (VAS) des nanocristallins type-Z.

Le VAD des matériaux nanocristallins type-Z était attribué à l'existence des parois lors du vieillissement dont l'aimantation locale suit des directions non-uniformes (voir section b3.4.2.1.b). Lors du VAS, la structure magnétique est un mono-domaine avec une aimantation locale qui suit le champ magnétique extérieur et dans ce cas, le K_u'' instauré lors du recuit restera selon l'axe longitudinal. Par ailleurs, les propriétés magnétiques ne devraient pas se dégrader lors du VAS.

Sur ce point, nous constatons de faibles variations des propriétés magnétiques lors du VAS. Ces 10-15% de dégradation sont liées soit :

- Au fait que nous avons appliqué 50 A/m ce qui n'est pas forcément suffisant pour saturer complètement le matériau à 240°C, donc nous avons plus qu'un seul domaine (parois présentes).
- À la suspicion de l'augmentation de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline aléatoire expliquée dans la section 3.4.2.1c.

Ou à d'autres phénomènes que nous n'avons pas encore identifiés. Cependant, ces phénomènes sont considérés comme des sources mineures de vieillissement par rapport à la contribution des parois.

3.4.4.3 Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-F et type-R lors du vieillissement à saturation

La Figure 3-35-a présente les cycles B-H des nanocristallins type-F lors du vieillissement sous saturation à 240°C. Les cycles se redressent et passent d'une forme linéaire à une forme de plus en plus rectangulaire.

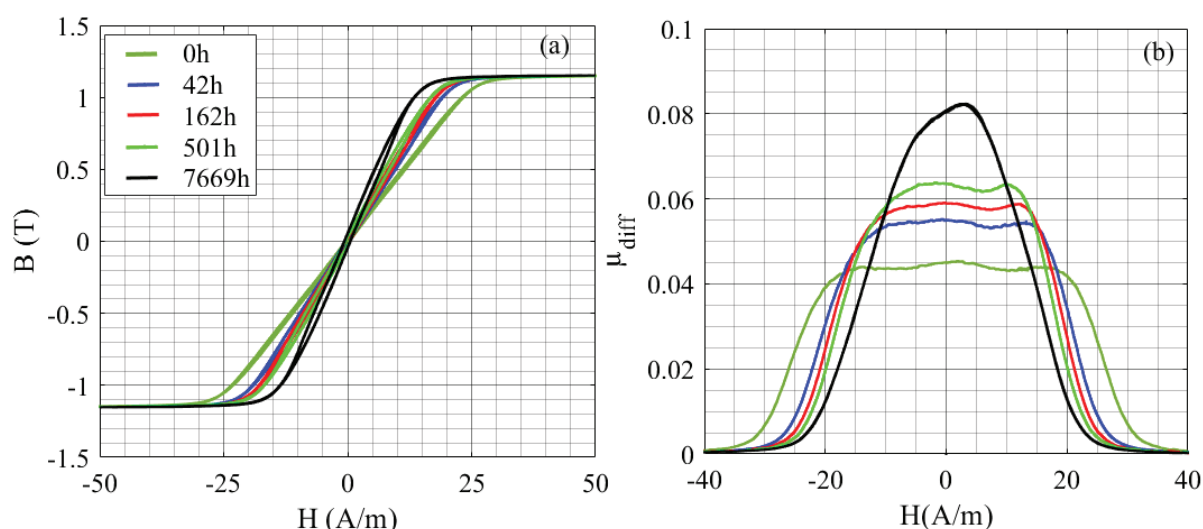


Figure 3-35 Évolution des cycles d'hystérésis (50 A/m, 1 Hz) et de la perméabilité différentielle des matériaux nanocristallins type-F lors du vieillissement à saturation (VAS) à 240°C.

La Figure 3-35-b présente l'évolution de la perméabilité différentielle ($\mu_{diff} = \frac{1}{\mu_0} \frac{dB}{dH}$) en fonction du champ appliqué. Nous avons calculé cette perméabilité seulement sur la branche ascendante du cycle B-H vu que le cycle B-H est symétrique. Avant vieillissement μ_{diff} reste constante sur une large plage du champ magnétique (-15 à 15 A/m), autrement dit, la réponse du matériau au champ appliqué est linéaire. Ensuite, μ_{diff} diminue jusqu'à 0 dans les zones de saturation (~ 35 A/m). Cette plage, où μ_{diff} est constante, se rétrécit de plus en plus en fonction du temps de vieillissement avec une augmentation au niveau de la perméabilité maximale.

La même évolution est constatée pour les nanocristallins type-R, cependant le cycle passe d'une forme arrondie à une forme rectangulaire (Figure 3-36-a) seulement après quelques heures de vieillissement (42 heures). Dans la Figure 3-36-b, nous constatons que l'intervalle du champ magnétique correspondant à une perméabilité différentielle nulle devient plus grand au début du vieillissement (42 heures) avec une augmentation brusque au niveau de la perméabilité maximale. Ensuite, le pic (perméabilité maximale) commence à chuter en changeant sa position par rapport au champ magnétique (de 0.95 A/m avant vieillissement à 1.2 A/m après 7669 heures) dû à l'augmentation du champ coercitif.

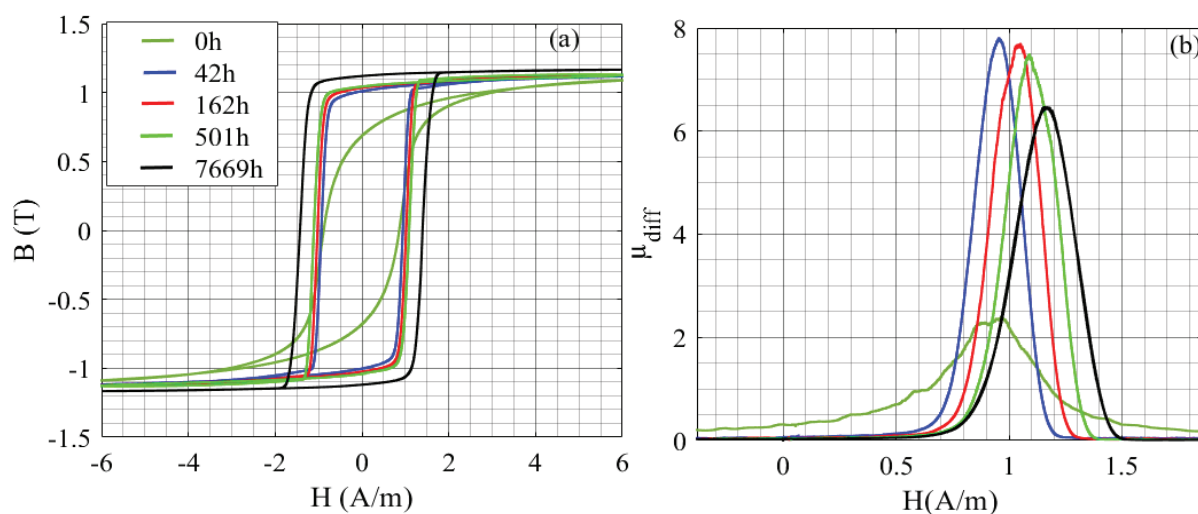


Figure 3-36 Évolution des cycles d'hystérésis (6 A/m, 0.3 Hz) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement à saturation (VAS) à 240°C.

Dans la Figure 3-37, le taux de vieillissement pour le champ coercitif et la perméabilité maximale est plus fort dans les nanocristallins type-F (80% de vieillissement après 8000 heures) par rapport aux autres nuances. D'autre part, la perméabilité maximale des nanocristallins type-R de 62% augmente au début du vieillissement, ensuite elle commence à diminuer à partir de 42 heures en suivant la même cinétique du type-Z pour arriver à une stabilisation autour de 40 %.

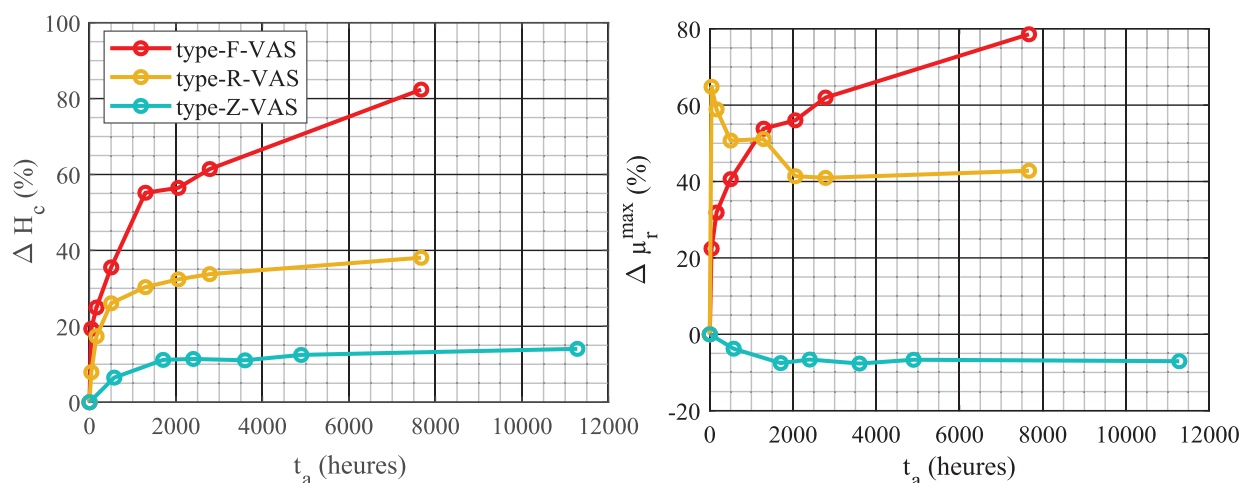


Figure 3-37 Comparaison entre les trois nuances de matériaux nanocristallins lors du vieillissement à saturation (VAS) à 240°C : Évolutions du champ coercitif (à gauche) et de la perméabilité maximale (à droite).

L'évolution de la rectangularité de cycle (Figure 3-38) permet de mettre en évidence la transformation des cycles B-H des deux nuances type-F et type-R en cycle rectangulaire lors du VAS. La nuance type-F montre une forte variation par rapport à son état initial.

D'autre part, la rectangularité du type-R (Figure 3-38), augmente de 50% après 42 heures et reste stable autour de cette valeur pour le reste de la période du vieillissement. Quant à la nuance type-Z, B_r/B_{\max} reste invariable tout au long le temps de vieillissement.

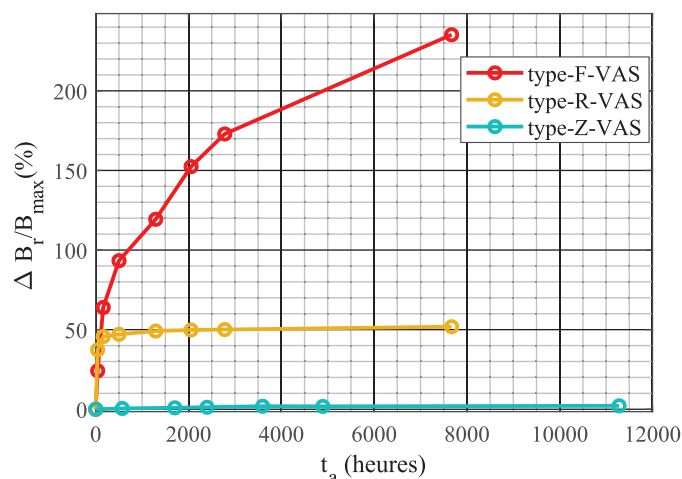


Figure 3-38 Évolution de la rectangularité du cycle des trois nuances des nanocristallins lors du vieillissement à saturation (VAS) à 240°C.

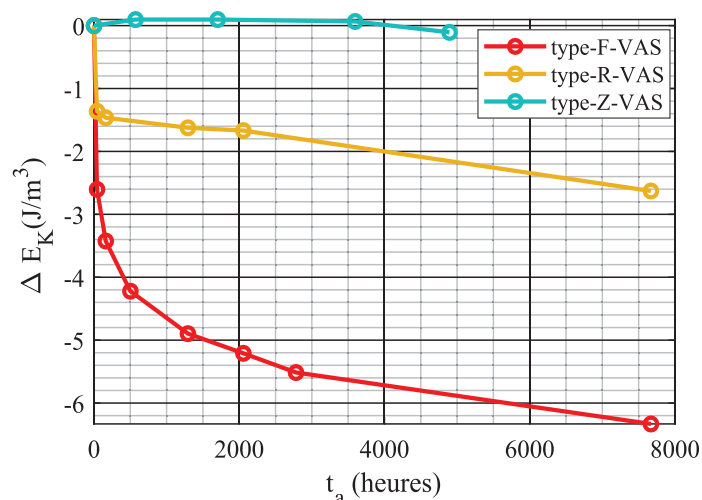


Figure 3-39 Évolution de l'énergie d'anisotropie totale des trois nuances de nanocristallins lors du vieillissement à saturation (VAS) à 240°C.

Pour les nanocristallins type-F, la saturation du matériau lors du vieillissement force le K_{\perp}^{\perp} instauré lors du recuit à s'orienter de 90° selon l'axe longitudinal, autrement dit, la majorité de la structure d'orientation serait modifiée par la réduction le , cela explique la forte diminution de l'énergie d'anisotropie totale présentée dans la Figure 3-39. Alors que dans un nanocristallin type-R, l'angle entre les anisotropies locales aléatoires K_{loc} [19], [90] et l'axe longitudinal est variable

(majoritairement plus faible que 90°), par ailleurs, la réorientation de ces anisotropies par rapport à leurs états de départ sera moins brutale par rapport aux nanocristallins type-F.

Après un certain temps de vieillissement, toutes les anisotropies locales seront orientées selon l'axe longitudinal, par ailleurs, il faut moins d'énergie pour magnétiser le matériau dans l'axe longitudinal à partir de l'état désaimanté jusqu'à la saturation.

Toutes les nuances vont avoir le comportement magnétique des nanocristallins type-Z, cela est déjà observé sur la nuance type-R à partir de 42 heures de vieillissement où la perméabilité commence à suivre la même cinétique d'évolution des nanocristallins type-Z (Figure 3-37).

Nous déduisons à partir de ces essais qu'à une température plus basse que celle du recuit, mais pendant un temps élevé, nous pouvons créer une anisotropie uniforme macroscopique en réduisant les anisotropies transversales et les anisotropies aléatoires. Par ailleurs, les mécanismes de vieillissement thermique se basent sur des principes similaires (réglage des anisotropies) à ceux utilisés pour adapter les propriétés magnétiques pendant le recuit, mais avec une cinétique réduite en raison de la température basse.

3.5 Étude des matériaux nanocristallins en fonction de la température de mesure

Tous les résultats présentés jusqu'à présent ont été obtenus avec des mesures effectuées à la température de 20°C . Dans cette partie nous étudions le comportement magnétique des matériaux nanocristallins type-Z et type-R en fonction de la température de mesure.

Ensuite, la même étude est faite sur un échantillon nanocristallin type-Z vieilli à 200°C afin d'étudier l'impact de la température de mesure sur les résultats du vieillissement. Ces essais sont très coûteux en termes de temps, c'est pourquoi nous n'avons pas effectué la même démarche sur la nuance type-R.

3.5.1 Protocole d'essai

Nous mettons deux échantillons de tore type-Z et un tore type-R à leur état initial dans une chambre climatique. Nous varions la température de -55 à 125°C pendant 15 heures pour assurer une dérive de température lente et faisons les caractérisations en quasi statique selon le protocole 3.2.1 tous les 10 minutes.

Les mêmes étapes sont faites sur un échantillon type-Z vieilli (VAD) à une température de 200°C, cet échantillon a été étudié précédemment dans la partie 3.2.2 (type-Z échantillon 1).

3.5.2 Comportement magnétique des matériaux nanocristallins non vieillis en fonction de la température de mesure

Les propriétés magnétiques optimisées des matériaux nanocristallins sont le résultat de la minimisation des anisotropies magnétocristalline aléatoire et magnétoélastique. La suppression de l'anisotropie magnétocristalline exige que les grains orientés aléatoirement soient couplés par une longueur d'échange L_{ex} plus grande que la taille des nanograins D . Sachant que le couplage ferromagnétique A entre les nano grains se fait à travers la phase amorphe [19], les interactions intergranulaires sont réduites quand la température tend vers la température de Curie de la phase amorphe T_c^{am} (voir 1.3.3). Par ailleurs, les anisotropies locales seront moins efficacement moyennées et les propriétés magnétiques se dégraderont.

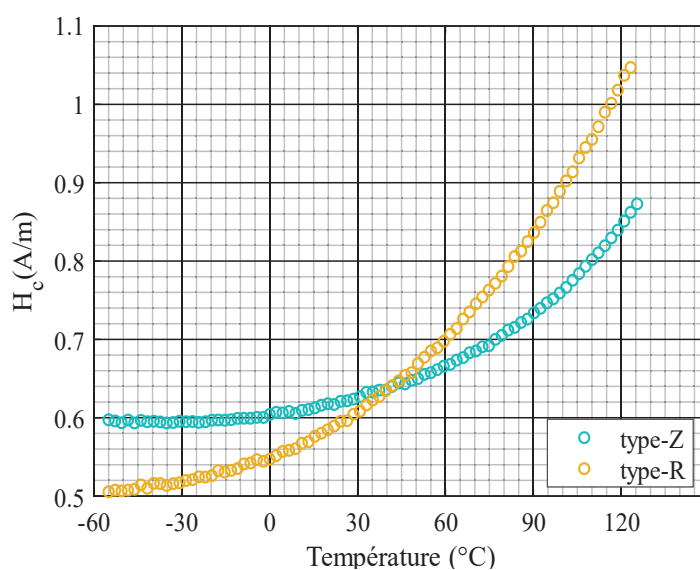


Figure 3-40 Évolution du champ coercitif pour les nanocristallins non vieillis type-R et type-Z en fonction de la température de caractérisation.

Dans la Figure 3-40, nous remarquons que, pour les deux nuances, le champ coercitif augmente avec l'augmentation de la température de mesure tant que cette dernière ne dépasse pas T_c^{am} . Selon Suzuki [92], le couplage d'échange intergranulaire A , à travers la phase amorphe, est perturbé dans la plage $T < T_c^{am}$ car il dépend fortement de la magnétisation dans la phase amorphe (M^{am}) qui commence déjà à diminuer à des températures basses (Figure 3-41).

Cependant, nous constatons que le type-Z est plus stable en température que le type-R, de -55 à 0°C les valeurs sont plus au moins stables autour de 0.6 A/m, ensuite H_c commence à augmenter jusqu'à 0.88 A/m quand la température atteint 125°C. Quant à la nuance type-R, le champ coercitif montre une forte sensibilité par rapport à la température de mesure avec des valeurs qui passent de 0.55 A/m (-55°C) à 1.06 A/m (125°C). La présence d'une énergie d'anisotropie macroscopique uniforme dominante dans les nanocristallins de type-Z leur permet de rester plus stables vis-à-vis d'une augmentation de $\langle K_1 \rangle$ en fonction de la température alors que ce n'est pas le cas pour un nanocristallin de nuance type-R où $\langle K_1 \rangle$ est dominante.

La Figure 3-41 montre que l'induction maximale diminue en fonction de la température de la même manière pour le nanocristallin type-Z et pour le nanocristallin type-R. En effet, l'induction maximale dépend de la composition chimique du matériau et cette dernière est la même pour les deux nuances.

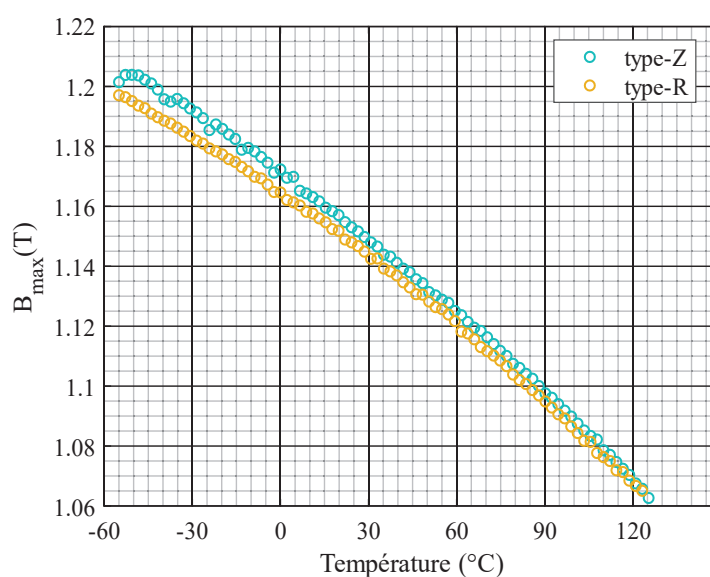


Figure 3-41 Évolution de l'induction maximale pour les nanocristallins type-R et type-Z en fonction de la température de caractérisation (50 A/m, $f=1$ Hz).

3.5.3 Comportement magnétique des matériaux nanocristallins type-Z vieilliss en fonction de la température de mesure

La Figure 3-42 présente les évolutions du champ coercitif et de la perméabilité maximale en fonction de la température de mesure pour différentes durées de vieillissement à 200°C. Nous constatons la même tendance de variation du champ coercitif en fonction de la température pour les différentes périodes de vieillissement avec des erreurs de ± 0.037 A/m.

Quant à la perméabilité maximale, elle diminue en fonction de la température de mesure. L'allure de la variation est plus ou moins la même en fonction du vieillissement. La faible variation observée sur l'allure des courbes reste dans l'intervalle des incertitudes de mesure, cette incertitude est plus forte pour la mesure de la perméabilité maximale (± 31301) où une diminution en amplitude est constatée lors du vieillissement.

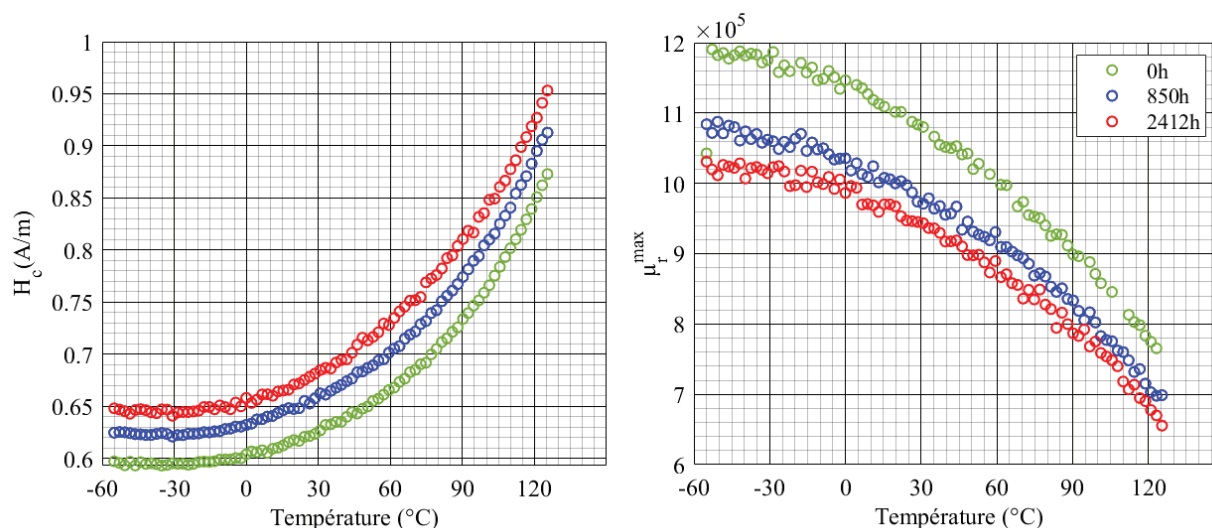


Figure 3-42 Évolutions du champ coercitif et de la perméabilité maximale des nanocristallins type-Z en fonction de la température de mesure pour deux périodes de vieillissement (2A/m, $f=0.3$ Hz).

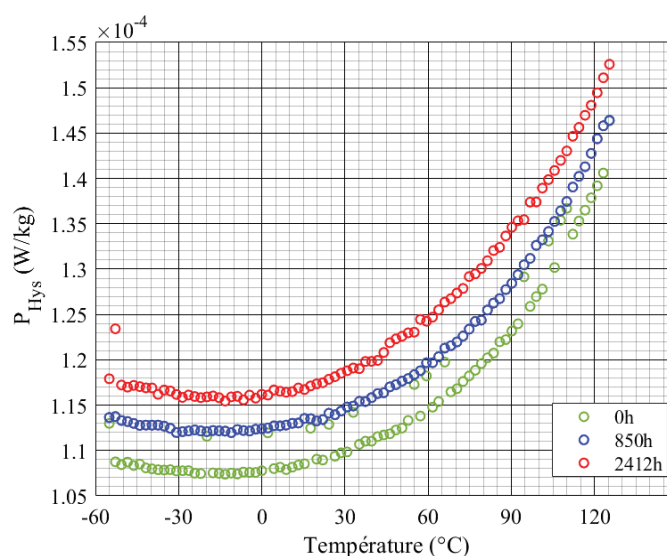


Figure 3-43 Évolution des pertes statiques des nanocristallins type-Z en fonction de la température de mesure pour deux périodes de vieillissement (2A/m, $f=0.3$ Hz).

Les pertes par hystérésis statique (Figure 3-43) présentent les mêmes évolutions que le champ coercitif. Quant à l'induction maximale B_{\max} et la rectangularité du cycle B_r/B_{\max} (Figure 3-44),

elle garde les mêmes évolutions en fonction de la température quel que soit le temps de vieillissement. Autrement dit, ces deux paramètres ne changent pas lors du vieillissement, ce qui a été déjà constaté dans la section 3.2.2 pour les mesures faites à 20°C.

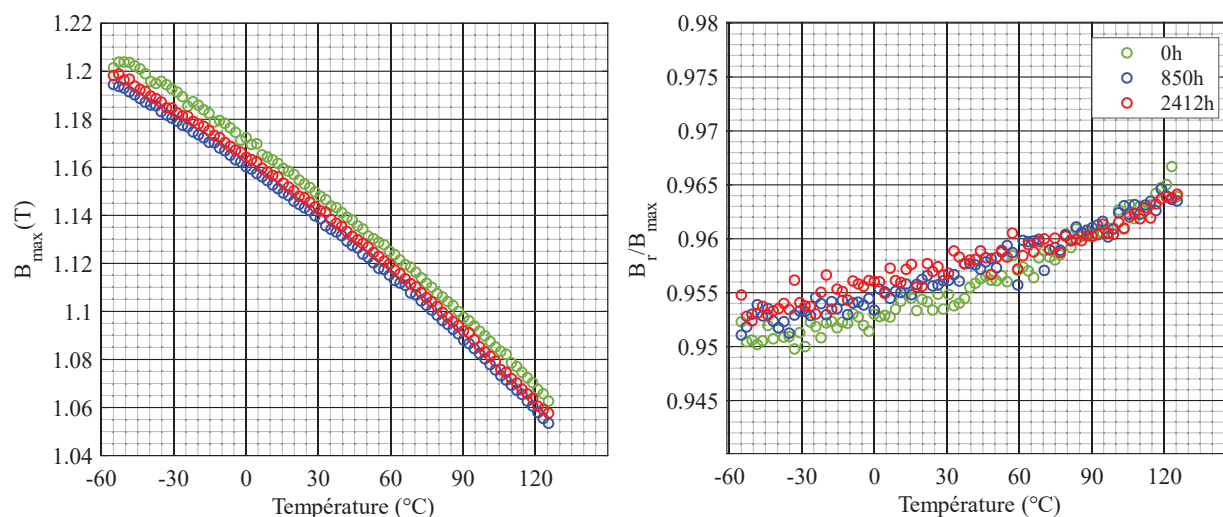


Figure 3-44 Évolutions de l'induction maximale et de la rectangularité du cycle des nanocristallins type-Z en fonction de la température de mesure pour deux périodes de vieillissement.

Nous concluons que, l'évolution (en valeurs relatives) du vieillissement magnétique des nanocristallins type-Z ne dépend pas de la température de mesure si cette dernière est dans un intervalle de -55 à 125°C. De plus, l'allure de la variation des PM en fonction de la température qui ne change pas lors du vieillissement, confirme encore une fois que la microstructure du matériau n'a pas changé lors du vieillissement.

3.6 Étude du nouveau recuit des matériaux nanocristallins

3.6.1 Protocole de vieillissement

Nous étudions la nuance type-R et la nuance type-Z du nouveau recuit B lors du vieillissement (VAD) sous quatre températures 110, 150, 200 et 240°C. Nous considérons deux échantillons pour chaque température pour tenir compte de l'éventuelle dispersion des propriétés magnétiques entre les tores.

- Après un intervalle de temps X aléatoirement choisi, les échantillons exposés à la plus haute température (240°C) sont sortis de l'étuve, refroidis, mis dans une chambre climatique à 20°C et caractérisés.

- Deux caractérisations magnétiques en quasi-statique à champ d'excitation magnétique imposé sont faites à t=0 heure et après chaque durée de vieillissement :
 Caractérisations à champ d'excitation imposé élevé de 50 A/m, f=1 Hz pour relever l'induction maximale B_{\max} . Le coefficient de foisonnement est réglé pour fixer $B_{\max, 50 \text{ A/m}}=1.15 \text{ T}$.
 Caractérisations à champ d'excitation faible de 2-5 A/m et f=300 mHz pour relever les propriétés magnétiques (champ coercitif H_c , perméabilité maximale μ_r^{\max} ...).
- Si les caractérisations des échantillons ne révèlent pas de changement alors on double l'intervalle du temps de vieillissement pour toutes les températures ($2 \times X$).
- Si les caractérisations révèlent des changements alors nous caractérisons les échantillons soumis à des températures inférieures et on double l'intervalle du temps de vieillissement ($2 \times X$).
- Les échantillons sont désaimantés par la méthode des cycles concentriques (section 2.3.3) avant de les replacer dans les étuves.

3.6.2 État magnétique initial

Le Tableau 3-4 présente les propriétés magnétiques en quasi statique à l'état initial (avant vieillissement), des nanocristallins type-Z mesurées à $H_{\max}=2 \text{ A/m}$, f=300 mHz et des nanocristallins type-R mesurées à $H_{\max}=5 \text{ A/m}$, 300 mHz.

Tableau 3-4 Propriétés magnétiques quasi-statiques des matériaux nanocristallins du recuit B avant vieillissement.

Nuance	$H_c(\text{A/m})$	B_r/B_{\max}	μ_r^{\max}	$E_K (\text{J/m}^3)$
Type-Z	0.84	0.96	750000	1.36
Type-R	0.86	0.76	480000	4.14

Les propriétés magnétiques des matériaux ayant eu le recuit B sont légèrement différentes de celles des matériaux issus du recuit A. Cette différence est présentée sur la Figure 3-45 qui montre les cycles B-H quasi-statiques. Quel que soit la nuance, type-R ou type-Z, le cycle B-H du recuit B est plus large par rapport à celui du recuit A. Dans la nuance type-R, le champ coercitif passe de 0.6

A/m pour le recuit A à 0.86 A/m pour le recuit B. D'autre part, la rectangularité du cycle est plus grande pour les échantillons traités par le recuit B.

Pour la nuance type-Z, nous faisons la même constatation au niveau du champ coercitif avec une différence de ~ 0.24 A/m entre les deux recuits. Quant à la perméabilité maximale, elle est plus faible (~ 750000) pour le recuit B que celle pour le recuit A (~ 1100000).

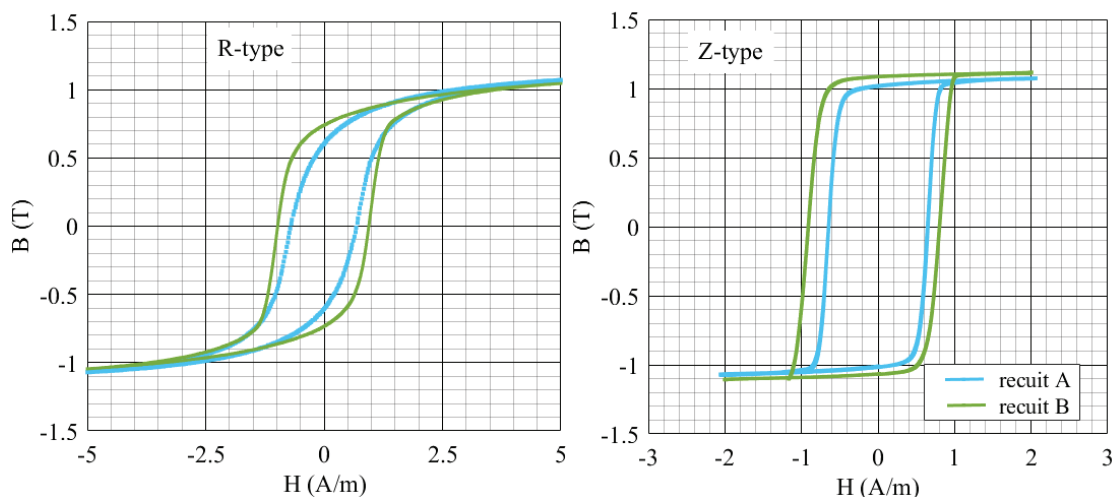


Figure 3-45 Comparaison entre les cycles B-H quasi statiques (type-Z : 2A/m, $f=0.3$ Hz ; type-R : 5 A/m, $f=0.3$ Hz) du recuit A et du recuit B avant vieillissement.

3.6.3 Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement

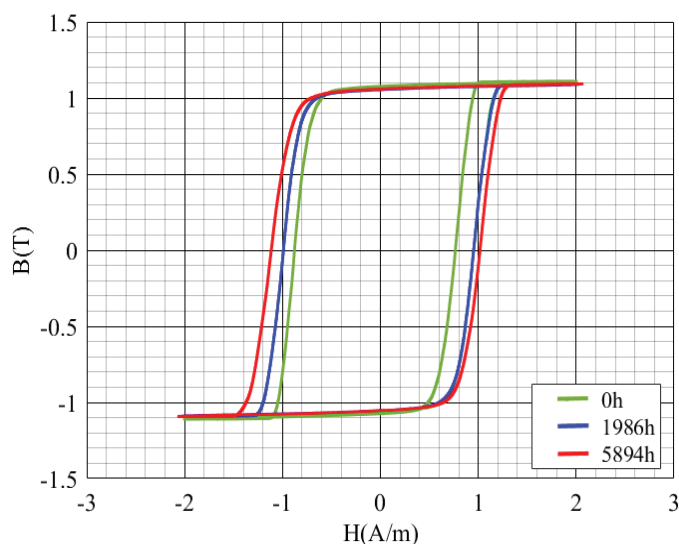


Figure 3-46 Evolution du cycle B-H en quasi statique (2A/m, $f=300$ mHz) des nanocristallins type-Z du recuit B lors du vieillissement à 240°C.

La Figure 3-46 représente l'évolution des cycles d'hystérésis mesurés en quasi statique pour différentes durées de vieillissement à 240°C. Nous constatons que les cycles s'élargissent au niveau du champ coercitif en gardant la même rectangularité, donc B_r/B_{max} est constant lors du vieillissement. Dans la Figure 3-47, nous comparons les évolutions du champ coercitif et de la perméabilité maximale des deux recuits lors du vieillissement à différentes températures.

A la plus haute température de vieillissement accéléré (240°C), nous remarquons une augmentation de 25% au niveau du H_c des nanocristallins du recuit B après 5894 heures de vieillissement, alors que le champ coercitif des nanocristallins du recuit A se dégrade de 48%. Pour les températures de 150 et 200°C, des faibles variations (< 15%) sont observées lors du vieillissement. Pour les basses températures (100°C pour le recuit A et 110°C pour le recuit B) nous ne constatons aucune évolution pour toutes les propriétés magnétiques.

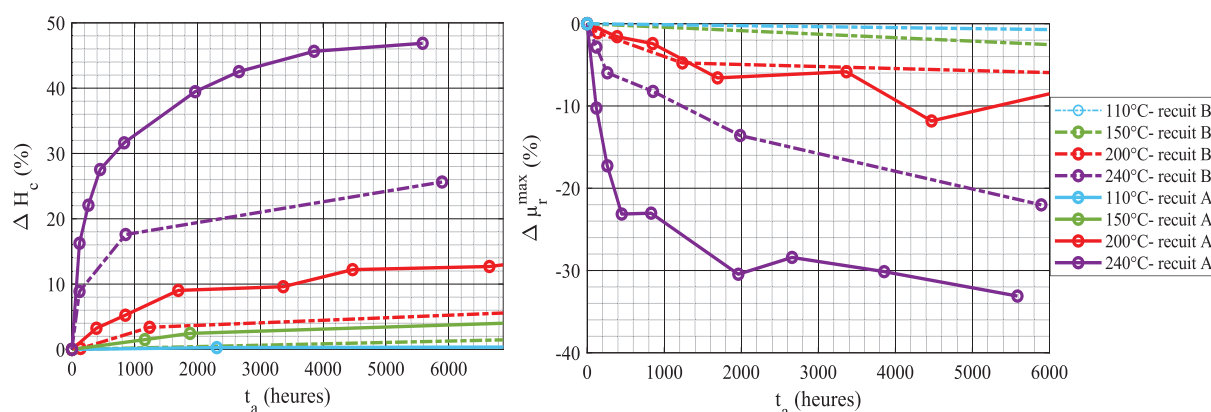


Figure 3-47 Évolutions du champ coercitif (à gauche) et de la perméabilité maximale (à droite) des nanocristallins type-Z traités par les deux recuits lors du vieillissement sous différentes températures.

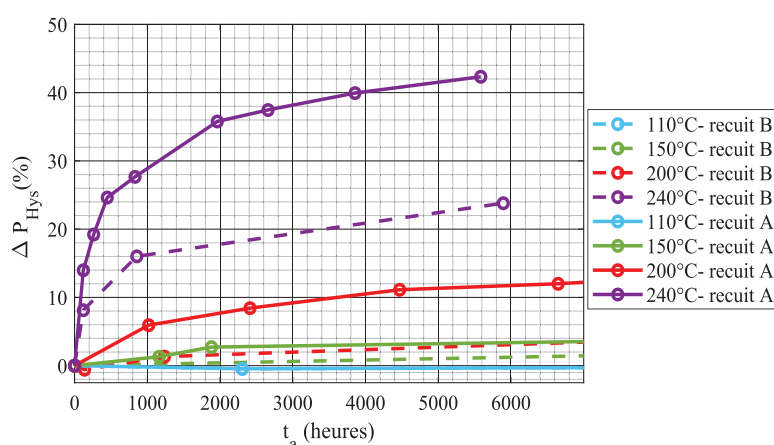


Figure 3-48 Évolution des pertes statiques des nanocristallins type-Z traités par les deux recuits lors du vieillissement à différentes températures.

Les mêmes constatations sont observées pour le comportement des pertes statiques présentées dans la Figure 3-48 lors du vieillissement, nous en concluons que les nanocristallins du recuit B montrent plus de stabilité dans le temps par rapport aux nanocristallins du recuit A. Quant à la perméabilité maximale, elle diminue en fonction du temps de vieillissement à haute température, cette diminution est plus importante pour le recuit A.

Nous déduisons que le nouveau recuit (recuit B) a permis d'améliorer la stabilité dans le temps de la nuance type-Z en supprimant l'intervalle de temps où la vitesse de variation est importante. En effet, après un certain temps de vieillissement, nous remarquons qu'entre le recuit A et le recuit B nous avons la même vitesse ou allure de variation avec seulement un « offset ». Par ailleurs, le comportement du recuit B pourrait être obtenu à partir du recuit A en faisant un pré-traitement ou un pré-vieillissement sur les échantillons.

3.6.4 Évolution des PM des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement

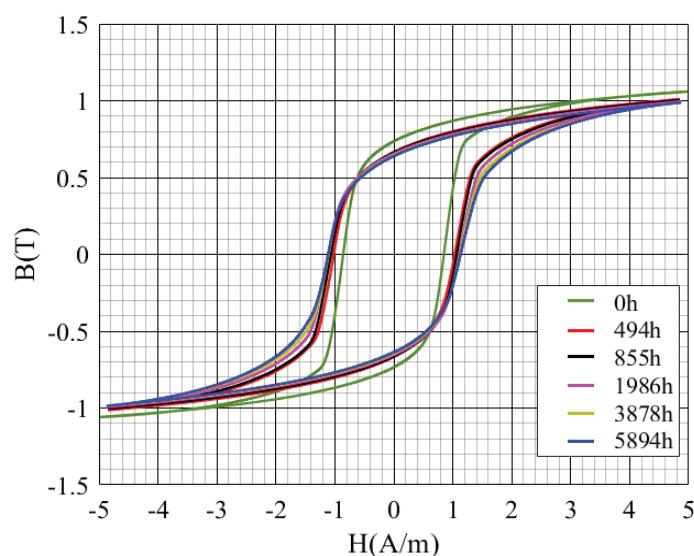


Figure 3-49 Évolution du cycle B-H en quasi statique ($f=300$ mHz) des nanocristallins type-R du recuit B lors du vieillissement à 240°C .

La Figure 3-49 présente l'évolution des cycles d'hystérésis mesurés en quasi statique pour différentes durées de vieillissement à 240°C . Lors du vieillissement, les cycles s'élargissent au niveau du champ coercitif, d'autre part, nous constatons une diminution au niveau du coude du cycle ce qui engendre une diminution de la perméabilité maximale mais aussi de l'induction rémanente.

Dans la Figure 3-50, nous comparons l'évolution du champ coercitif pour les deux recuits et pour différentes températures de vieillissement. À la plus haute température de vieillissement accéléré (240°C), nous remarquons une augmentation de 40% au niveau du H_c des nanocristallins du recuit B après 5894 heures de vieillissement, alors que le champ coercitif des nanocristallins du recuit A se dégrade de 175% lors du vieillissement dans les mêmes conditions.

De même, pour les températures de 150 et 200°C, le champ coercitif des nanocristallins du recuit B est plus stable lors du vieillissement par rapport aux nanocristallins du recuit A. Pour les basses températures (100°C pour le recuit A et 110°C pour le recuit B), aucune variation n'est constatée lors du vieillissement.

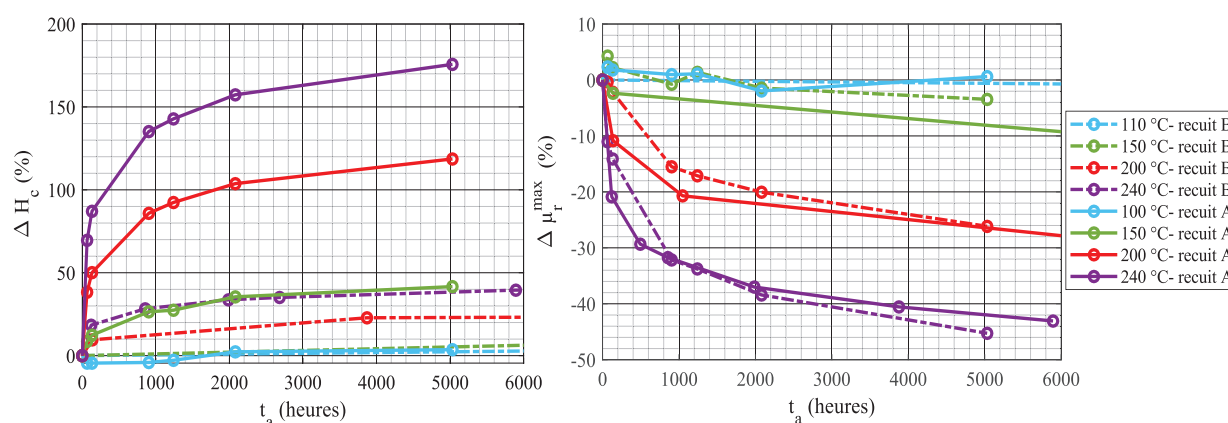


Figure 3-50 Évolutions du champ coercitif des nanocristallins type-R du recuit A et du recuit B lors du vieillissement à trois températures.

Quant à la perméabilité maximale, nous constatons que son évolution lors du vieillissement est la même pour les deux recuits. Par ailleurs, nous pouvons déduire que l'amélioration de la stabilité lors du vieillissement apportée par le recuit B était constatée sur le champ coercitif mais pas sur la perméabilité maximale qui garde le même comportement que celui du recuit A lors du vieillissement.

Dans la Figure 3-51, nous remarquons que les pertes statiques des nanocristallins du recuit B augmentent faiblement en fonction du temps de vieillissement à hautes températures (200 et 240°C). En effet, l'évolution atteint une asymptote de stabilisation juste après quelques heures de vieillissement contrairement au recuit A. Comme pour le cas du recuit A étudié et expliqué au 3.4, les nanocristallins du recuit sans champ (type-R) se dégradent fortement par rapport aux nanocristallins du recuit sous champ (type-Z).

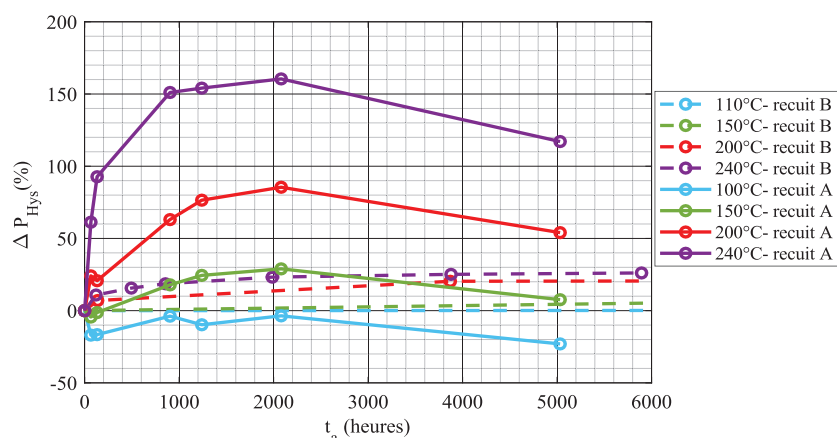


Figure 3-51 Evolution des pertes statiques des nanocristallins type-R du recuit A et du recuit B lors du vieillissement à différentes températures.

Dans la Figure 3-52 nous comparons les évolutions du champ coercitif et de la perméabilité maximale lors du vieillissement à deux températures (200 et 240°C) pour les deux nuances type-R et type-Z du recuit B. Après 6000 heures de vieillissement à 240°C, le champ coercitif H_c se dégrade pour la nuance type-R de 40 %, tandis que pour les nanocristallins du recuit sous champ (type-Z) le champ coercitif a augmenté de 27% de sa valeur initiale. Quant à la perméabilité maximale, elle diminue de 45% pour la nuance type-R et de 22% pour la nuance type-Z.

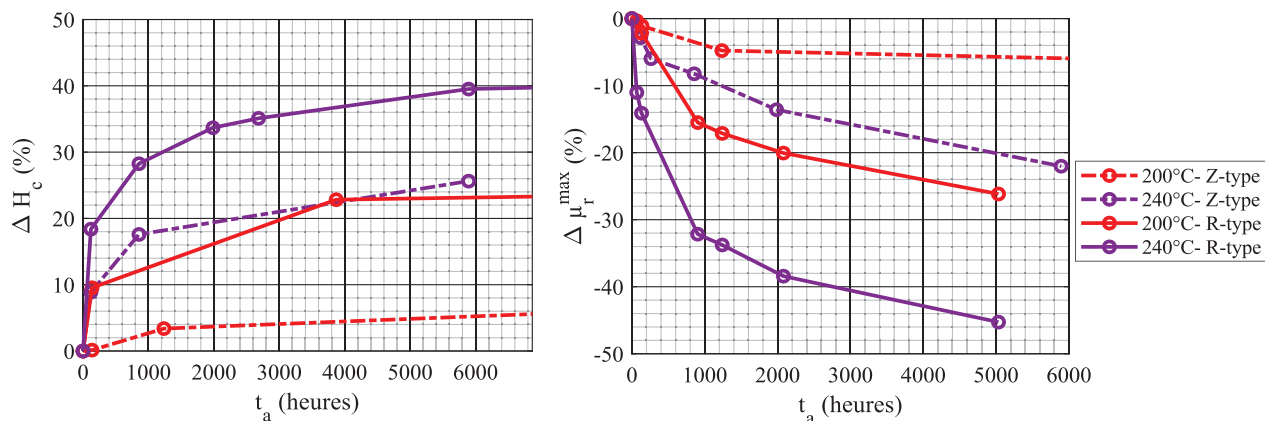


Figure 3-52 Comparaison entre les deux nuances du recuit B lors du vieillissement à deux températures de vieillissement : Champ coercitif (à gauche) perméabilité maximale (à droite).

3.7 Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons complété l'étude des nuances type-R et type-F lors du vieillissement à l'état désaimanté en rajoutant le comportement de la nuance type-Z. Les différentes mesures microscopiques notamment de DRX, n'ont montré aucun changement lors du vieillissement au niveau de la microstructure, de la taille des grains, de la phase et des contraintes internes. La

dégradation est liée à la modification des énergies d'anisotropies existantes dans le matériau (instaurées lors du recuit). Ces modifications d'anisotropie et leurs taux de dégradation influant sur les propriétés macroscopiques sont liés :

- Aux conditions du recuit, par conséquent à la nature de l'anisotropie dominante avant le vieillissement (uniforme ou aléatoire).
- Aux conditions de vieillissement : La température, le temps de vieillissement et l'état magnétique du matériau lors du vieillissement (désaimanté, saturé ou rémanent).

Les vieillissements sous champ continu (VAS) ont permis de démontrer que, même à basse température, nous pouvons créer une anisotropie macroscopique uniforme en réduisant les anisotropies transversales et les anisotropies aléatoires. Par ailleurs, les mécanismes de vieillissement sont similaires aux mécanismes utilisés pendant le recuit, mais avec une vitesse de variation réduite en raison de la température basse. Ensuite, nous avons étudié le comportement magnétique des nanocristallins en fonction de la température de mesure (-55 à 125°C), cela nous a permis de conclure que :

- La nuance type-Z est plus stable en température par rapport à la nuance type-R.
- L'évolution du vieillissement des nanocristallins type-Z est indépendant de la température de mesure. Dans ce cas, toutes les analyses faites à 20°C restent valables pour d'autres températures de mesures. L'intérêt de cette conclusion réside dans le fait que l'intervalle de températures étudié représente celui des températures de fonctionnement des matériaux nanocristallins dans la majorité de leurs applications.

En toute dernière partie, nous avons étudié deux nuances de nanocristallins obtenus sous un nouveau recuit développé par APERAM. Ce nouveau recuit a permis d'obtenir une stabilité en termes de vieillissement par rapport à l'ancien recuit notamment pour le champ coercitif et les pertes statiques des deux nuances. Cependant, ce nouveau recuit n'a pas apporté une amélioration de la perméabilité maximale de la nuance type-R lors du vieillissement.

Chapitre 4 : Vieillissement des nanocristallins sous excitation variable et impacts sur le fonctionnement des capteurs de courant

4.1 Introduction

Dans ce dernier chapitre, nous présentons le vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins du lot N°3 sous les deux contraintes cumulées en température et en excitation variable. La magnétisation des tores lors du vieillissement est assurée par des cartes électroniques conçues pour des capteurs de courant fluxgate de la société LEM.

Nous suivons en premier temps l'évolution des propriétés magnétiques statiques et dynamiques des nanocristallins sous ces conditions. Ensuite, nous expliquons le comportement magnétique statique lors du vieillissement à l'aide d'une analyse sur les énergies d'anisotropies. Celle-ci est faite en comparant les résultats du vieillissement avec une excitation alternative avec ceux du vieillissement sans excitation (c'est-à-dire avec désaimantation).

A la fin de ce chapitre, nous étudions l'impact du vieillissement magnétique sur les propriétés électriques du capteur (A) notamment la fréquence d'excitation, l'offset et l'erreur du gain. Dans ce cas, les paramètres du capteur sont évalués avec des noyaux non-vieillis et des noyaux vieillis en mesurant différents courants primaires I_p , sous différentes températures de mesures.

Le principe de fonctionnement des capteurs fluxgate LEM est décrit dans le chapitre 1. Certains résultats ne sont pas présentés dans ce chapitre pour des raisons de confidentialité.

4.2 Protocole de vieillissement

- Deux nuances (type-R et type-Z) des matériaux magnétiques nanocristallins sous forme de tore sont étudiées lors du vieillissement sous quatre températures (-55, 110, 150 et 200°C). Trois capteurs sont étudiés (A, B et C). Aucune variation n'est constatée lors du vieillissement à -55°C pour les trois capteurs. Les évolutions des PM à cette température ne sont pas présentées.

-
- Chaque tore est excité à travers un bobinage par une carte électronique du capteur de courant fluxgate (voir section 2.3.4). Tous les capteurs de courant sont à vide, autrement dit, il n'y a pas un courant à mesurer dans un conducteur ($I_p = 0A$).
 - Nous mettons deux échantillons de chaque nuance à la même fréquence d'excitation pour vérifier la dispersion des propriétés magnétiques entre les tores. Au total, nous avons $6*Z+6*R$ par étuve et sous quatre températures, donc 48 capteurs.
 - Après un intervalle de temps X choisi en se basant sur les essais du vieillissement sans excitation, les échantillons sont sortis, refroidis et mis dans une enceinte climatique à $T = 20^\circ C$ pour une caractérisation en quasi statique. Nous caractérisons les échantillons soumis à la plus haute température de vieillissement ($200^\circ C$), si les caractérisations des échantillons ne révèlent pas de changement alors l'intervalle de temps de vieillissement pour toutes les températures est doublé ($2*X$), si les caractérisations révèlent des changements alors nous caractérisons les échantillons soumis à des températures inférieures et nous doublons l'intervalle de temps de vieillissement ($2*X$).
 - Après les caractérisations en quasi-statique, les échantillons passent aux caractérisations en dynamique à la température ambiante de $20^\circ C$ puis sont ensuite replacés à la température de vieillissement.

Dans ce chapitre nous présentons uniquement les résultats des matériaux vieillis sous l'excitation du capteur (A). Les résultats sur les capteurs (B) et (C) ne sont pas présentés ni discutés car les variations magnétiques qu'ils ont subies sont très faibles par rapport aux incertitudes de mesures. Néanmoins, quelques résultats magnétiques sont présentés dans les annexes A et B.

4.2.1 Caractérisations en quasi-statique

Des caractérisations magnétiques en quasi-statique à $T = 20^\circ C$ et à champ d'excitation magnétique imposé sont faites avant vieillissement (à $t=0$ h) puis après chaque intervalle du vieillissement :

- Caractérisations à champ d'excitation imposé élevé à $50 A/m$, $f=1 Hz$ pour relever l'induction maximale B_{max} . Le coefficient de foisonnement est réglé pour fixer B_{max} à $1.15 T$ pour $50 A/m$ de champ maximal appliqué.
- Caractérisations à champ d'excitation faible pour relever les différentes propriétés magnétiques (champ coercitif H_c , perméabilité maximale μ_{max} , le rapport B_r/B_{max} , etc.).

- Une désaimantation est effectuée avec la méthode des cycles concentriques afin de relever la courbe de première aimantation et calculer l'énergie d'anisotropie totale E_K (section 2.3.3).
- Après la désaimantation, tous les échantillons sont remis dans les étuves.

Le Tableau 4-1 présente les propriétés magnétiques en quasi statique avant vieillissement, de la nuance type-Z mesurées à 2 A/m, $f=0.3$ Hz et la nuance type-R mesurées à 6 A/m, $f=1$ Hz, nous donnons les valeurs moyennes obtenues sur 8 échantillons.

Tableau 4-1 Propriétés magnétiques mesurées en quasi statique des nanocristallins type-Z et type-R avant vieillissement.

	H_c (A/m)	B_r/B_{max}	μ_r^{max}	E_K (J/m ³)
Type-Z	0.44	0.8	750000	1.55
Type-R	0.55	0.4	400000	2.4

4.2.2 Caractérisations en dynamique

Deux caractérisations avec une excitation alternative de chaque capteur sont faites :

- Une caractérisation à la température ambiante et une caractérisation à la température du vieillissement de chaque tore.
- Sur chaque carte électronique, nous récupérons les signaux suivants : la tension aux bornes de la résistance shunt V_{shunt} afin de mesurer le champ magnétique H , la tension aux bornes de la bobine secondaire V_b afin de mesurer l'induction B et d'autres grandeurs électriques comme la tension d'alimentation V_{source} .
- Ensuite, les données sont traitées afin de tracer des cycles d'hystérésis dynamiques et de relever les différentes propriétés magnétiques (le champ H_{dyn} à $B=0$ T, la perméabilité maximale μ_r^{max} , les pertes dynamiques P_{tot}), plus la fréquence d'excitation f .

Les propriétés magnétiques relevées en dynamique (avant vieillissement) sont présentées dans le Tableau 4-2. Ces caractérisations sont des valeurs moyennes sur 8 tores de chaque nuance :

Tableau 4-2 Propriétés magnétiques des nanocristallins type-Z et type-R mesurées avant vieillissement à ~22 kHz et à la température ambiante.

	H_{dyn} (A/m)	B_r/B_{max}	μ_r^{max}	P_{tot} (W/kg)
Type-Z	6.7	1	75000	115
Type-R	6.38	1	67000	100

Ce travail a été très coûteux en en termes de temps (installation du banc d'essai, préparation des cartes électroniques, préparation des échantillons, caractérisations statiques, caractérisations dynamiques, etc.), par ailleurs, l'étude d'incertitude de mesures dynamiques n'a pas été faite d'une manière explicite sur chaque type de capteur (A, B et C). Nous avons estimé les erreurs de répétabilité sur les propriétés magnétiques du capteur A sur un seul nanocristallin type-Z, en faisant 10 mesures en dynamique. Les résultats sont : $P_{\text{tot}}=131 \text{ W/kg} \pm 2\%$, $H_c=6.58 \text{ A/m} \pm 2.5\%$, $\mu_r^{\text{max}}=75400 \pm 2\%$.

4.3 Évolution des PM lors du vieillissement sous excitation

4.3.1 Matériaux nanocristallins type-Z

4.3.1.1 Caractérisation en quasi statique

La Figure 4-1 présente l'évolution des cycles d'hystérésis statique de la nuance type-Z lors du vieillissement sous excitation de $\sim 22 \text{ kHz}$ à 200°C . Nous constatons que le cycle B-H se redresse en fonction du temps du vieillissement pour les trois températures.

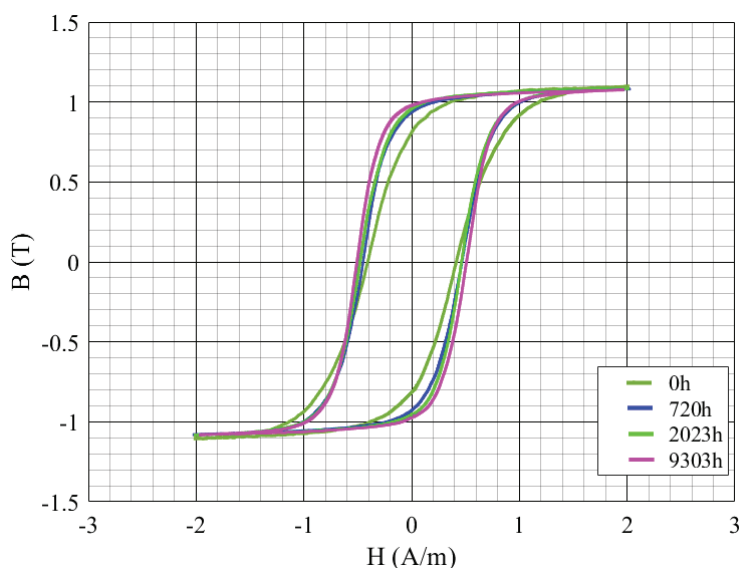


Figure 4-1 Évolution des cycles B-H en quasi statique (2A/m , $f=0.3 \text{ Hz}$) des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative.

Cette évolution se traduit par une augmentation de la rectangularité (Figure 4-2) du cycle en fonction du vieillissement. Elle se traduit aussi par une augmentation de la perméabilité (Figure 4-3) qui se stabilise rapidement autour de 1500 heures de vieillissement à 200 et à 110°C de température de vieillissement.

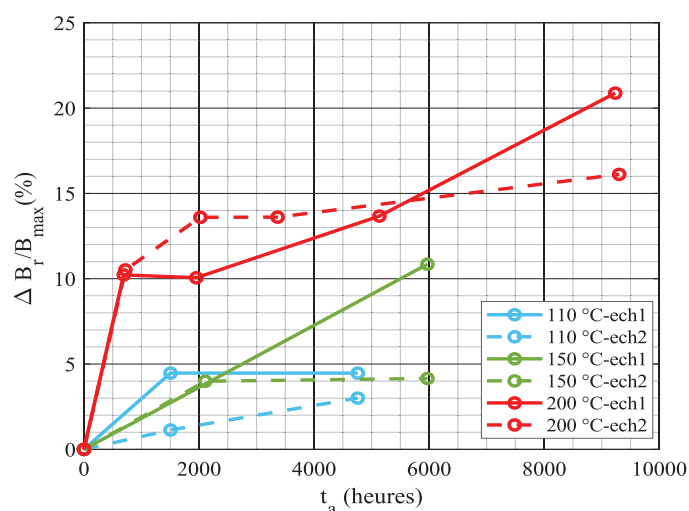


Figure 4-2 Évolution de la rectangularité (mesurée à 2 A/m, $f=0.3$ Hz) des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement sous excitation alternative.

L'évolution de μ_r^{\max} à 150°C ne présente pas de stabilisation en fonction du temps de vieillissement. Quant au champ coercitif, son augmentation est significative lors du vieillissement à 200°C contrairement aux autres températures 150 et 110°C où les variations sont très faibles et noyées dans l'incertitude de mesure ($\pm 5.6\%$).

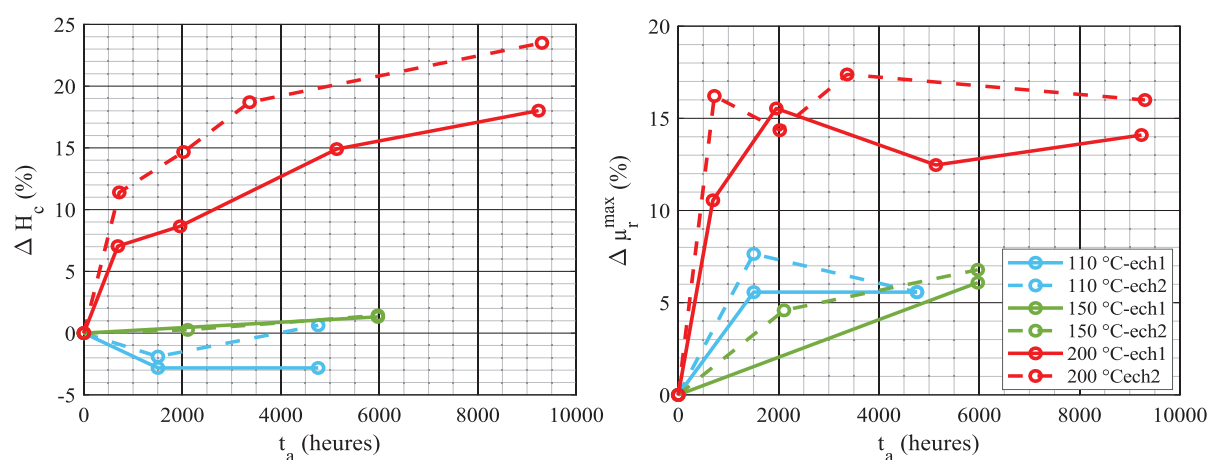


Figure 4-3 Évolutions du champ coercitif (à gauche), et de la perméabilité maximale (à droite) des matériaux nanocristallins type-Z (mesurés à 2 A/m, $f=0.3$ Hz) lors du vieillissement sous excitation.

4.3.1.2 Caractérisations en dynamique

La Figure 4-4 montre l'évolution des cycles d'hystérésis en dynamique mesurés à 26°C et à 200 °C, lors d'un vieillissement à 200 °C. Les cycles d'hystérésis dynamiques ne montrent pas de changements notables par rapport aux caractérisations statiques. Nous remarquons que l'induction

B_{\max} diminue quand la température de mesure augmente (200°C), mais pas en fonction du temps de vieillissement.

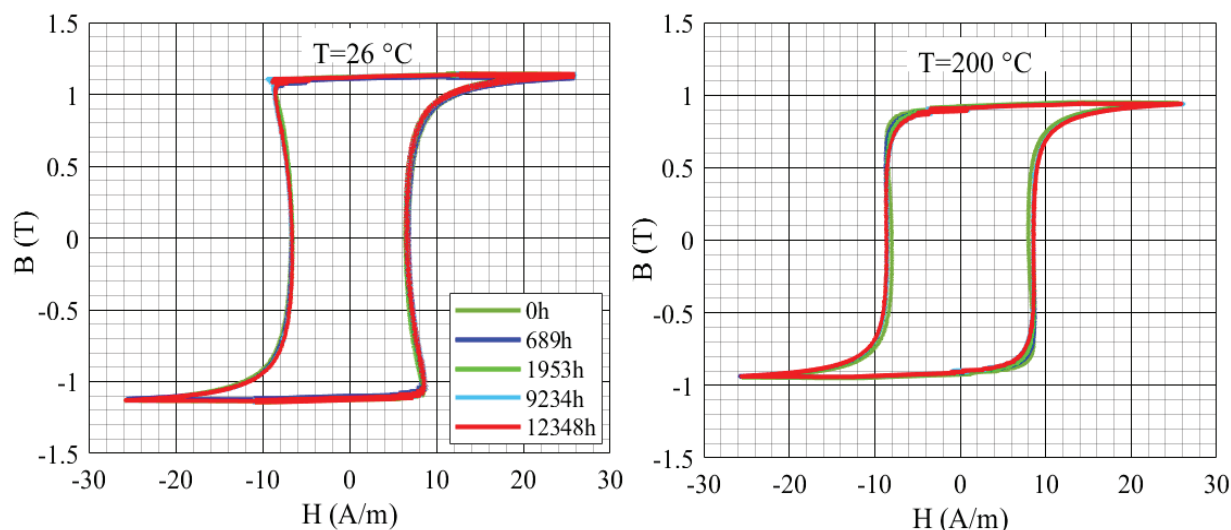


Figure 4-4 Évolutions des cycles d'hystérésis dynamiques des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C sous excitation alternative.

Dans la section 3.5, nous avons expliqué ce comportement en température qui a été lié à la diminution de la longueur d'échange quand la température se rapproche de la température de Curie de la phase amorphe. Les autres PM en dynamique mesurées à 200°C semblent varier très peu. Dans ce qui suit nous ne montrons que les évolutions des PM mesurées en dynamique à 26°C.

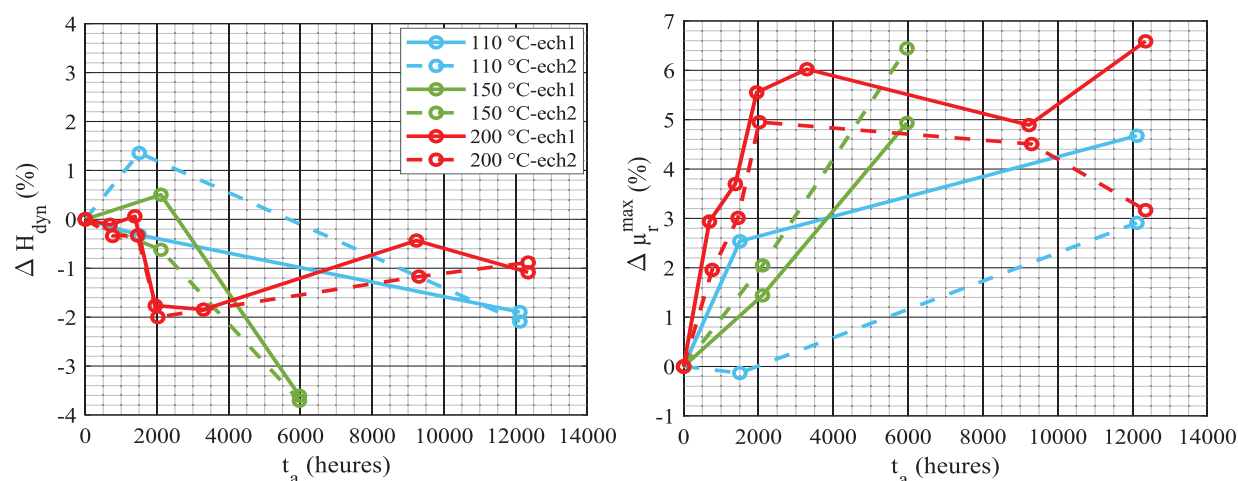


Figure 4-5 Évolutions du champ H_{dyn} et de la perméabilité maximale μ_r^{max} (mesurés à 25 A/m, $f=22$ kHz, $T=26^\circ\text{C}$) des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement sous excitation alternative.

Nous pouvons supposer que les variations des mesures en quasi statique sont noyées dans celles effectuées en dynamique. En effet, le champ coercitif en quasi statique H_c avant vieillissement est

10 fois moins élevé que celui en dynamique H_{dyn} (6 A/m). Ce dernier montre des faibles variations lors du vieillissement (Figure 4-5) qui restent dans l'intervalle d'incertitude de mesure qui est +/- 2.5%. Sur la même figure, la perméabilité maximale a tendance à augmenter sensiblement, un vieillissement semble agir sur μ_r^{max} de la même façon quelque soit la température de vieillissement.

Quant à la rectangularité du cycle B_r/B_{max} , elle est restée constante tout au long de la période du vieillissement, ceci pourra être observé sur la superposition des cycles sur la Figure 4-4. Quelle que soit la température de vieillissement, les pertes totales (Figure 4-6) présentent une faible variation (-6% et 2%) jusqu'à environ 12 000 heures de vieillissement.

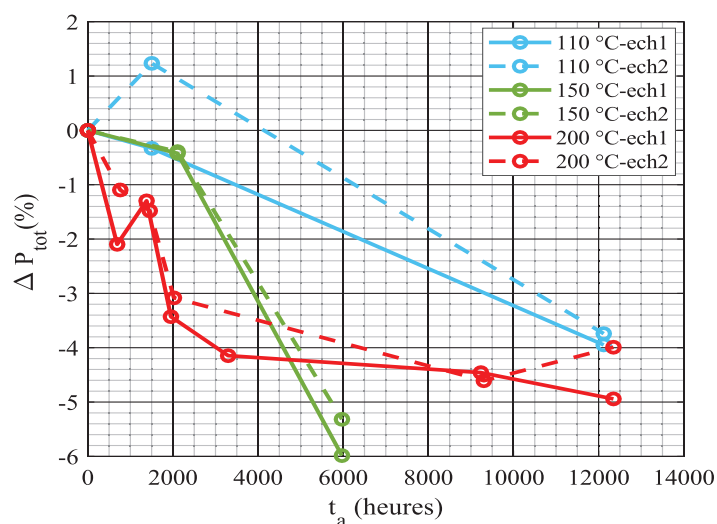


Figure 4-6 Évolution des pertes totales (mesurées à 25 A/m, $f=22$ kHz, $T=26^\circ\text{C}$) des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement sous excitation alternative.

4.3.2 Matériaux magnétiques nanocristallins type-R

4.3.2.1 Caractérisations en quasi statique

La Figure 4-7 présente l'évolution des cycles d'hystérésis en quasi statique lors du vieillissement à 200°C sous excitation de ~ 22 kHz. Nous constatons que le cycle B-H passe d'un cycle rond à un cycle de plus en plus rectangulaire en fonction du temps de vieillissement. Cette évolution se traduit par une augmentation importante de la rectangularité du cycle B_r/B_{max} et de la perméabilité (Figure 4-8 et Figure 4-9 respectivement).

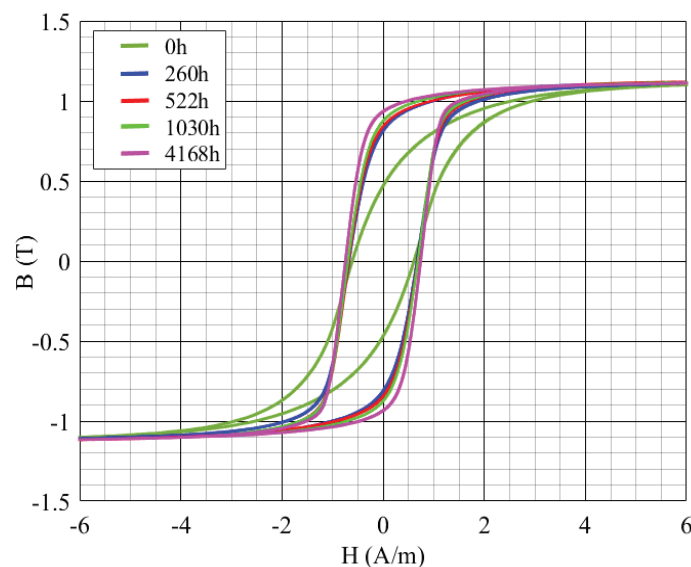


Figure 4-7 Évolution des cycles B-H en quasi statique (6A/m, f=1 Hz) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement à 200°C sous excitation alternative.

Nous remarquons une rapide et forte variation au début du vieillissement (jusqu'à 500 heures environ), puis une évolution plus lente et tendant vers une asymptote. Ceci est valable pour les trois températures de vieillissement présentées. Ces variations sont aussi importantes pour les basses températures (110°C et 150°C) contrairement aux évolutions recueillies sur les nanocristallins type-Z. En effet, pour la plus faible température présentée (110°C), l'évolution de B_r/B_{max} atteint plus de 29% d'augmentation après 8000 heures de vieillissement et μ_{max} atteint plus de 17% d'augmentation après 8000 heures de vieillissement.

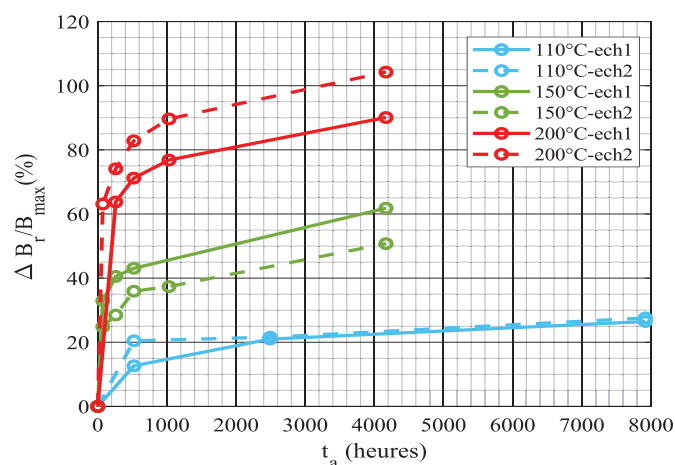


Figure 4-8 Évolution de la rectangularité (mesurée à 6A/m, f=1 Hz), des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement thermique sous excitation.

Pour le champ coercitif, nous notons une augmentation avec des vitesses de variation différentes selon la température de vieillissement. À 200°C, la vitesse de variation reste forte même après 4000 heures de vieillissement. À 150°C, l'évolution semble rentrer dans une phase asymptotique rapidement après le début du vieillissement. L'évolution de H_c à 110°C atteint une asymptote autour de 4% après 8000 heures de vieillissement juste au-dessous de l'incertitude ($\pm 5.6\%$).

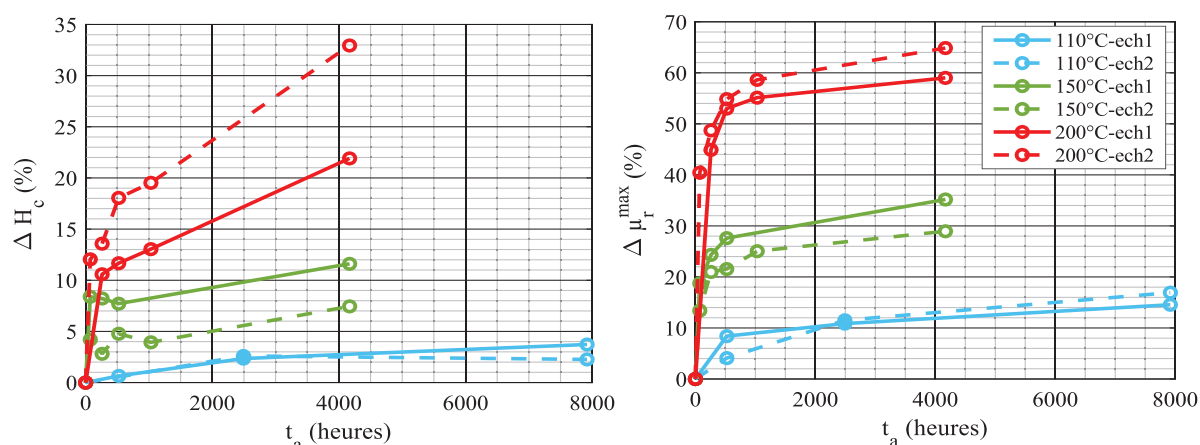


Figure 4-9 Évolutions du champ coercitif H_c et de la perméabilité maximale (mesurés à 6A/m, $f=1$ Hz) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement thermique sous excitation alternative.

4.3.2.2 Caractérisations en dynamique

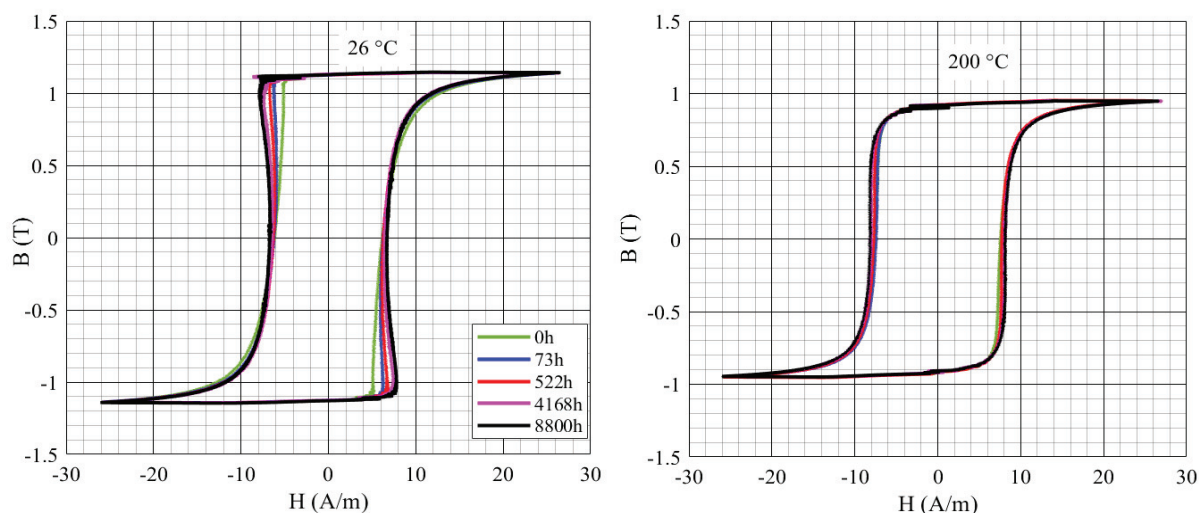


Figure 4-10 Évolution des cycles B-H dynamiques des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement à 200°C sous excitation alternative.

La Figure 4-10 montre l'évolution des cycles d'hystérésis en dynamique, mesurés à 26°C et à 200°C, lors du vieillissement à 200°C. En fonction du temps de vieillissement, la forme des cycles

d'hystérésis en dynamique se rapproche de celle des cycles des nanocristallins type-Z présentés dans la section précédente. À la température de mesure de 200°C, nous constatons des faibles variations en fonction du temps de vieillissement par rapport à celles observées à 26°C. Nous supposons que les variations dues aux vieillissements sont très faibles par rapport aux variations réversibles dues à la haute température de mesure. Cependant, pour la suite de cette section uniquement les mesures faites à 26°C sont développées.

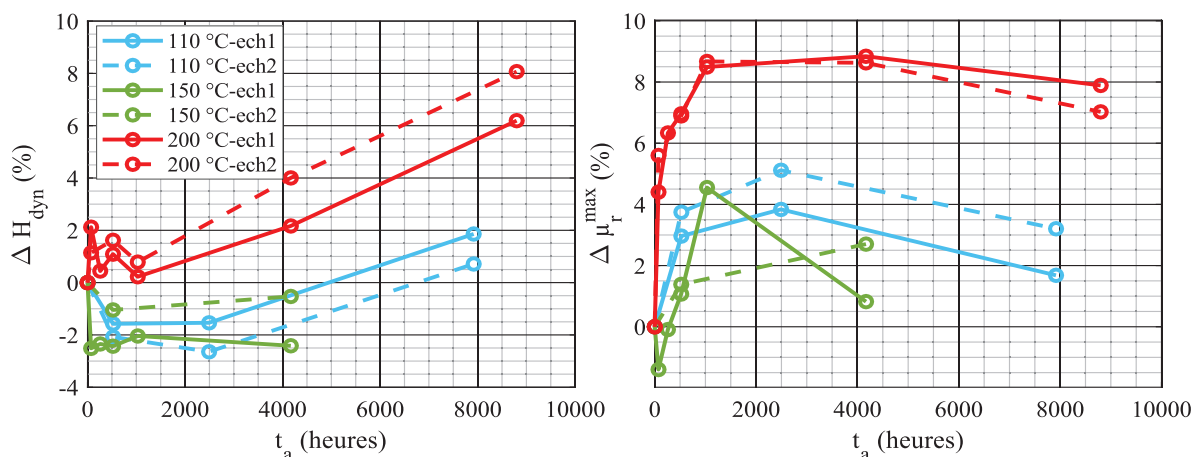


Figure 4-11 Évolutions du champ coercitif H_{dyn} (mesurés à 25A/m, $f=22$ kHz, $T=26^\circ\text{C}$) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement thermique sous excitation alternative.

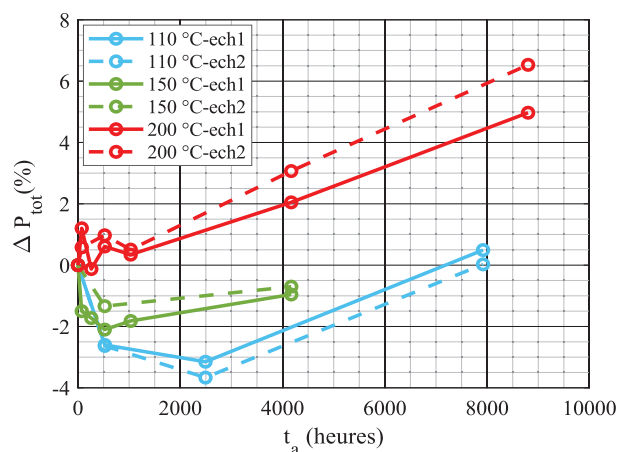


Figure 4-12 Évolution des pertes totales (mesurés à 25A/m, $f=22$ kHz, $T=26^\circ\text{C}$) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement thermique sous excitation alternative.

Quelle que soit la température de vieillissement, le champ coercitif (Figure 4-11) et les pertes totales (Figure 4-12) présentent une faible diminution au début de vieillissement, puis ces deux PM augmentent notamment lors du vieillissement à 200°C où les pertes totales augmentent de 5-6% et le champ coercitif d'environ 7% après 9000 heures de vieillissement.

Quant à la perméabilité maximale, elle a un comportement inverse du champ coercitif, autrement dit, elle augmente au début jusqu'à 9% après 1000 heures de vieillissement à 200°C, ensuite, elle semblerait diminuer. Le prochain point de vieillissement (après 9000 heures à 200°C et 8000 heures à 110°C) confirmerait cette diminution ou bien montrerait plus tôt une stabilisation. Pour les deux nuances type-Z et type-R, nous remarquons que les variations des PM en quasi statique lors du vieillissement sous une excitation alternative sont plus importantes que celles mesurées en dynamique. Nous pouvons supposer que les variations observées en quasi statique sont noyées dans celles observées en dynamique. Le paramètre le plus sensible où les variations sont plus notables est la rectangularité des cycles BH, cette dernière a été améliorée dans les deux nuances lors du vieillissement sous l'effet d'excitation alternée.

4.4 Rôle des énergies d'anisotropie dans le vieillissement

Afin de mettre en évidence l'impact de l'excitation alternée lors du vieillissement des nanocristallins, nous avons rajouté deux échantillons (type-Z et type-R) du même lot (N°3) pour un Vieillissement Avec Démagnétisation (VAD_lot3). Le même protocole de vieillissement avec désaimantation présenté dans le chapitre 3 est utilisé (section 3.2.1). Toutes les explications sont faites par rapport aux caractérisations statiques.

4.4.1 Nanocristallins type-Z : Amélioration de l'anisotropie uniforme

Dans la Figure 4-13 nous comparons l'évolution des PM de l'échantillon Vieilli Sous excitation alternative (VSEA) et de l'échantillon VAD. Au niveau du champ coercitif, nous constatons une forte cinétique d'augmentation qui atteint 39% après 4000 heures de vieillissement à 200°C pour l'échantillon VAD. Dans le cas de l'échantillon VSEA, nous constatons une forte cinétique d'augmentation de H_c au départ du vieillissement puis une tendance de stabilisation pour atteindre 24% d'augmentation après plus de 9000 heures de vieillissement à 200°C. Le comportement de μ_r^{\max} , quant à lui, est complètement à l'opposé entre les deux échantillons. Dans le cas du VSEA, nous constatons une augmentation avec une stabilisation rapide de μ_r^{\max} juste après 600 heures de vieillissement à 200°C. Sa valeur asymptotique est autour de 18% d'augmentation. Dans le cas du VAD, la perméabilité μ_r^{\max} chute avec une forte cinétique qui diminue légèrement avec le temps du vieillissement. Elle atteint la valeur de 34% de diminution après 450 heures de vieillissement à 200°C.

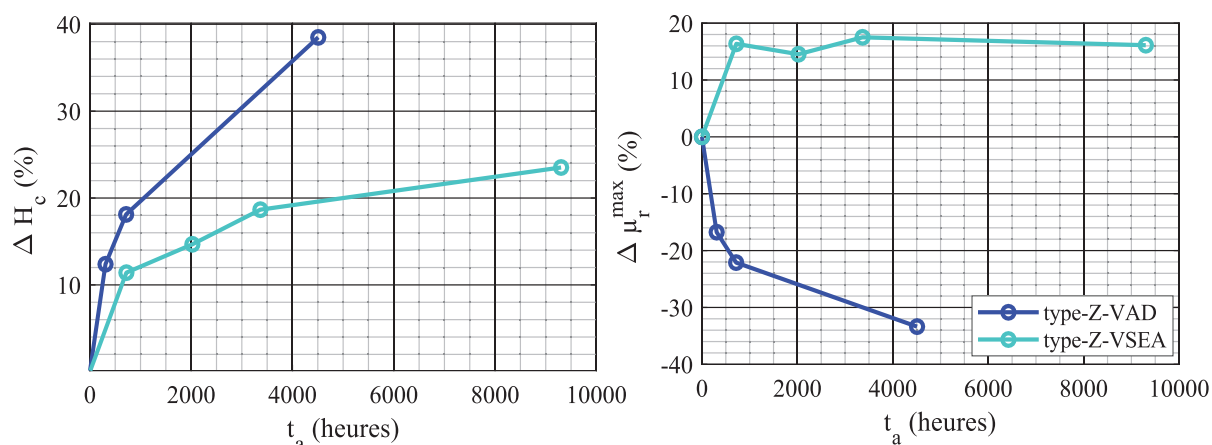


Figure 4-13 Évolutions du champ coercitif et de la perméabilité maximale (mesurés à 2A/m, f=0.3 Hz) des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C sous deux états magnétiques différents.

Un nanocristallin type-Z optimal peut atteindre une rectangularité qui peut être > 0.9 et une perméabilité maximale autour de 1 000 000. C'est le cas des échantillons du lot N°1 étudiés dans le chapitre 3. Les propriétés magnétiques de la nuance type-Z du lot N°3 avant vieillissement, n'ont pas encore atteint leurs valeurs optimales (voir Tableau 4-1), nous pouvons considérer que l'énergie d'anisotropie introduite lors du recuit des échantillons du lot N°3 n'est pas totalement uniforme.

La Figure 4-14 présente l'évolution de la rectangularité (en absolue) en fonction du temps de vieillissement et pour différentes conditions de d'aimantation. Le vieillissement à saturation VAS agit très peu sur la rectangularité (évolution constante) du cycle malgré le fait d'une température de vieillissement de 240°C et une saturation avec excitation continue de 50 A/m. Ce comportement est lié au fait que les échantillons du lot N°1 ont subi un recuit avec une énergie d'anisotropie « complètement » uniforme ainsi il subsiste une marge très faible pour une variation durant le vieillissement (VAS, VAD, VSEA). Les échantillons du lot N°3 qui ont subi un VSEA, présentent une amélioration de la rectangularité sans même utiliser un VAS car il y avait une marge d'amélioration de cette dernière. L'échantillon qui a subi un VAD_lot3 réagit différemment par rapport au vieillissement VAD des échantillons du lot N°1 présentés dans le chapitre 3. En effet, la rectangularité diminue dans la Figure 4-14 alors qu'elle reste constante dans le cas du lot N°1 (Figure 3-5). Les comportements VAD_lot3 et VSEA des échantillons issus du lot N°3 confortent l'hypothèse d'une anisotropie « moyennement » uniforme introduite durant leur recuit.

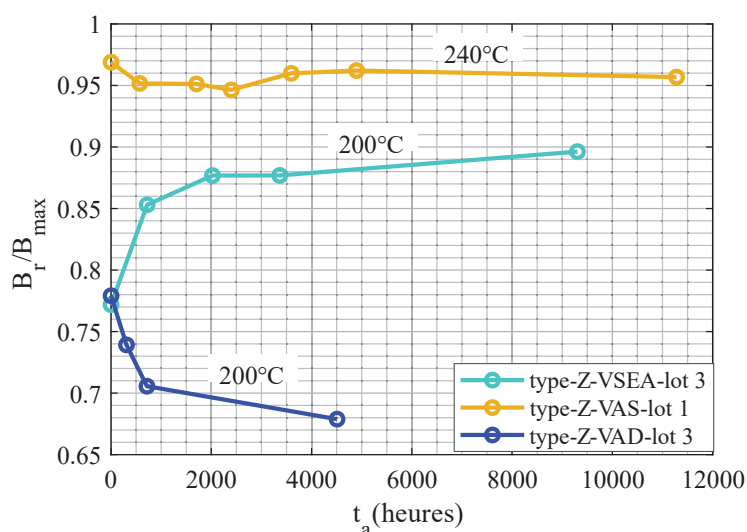


Figure 4-14 Évolution de la rectangularité du cycle (mesurée à $2A/m$, $f=0.3$ Hz) des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à $240^{\circ}C$ sous trois états magnétiques différents.

En conclusion, pour le lot N°3, l'application d'une excitation alternative (dans la direction longitudinale) lors du vieillissement, permet de continuer à orienter l'aimantation locale des domaines selon la même direction du champ d'excitation. Cela a pour effet d'améliorer l'uniformité de l'énergie uniforme $K_u^{//}$ selon l'axe longitudinal au niveau macroscopique comme illustré dans la Figure 4-15.

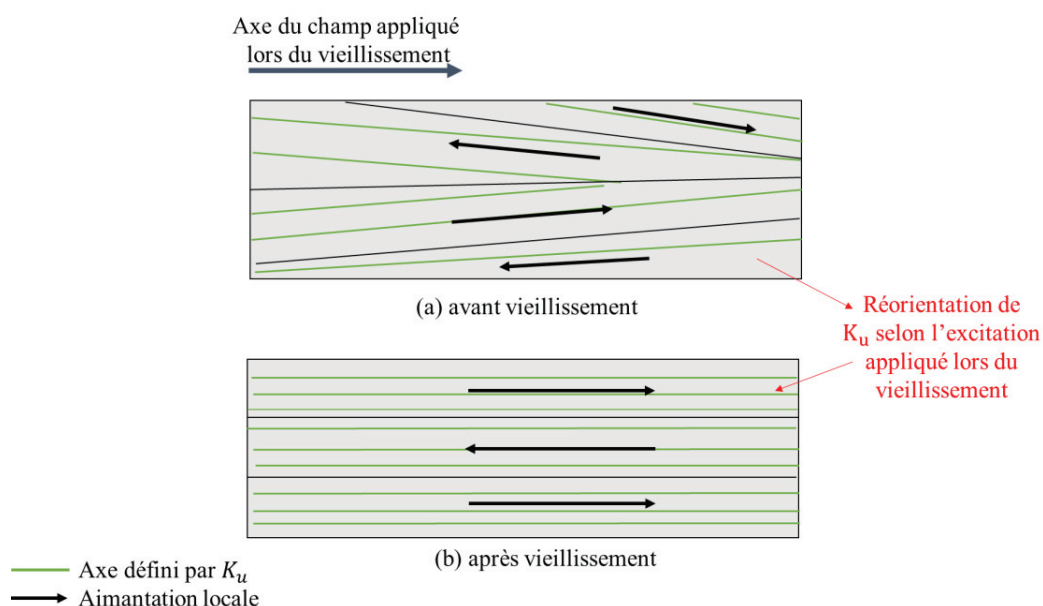


Figure 4-15 Illustration de la structure en domaines magnétiques (à l'état désaimanté) des matériaux nanocristallins type-Z (lot N°3) avant et après VSEA.

La Figure 4-16 montre que l'énergie totale calculée par l'équation (3.4) augmente lors du VAD_lot3, ceci a été lié à la perturbation de l'uniformité de $K_u^{//}$ en réorientant une partie de cette énergie selon l'aimantation locale dans les parois (K_{loc}^{\sim}) (voir section 3.4.2.1).

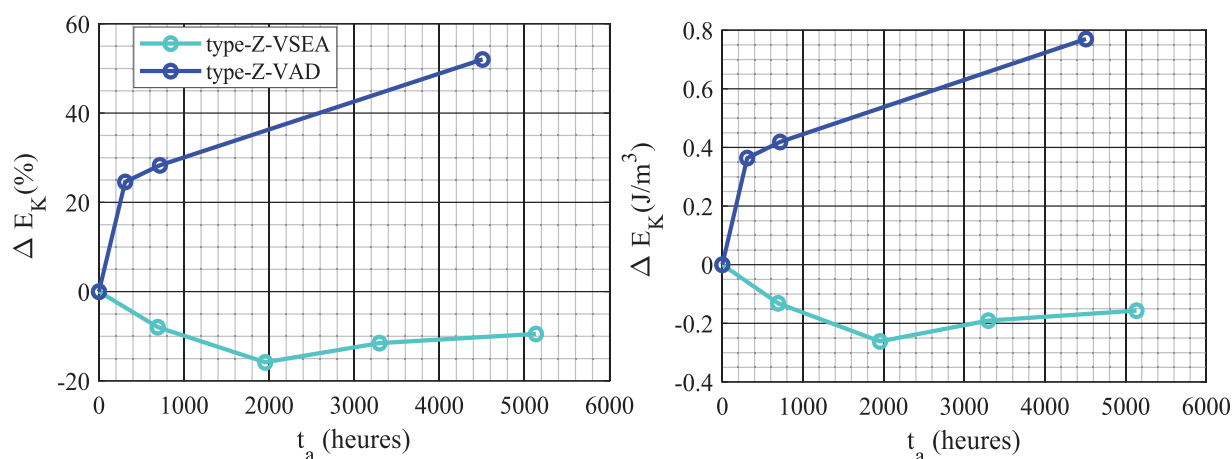


Figure 4-16 Évolution de l'énergie d'anisotropie totale des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C sous deux états magnétiques différents.

Contrairement au VAD_lot3, nous constatons dans la même figure que l'énergie totale diminue lors du VSEA, ceci est dû à la réorientation de la structure magnétique lors du vieillissement selon l'axe longitudinal qui permet de réduire l'angle entre l'aimantation locale et le champ extérieur appliquée pendant une caractérisation (réduction énergies semi uniformes locales). Par ailleurs, l'énergie dépensée pour aimanter le matériau dans la direction longitudinale, à partir d'un état démagnétisé jusqu'à la saturation, sera plus faible après un VSEA.

4.4.2 Nanocristallins type-R : Création de l'anisotropie uniforme

L'énergie d'anisotropie dominante dans les nanocristallins type-R (avant vieillissement) est l'énergie magnétocristalline aléatoire, de ce fait la structure en domaines magnétiques est aléatoire. Lors du VAD, la constante d'anisotropie locale aléatoire s'oriente selon les axes aléatoires des petits domaines et aussi dans les parois, elle est la source principale de l'augmentation de l'énergie d'anisotropie totale E_K (Figure 4-18). Cette nouvelle structure magnétique provoque une détérioration des PM notamment l'augmentation du champ coercitif et la diminution de la perméabilité maximale (Figure 4-17). Les explications du phénomène du VAD des nanocristallins type-R sont données dans 3.4.2.3.

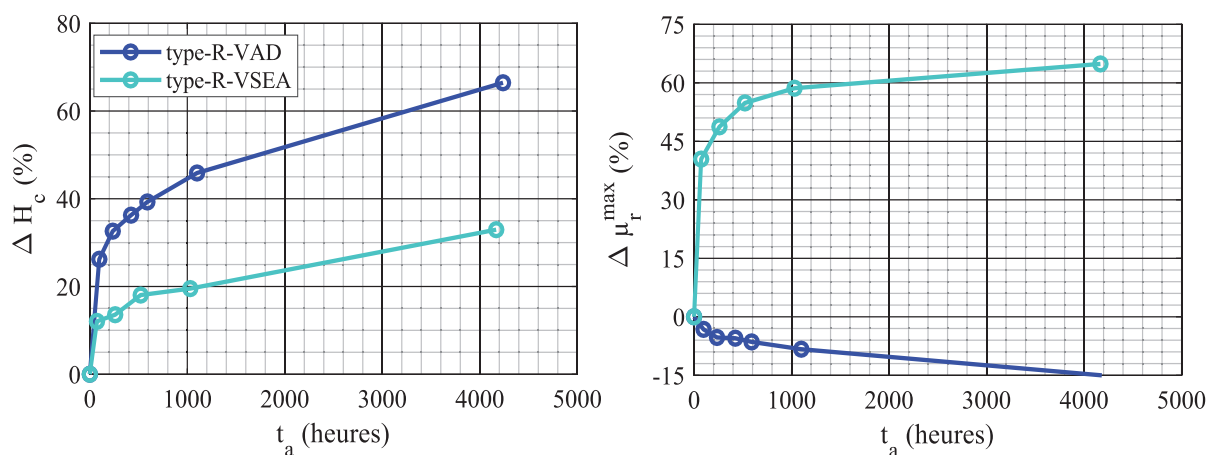


Figure 4-17 Évolution du champ coercitif et la perméabilité maximale (mesurés à 6A/m, $f=1$ Hz) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement sous 200°C sous deux états magnétiques différents.

Les explications données sur les nanocristallins type-Z lors du VSEA sont valables pour la nuance de type-R. Cependant, il y a une différence importante entre les deux car dans le cas du type-R il n'y avait pas la présence d'une énergie uniforme avant vieillissement. Le champ appliqué lors du VSEA a permis d'orienter toutes les anisotropies locales selon la même direction pour créer un axe d'orientation macroscopique. La moyenne de toutes ces anisotropies uniformes locales est une anisotropie macroscopique longitudinale notée K_{loc}^{\parallel} .

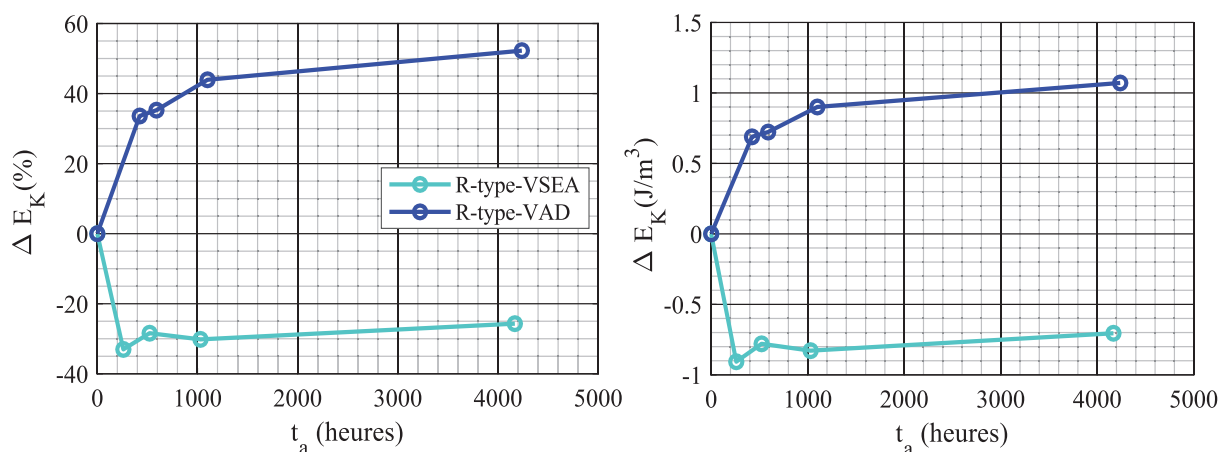


Figure 4-18 Évolution de l'énergie d'anisotropie totale des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement à 200°C sous deux états magnétiques différents.

La diminution de l'énergie d'anisotropie totale observée sur la Figure 4-18, est due à la réduction des anisotropies locales aléatoires K_{loc} . Nous remarquons que dans les deux cas VSEA et VAD, la vitesse de l'évolution de E_K est forte au début mais tend rapidement vers zéro ce qui est synonyme d'une stabilisation après quasiment 500 heures de vieillissement à 200°C.

Dans la Figure 4-19, la nuance type-R présente une rapide et forte augmentation de la rectangularité qui diminue en fonction du temps de vieillissement à 200°C pour atteindre 80% après 2000 heures puis 90% après 4000 heures. La nuance de type-Z montre le même comportement mais avec une stabilisation rapide de la rectangularité après 2000 heures de vieillissement à 200°C pour atteindre 18% d'augmentation. Les nanocristallins de type-Z sont plus stables par rapport aux nanocristallins de type-R grâce à leur état initial où l'énergie d'anisotropie uniforme est déjà existante contrairement aux nanocristallins de type-Z où cette énergie uniforme a été créée lors du vieillissement dans la direction longitudinale.

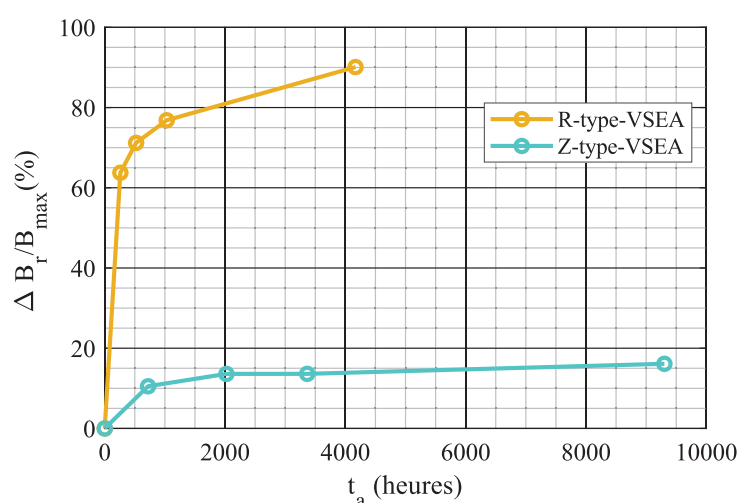


Figure 4-19 Évolutions de la rectangularité du cycle des deux nuances de nanocristallins lors du vieillissement à 200°C sous excitation alternative.

Nous concluons que l'application d'un champ magnétique variable selon l'axe longitudinal lors du vieillissement permet, dans le cas du type-R, de réduire les anisotropies aléatoires en créant une énergie d'anisotropie uniforme au niveau macroscopique et, dans le cas du type-Z, de conforter le $K_u^{//}$ déjà existant. Cela permet d'améliorer la rectangularité du cycle et la perméabilité des nanocristallins quelle que soit leur nuance. En définitive, nous pouvons conclure que tous les matériaux nanocristallins finiront lors de leur vieillissement par se transformer en nanocristallin de type-Z et ce quel que soit le type de vieillissement avec excitation utilisée (alternative ou continue). L'augmentation du champ coercitif des deux nuances pendant le vieillissement sous excitation pourrait être à l'origine de l'augmentation de la constante d'anisotropie magnétocristalline aléatoire $\langle K_1 \rangle$ (voir section 3.4.2.1c).

4.5 Evolution des propriétés électriques du capteur (A) lors du vieillissement des matériaux nanocristallins

Rappel :

L'offset du capteur : Est la différence entre la valeur « vraie » de la mesure et celle obtenue à partir de la réponse du capteur (Figure 4-20). Les erreurs absolues s'évaluent soit dans l'unité du mesurande, soit dans l'unité de mesure.

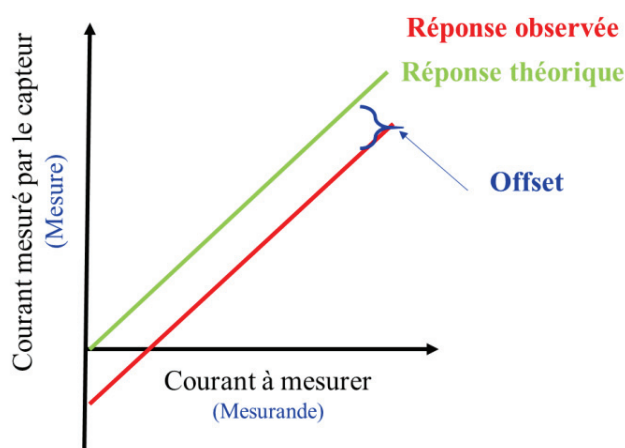


Figure 4-20 Représentation d'un offset négatif sur une courbe caractéristique du capteur.

L'erreur de gain : Est l'erreur de pente de la courbe caractéristique du capteur (Figure 4-21), elle est visible essentiellement pour la borne supérieure de l'étendue de mesure.

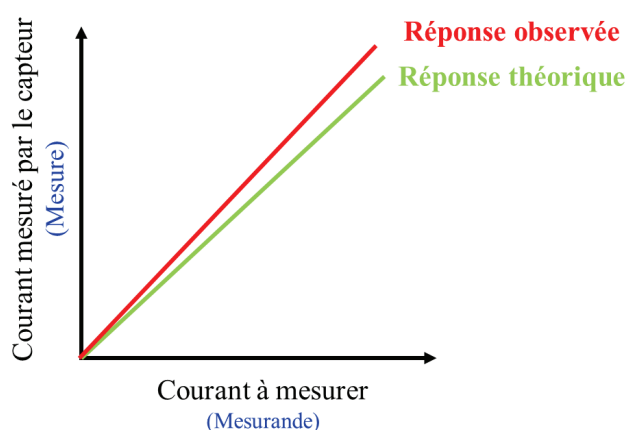


Figure 4-21 Représentation de l'erreur de gain sur une courbe caractéristique du capteur.

Pour certaines applications, il est impératif pour les capteurs de courant d'avoir une erreur d'offset très faible. C'est le cas des dispositifs de surveillance des batteries où un décalage dans le courant mesuré entraînerait une surestimation ou une sous-estimation de l'état de charge de la batterie. Un

autre exemple est le capteur de courant de fuite ou le capteur de courant résiduel, le capteur surveille des courants qui sont la plupart du temps très proches de zéro et doit détecter tout changement de la valeur du courant au-delà d'une certaine limite (valeur seuil).

Par ailleurs, dans cette partie nous nous intéressons à l'influence du vieillissement magnétique sur les propriétés électriques du capteur fluxgate (A). Pour des raisons de confidentialité, uniquement la fréquence, l'offset, et l'erreur de gain sont présentés.

4.5.1 Évolution de la fréquence d'excitation

La Figure 4-22 présente l'évolution de la fréquence d'auto-oscillation en fonction du vieillissement VSEA pour les trois températures (110, 150 et 200°C) et pour les deux nuances de teste type-R et type-Z. D'une manière générale, la fréquence a tendance à diminuer (-1000 Hz pour le pire cas) en fonction du temps de vieillissement (Figure 4-22, type-Z à 110°C).

Pour les nanocristallins type-Z, l'évolution de la fréquence est indépendante de la température de vieillissement. Ce constat est également relevé pour les propriétés magnétiques. Les nanocristallins type-R présentent une évolution de la fréquence avec plus de dépendance avec la température de vieillissement. Ceci est très visible, notamment, pour la température de 200°C où la fréquence atteint une diminution de -600Hz après 8800 heures.

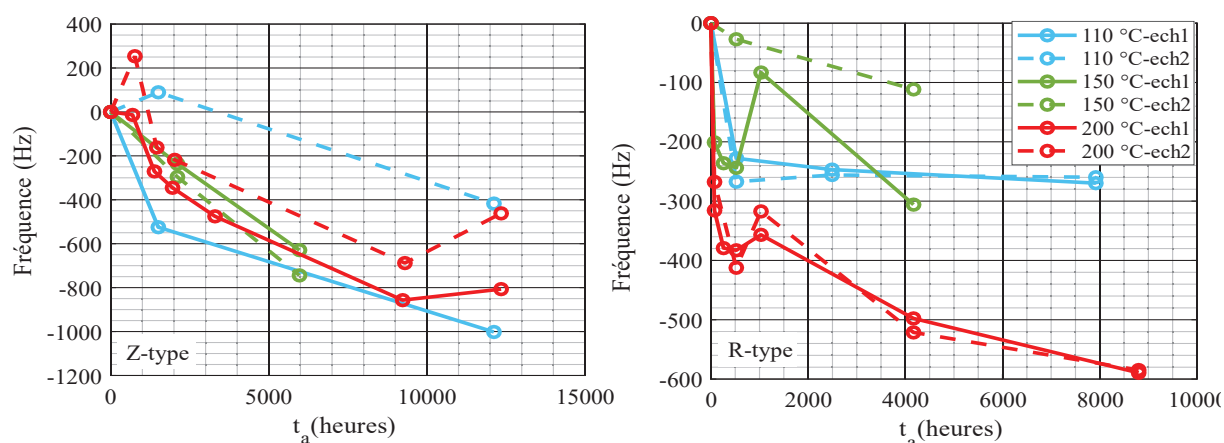


Figure 4-22 Évolution de la fréquence d'excitation des capteurs (A) lors du vieillissement des matériaux nanocristallins sous excitation.

L'évolution de la fréquence pour le vieillissement à 110°C présente une stabilisation rapide de -200 Hz de diminution après seulement 200 heures de vieillissement. Son évolution à 150°C nécessite d'autres points de vieillissement pour pouvoir donner une variation probante.

Afin d'expliquer l'origine de cette évolution de la fréquence d'excitation, nous présentons un schéma simplifié (Figure 4-23) d'une partie du circuit électronique. R_{sh} représente la résistance shunt où la mesure du courant, donc du champ H est faite. Le composant (r, L) , résistance + inductance, représente l'enroulement secondaire autour du tore magnétique. L'induction magnétique est calculée sur ce composant. Le primaire est le fil électrique (ou le bus-bar) dans lequel passe le courant à mesurer.

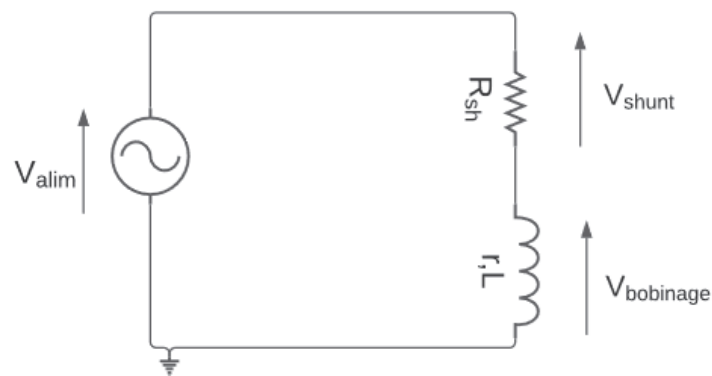


Figure 4-23 Schéma électrique simplifié pour la mesure du courant dans l'enroulement primaire.

Dans ce cas, la tension aux bornes du bobinage d'excitation (secondaire) $V_{bobinage}$ est donnée par :

$$V_{bobinage} = V_{alim} - V_{shunt} \quad (4.1)$$

Où V_{alim} est la tension d'alimentation et V_{shunt} est la tension aux bornes de la résistance shunt.

Dans les nanocristallins de type-R, les résultats des caractérisations magnétiques ont montré une augmentation du champ coercitif lors du vieillissement (Figure 4-11), cela implique une augmentation de la tension mesurée V_{shunt} (Figure 4-24).

D'après l'équation (4.1), la tension $V_{bobinage}$ aurait diminué, ces résultats sont confirmés dans la Figure 4-25. D'autre part, nous pouvons rapprocher cette tension avec la formule de Boucherot (valable en signal d'excitation sinusoïdal) :

$$V_{bobinage} = 4.44 N. S. B_{max}. f \quad (4.2)$$

Où N est le nombre de spires ; S est la section active en m^2 ; B_{max} est l'induction maximale en Tesla et f est la fréquence en Hz.

Cette équation met en relation la fréquence f et la tension $V_{bobinage}$ et nous permettra de vérifier leur comportement conjointement.

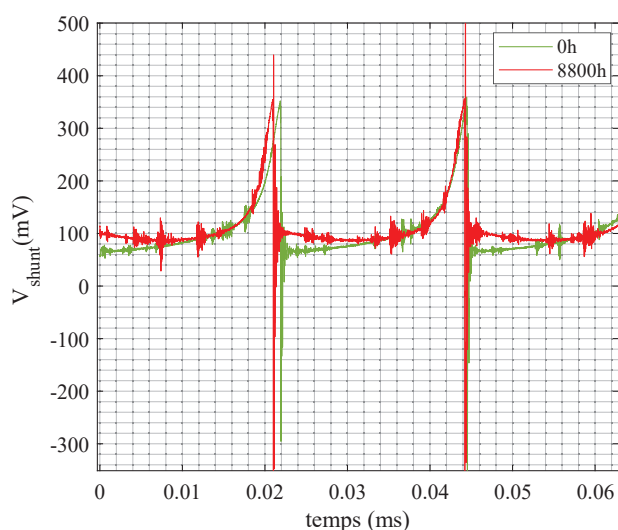


Figure 4-24 Évolution de la tension V_{shunt} lors du vieillissement à 200°C des nanocristallins type-R.

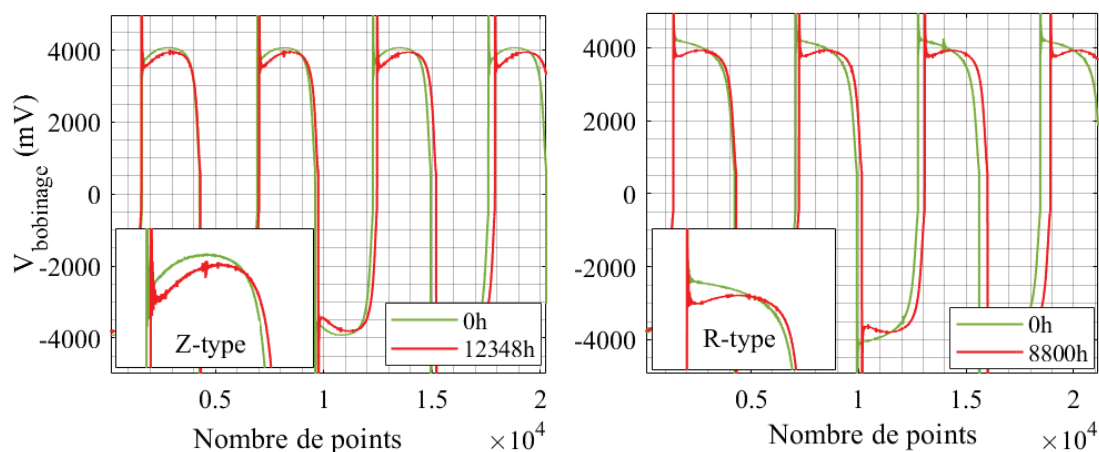


Figure 4-25 Évolution de la tension $V_{bobinage}$ lors du vieillissement à 200°C des nanocristallins.

Durant le vieillissement, l'induction maximale n'a pas varié. Ceci est valable quel que soit la température de vieillissement. Également, la section et le nombre de spires n'ont pas été modifiés durant les vieillissements. Selon l'équation (4.1), la fréquence f diminue vu que la tension $V_{bobinage}$ a diminué comme expliqué et démontré précédemment. Au final l'augmentation du champ coercitif provoque la diminution de la fréquence d'auto-oscillation. Cependant, le pourcentage d'augmentation de H_c ne concorde pas tout à fait avec le pourcentage de diminution de la fréquence. Si on prend comme exemple le point de mesure à 9000 heures de vieillissement à 200°C, H_c augmente de $\sim 7\%$ et f diminue de $\sim 3\%$. La différence est liée à une chute de tension dont l'origine est inconnue.

Pour les nanocristallins type-Z, la diminution de la fréquence encore une fois est provoquée par la diminution de V_{bobinage} (Figure 4-25) sauf que cette dernière n'est pas liée à l'augmentation de V_{shunt} comme pour les nanocristallins type-R (Figure 4-26). En effet, le champ coercitif des nanocristallins type-Z n'a pas augmenté après le vieillissement (Figure 4-5). L'origine de cette chute de tension au niveau du bobinage reste inconnue jusqu'à présent.

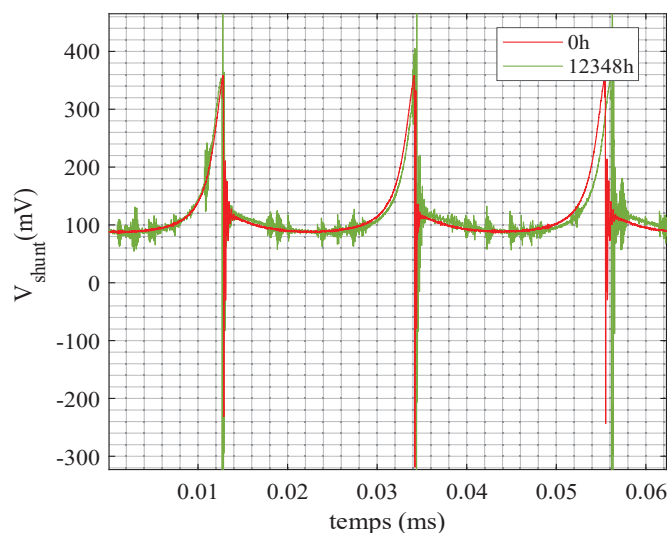


Figure 4-26 Évolution de la tension V_{shunt} lors du vieillissement à 200°C des nanocristallins type-Z.

4.5.2 Évolution de la précision du capteur (A) en fonction du vieillissement

L'offset électrique et l'erreur de gain du capteur sont étudiés uniquement pour le dernier point de vieillissement. Les propriétés électriques avant vieillissement ont été relevées sur d'autres échantillons non-vieillis du même lot N° 3.

4.5.2.1 Protocole d'essai

- Afin de tracer la courbe de l'erreur absolue en fonction du courant à mesurer I_p , nous avons étudié 12 échantillons : 2*R+2*Z non vieillis ; 2*R vieillis à 200°C pendant 8800 heures ; 2*Z vieillis à 200°C pendant 12348 heures ; 2*R vieillis à 110°C à 7919 heures ; 2*Z vieillis à 110°C à 12119 heures.
- 3 températures de mesure [-40°C, 20°C, 110°C] : -40, 110 imposés par la datasheet.
- 150 mesures pour chaque valeur de courant $I_p = [0 \ 3 \ -3 \ 30 \ -30 \ 100 \ -100 \ 300 \ -300]$ (mA) (Figure 4-27).
- Les valeurs moyennes de 150 mesures sont tracées sur la caractéristique d'erreur absolue.
- L'erreur du gain et de l'offset sont mesurés à -40, 20 et 110°C pour chaque échantillon.

- L'offset électrique est l'erreur à un courant primaire nul.
- L'erreur du gain est calculée entre 0 mA and 30 mA, car une précision élevée est cherchée dans la plage [-30,30] (mA).

La société LEM calibre les capteurs fluxgate à la température ambiante (compensation d'offset et correction de gain unitairement par capteur), donc pour nos traitements de données, il est impératif de prendre en compte les coefficients de calibration avant vieillissement à 20°C.

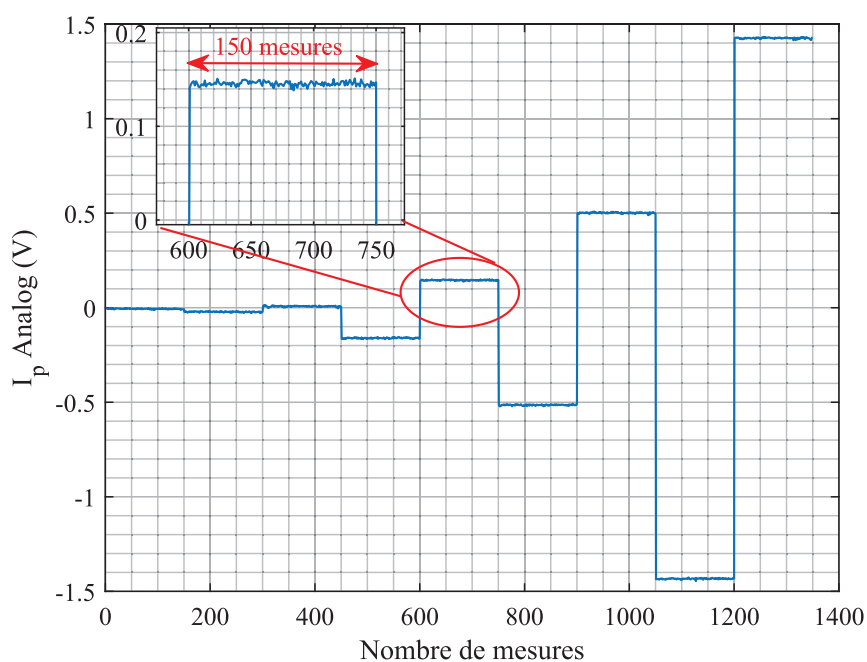


Figure 4-27 Courant mesuré I_p en volts (le gain n'est pas pris en compte) en fonction du nombre de mesures (150 mesures pour chaque valeur de courant).

Afin de simplifier la présentation des résultats, nous avons choisi de ne présenter qu'un seul échantillon de chaque nuance. En revanche, pour la calibration avant vieillissement, la moyenne est prise en compte sur les deux échantillons de chaque nuance.

4.5.2.2 Résultats : Capteur (A) avec des noyaux nanocristallins type-Z

La Figure 4-28 présente l'évolution de l'erreur absolue de la mesure du courant lors du vieillissement en fonction du courant I_p . Nous nous focalisons sur la zone [-5,5] (mA) où l'erreur de l'offset (en valeur absolue) doit être égale ou inférieure à 1 mA selon le gabarit d'erreur dans la même figure.

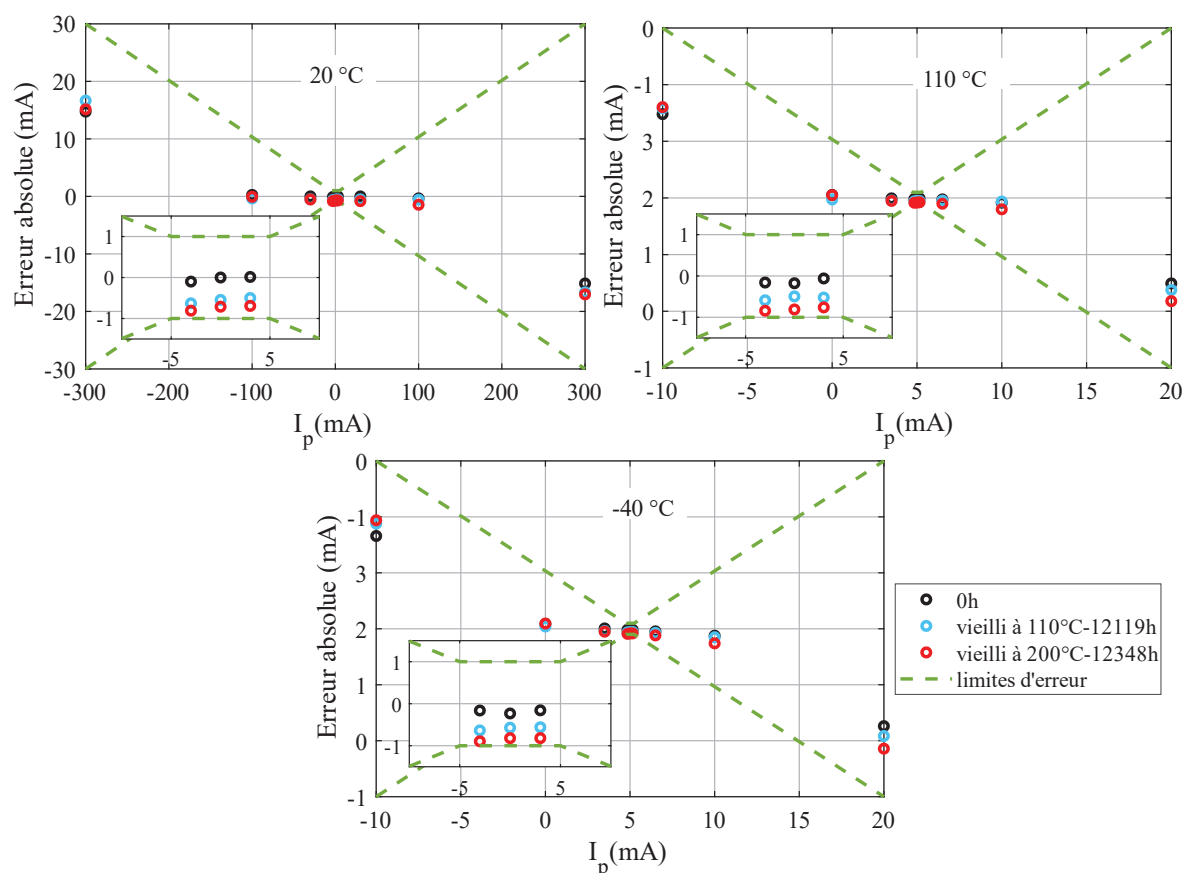


Figure 4-28 Évolution de l'offset électrique du capteur (A) en fonction du vieillissement des nanocristallins type-Z à 110°C et 200°C.

Par rapport à la température de mesure : Sachant que la calibration du capteur est faite à 20°C, nous remarquons que la température de mesure n'a pas une influence sur l'offset électrique. Nous remarquons aussi que la variation de l'offset en fonction du vieillissement est présente quelle que soit la température de mesure. Ce constat est valable pour toutes les températures de vieillissement (110°C et 200°C). Ce comportement a été constaté, également, sur l'évolution des PM des nanocristallins type-Z, dans le chapitre 3 (section 3.5.3).

Par rapport au vieillissement : Nous constatons que plus le vieillissement est accéléré (200°C), plus l'erreur de l'offset électrique augmente. Dans la zone $[-5,5]$ (mA) (zone sensible), le vieillissement rapproche dangereusement les erreurs de la limite $[-1,1]$ (mA). Au-delà de cette zone, les erreurs liées au vieillissement restent loin des limites.

Afin de mettre en évidence l'évolution de l'erreur du gain seule, nous avons tracé la courbe caractéristique du capteur (Figure 4-29) avec une compensation de l'offset. Nous constatons que

l'erreur du gain reste quasiment constante lors du vieillissement (avant : -196.838, après vieillissement à 200°C : -198.745) soit 0.9 % de variation à 200°C pendant 12348 heures.

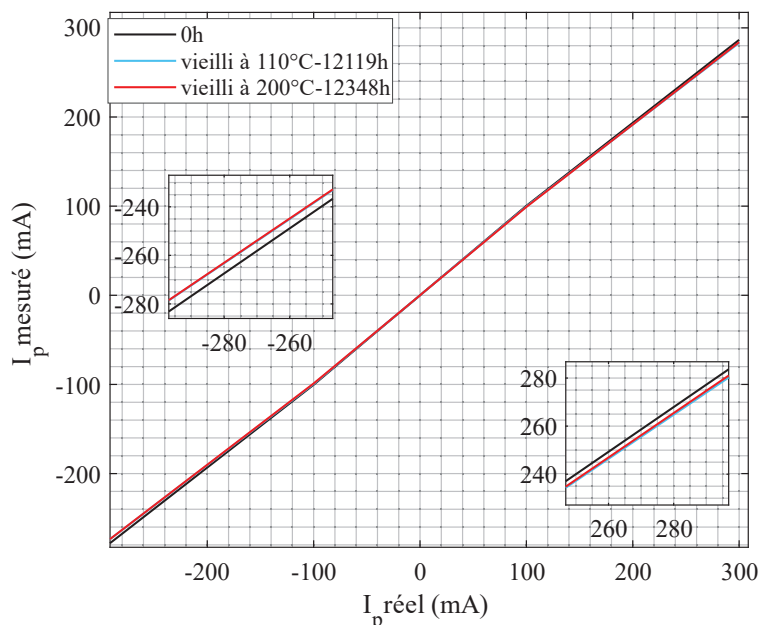


Figure 4-29 Évolution de l'erreur du gain (Mesuré à 20°C) lors du vieillissement des nanocristallins type-Z.

4.5.2.3 Résultats : Capteur (A) avec des noyaux nanocristallins type-R

Par rapport à la température de mesure : Nous remarquons dans la Figure 4-30 que, l'erreur de l'offset est sensible à la température de mesure. Avant vieillissement (à $t=0$ heure), l'erreur s'éloigne du zéro quand la température est différente de la température de calibration (20°C), contrairement aux nanocristallins type-Z où l'offset est quasiment indépendant de la température de mesure.

Ces résultats sont cohérents avec les résultats des caractérisations magnétiques présentées dans la section 3.5.2 où nous avons constaté que les nanocristallins type-R sont peu stables en fonction de la température. Une exception néanmoins existe, en effet, le nanocristallin type-R vieilli à 200°C montre une stabilité en température de mesure. Cela est expliqué par le fait qu'après 8800 heures de vieillissement, les PM de cet échantillon sont devenues très proches de celles d'un nanocristallin type-Z. Par ailleurs, cet échantillon se comporte comme un nanocristallin type-Z en fonction de la température. Le nanocristallin type-R vieilli à 110°C, garde encore ses caractéristiques (énergie magnétocristalline aléatoire dominante), donc il est moins stable en température par rapport à l'échantillon vieilli à 200°C.

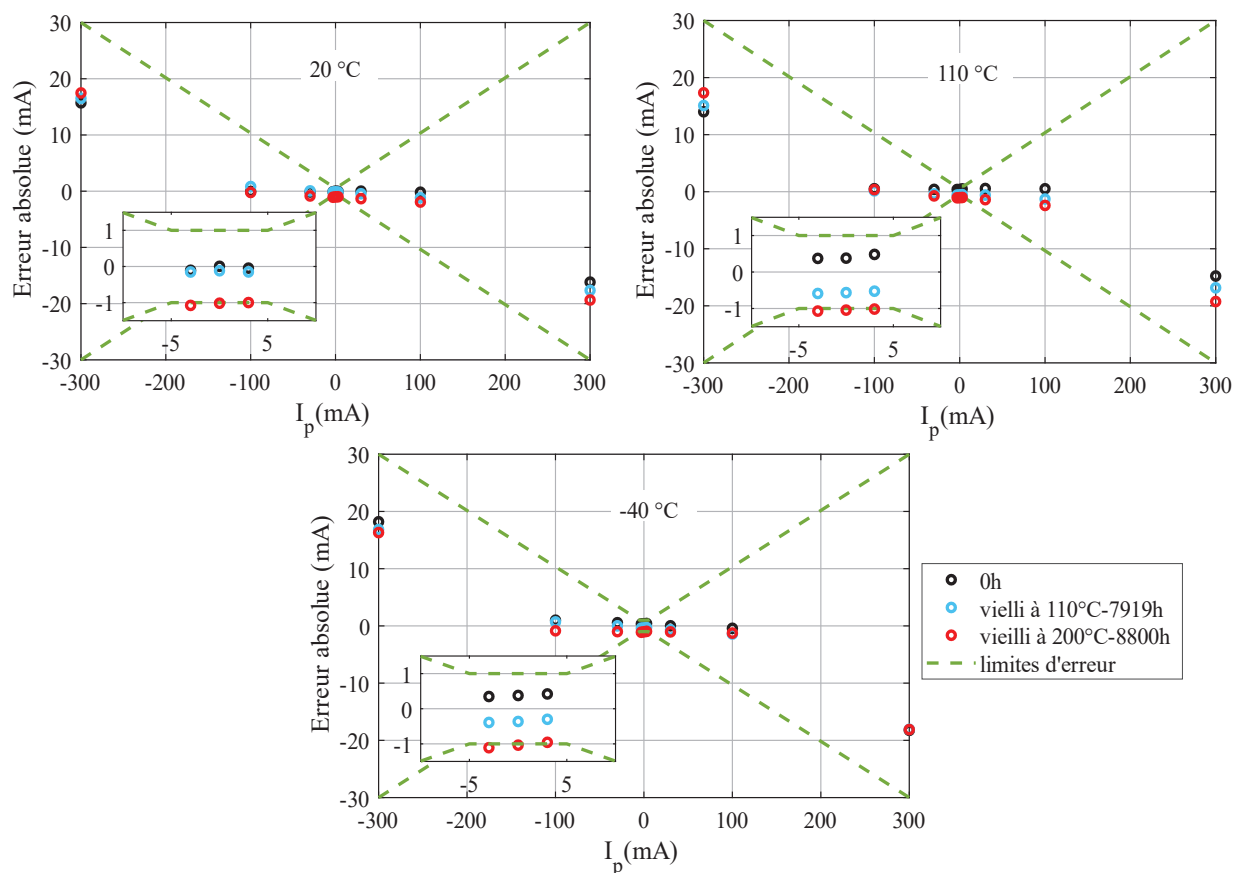


Figure 4-30 Évolution de l'offset électrique du capteur (A) en fonction du vieillissement des nanocristallins type-R à 110°C et à 200°C.

Par rapport au vieillissement : La nuance type-R a montré un comportement similaire aux nanocristallins type-Z lors du vieillissement, c'est-à-dire, plus le vieillissement est accéléré (température de vieillissement élevée) plus l'offset électrique augmente, ceci est remarqué quelle que soit la température de mesure. Néanmoins, l'offset du capteur avec l'échantillon type-R vieilli pendant 8800 heures à 200°C, commence à dépasser les limites d'erreur de la zone sensible [-5,5] (mA), contrairement au capteur avec le noyau type-Z. Pour ce dernier, l'erreur de l'offset ne dépasse pas les limites alors que le temps de vieillissement est plus élevé (12348 heures).

Ces variations sont cohérentes avec les caractérisations magnétiques, notamment les PM statiques (Figure 4-19) où nous avons constaté que la nuance type-Z est plus stable lors du vieillissement par rapport à la nuance type-R.

Concernant l'erreur du gain, nous constatons qu'elle reste quasiment constante lors du vieillissement comme le cas des nanocristallins type-Z.

La comparaison entre les deux nuances nous permet de déduire qu'il y a une corrélation entre les PM magnétiques des nanocristallins et l'évolution de l'offset électrique du capteur fluxgate. Quand les PM sont stables en température, l'offset électrique sera également stable en température. De même pour le vieillissement, quand les PM varient fortement, l'offset augmente plus et risque de dépasser les limites d'erreur fixés par la datasheet du capteur (A).

4.6 Conclusions du chapitre

Les essais du vieillissement des nanocristallins avec une magnétisation variable, ont permis de confirmer que le vieillissement des nanocristallins dépend fortement de leurs états magnétiques lors du processus de finition. Un comportement différent a été constaté par rapport au vieillissement avec désaimantation. En effet, l'excitation dans la direction longitudinale permet de créer une anisotropie uniforme macroscopique dans la même direction. En conséquence, la perméabilité et la rectangularité des cycles d'hystérésis sont améliorées quelle que soit la nuance étudiée.

Nous avons étudié aussi l'impact du vieillissement des tores magnétiques sur les paramètres électriques des capteurs de courant fluxgate. Pour les deux nuances de nanocristallins, les paramètres électriques des capteurs (A), ont montré une sensibilité au vieillissement magnétique de leurs noyaux. Cette sensibilité se traduit par une faible diminution de la fréquence d'excitation et une variation au niveau de l'offset électrique, tandis que l'erreur du gain reste stable. Nous avons constaté que les nanocristallins type-Z ont montré plus d'avantages par rapport aux nanocristallins type-R, notamment concernant :

- L'évolution de leurs PM (statique et dynamique) lors du vieillissement.
- L'évolution de l'erreur de l'offset lors du vieillissement.
- La stabilité magnétique et électrique en température de mesure.

Conclusion générale et perspectives

Les travaux de cette thèse se sont concentrés sur l'étude du vieillissement des matériaux magnétiques nanocristallins à base de Fer-Silicium. Plusieurs essais du vieillissement sous deux contraintes thermique et électrique ont été effectués sur des matériaux de nuances différentes. La partie expérimentale de ce travail a été très coûteuse en termes de temps et d'efforts principalement dus à :

- La préparation des échantillons (bobinage, caractérisation initiale) ;
- L'installation du banc de caractérisation statique avec son programme d'acquisition et de post traitement des données ;
- La définition d'un protocole de désaimantation notamment pour les matériaux nanocristallins de type-Z qui se sont avérés très difficiles à désaimanter ;
- L'étude de la répétabilité des mesures qui permet de quantifier les incertitudes de mesures ;
- L'étude du comportement magnétique à une température ambiante de mesure variable ;
- La mise en place du banc dédié à la mesure du bruit de Barkhausen ;
- Les essais du vieillissement à saturation avec une source d'excitation DC ;
- L'installation du banc d'essais avec les capteurs de courant fluxgate pour mener l'étude du vieillissement avec une excitation sous forme alternative.

Les travaux antérieurs effectués au laboratoire Ampère sur cette même thématique ont permis de conclure que les variations des propriétés magnétiques des matériaux nanocristallins ne sont pas dues à des changements de microstructure mais plutôt à des modifications de la structure en domaines magnétiques gérée par les énergies d'anisotropie. Cette thèse qui est dans la continuité de ces travaux a permis :

- D'enrichir la base de données expérimentales par l'étude d'une autre finition, le matériau nanocristallin type-Z recuit sous champ longitudinal ;
- D'améliorer l'analyse et la compréhension sur les anisotropies en rajoutant plus d'expérimentations (Barkhausen, effet Kerr), notamment le vieillissement sous excitation continu ;
- D'étudier le comportement magnétique des nanocristallins en fonction de la température de mesure ;

- De rajouter une contrainte d'origine électrique (excitation continue et excitation alternative) au vieillissement thermique ;
- D'étudier l'impact du vieillissement magnétique sur les propriétés électriques d'une application industrielle à savoir les capteurs de courant fluxgate.

Dans le chapitre 3, nous avons commencé par présenter l'évolution des propriétés magnétiques du matériau de finition type-Z lors du vieillissement thermique. Par la suite nous avons présenté l'analyse des énergies d'anisotropie qui a permis d'expliquer les mécanismes du vieillissement des trois finitions de matériaux nanocristallins considérées. Il s'avère que le mécanisme du vieillissement repose sur le même principe quelle que soit la finition du matériau c'est à dire la réorientation des axes des anisotropies.

L'instabilité des propriétés macroscopiques des finitions recuites sous champ (longitudinal type-Z et transversal type-F), est liée à la présence de zones où l'aimantation locale ne suit pas l'axe macroscopique défini selon l'anisotropie uniforme introduite lors du recuit. Pour le cas des type-Z, ces zones « perturbantes » en termes de stabilité dans le temps représentent les parois dans lesquelles une partie E_{Ku}'' (de l'anisotropie prédominante) est forcée à se réorienter selon les axes des aimantations locales (création d'une anisotropie $E_{K_{loc}}^{\sim}$).

Pour le nanocristallin type-F, en plus de $E_{K_{loc}}^{\sim}$ créée dans les parois, les domaines de fermeture longitudinaux vont se réorienter selon les axes des aimantations locales, donc de 90° en créant d'une anisotropie $E_{K_{loc}}''$.

Pour les nanocristallins type-R, le phénomène de vieillissement est plus complexe. En effet, les caractérisations macroscopiques ont montré plus d'instabilité lors du vieillissement par rapport aux autres finitions. Cette nuance a été recuite sans champ et sous très hautes températures, formant des petits domaines, créant un patchwork d'anisotropies locales. Lors du vieillissement (à hautes températures), matériau désaimanté, les domaines prennent une nouvelle organisation. La structure d'orientation initialement créée (lors du recuit) se trouve davantage modifiée selon l'aimantation de chaque nouveau domaine $E_{K_{loc}}'$ et dans chaque paroi $E_{K_{loc}}^{\sim}$, plus que lors du recuit. Ces résultats sont confortés par des mesures directes et indirectes :

- Le bruit de Barkhausen dans les nanocristallins type-R a montré que les interactions entre les parois et les impuretés ont augmenté suite à l'augmentation du nombre de parois ;

-
- L'observation des domaines magnétiques par l'effet Kerr a révélé que les domaines dans le nanocristallin type-R sont passés d'une structure de gros domaines à une structure de petits domaines chaotiques après vieillissement, avec une difficulté de déplacement de parois. Pour les nanocristallins recuits sous champ, nous n'observons pas une telle modification de la structure des domaines, néanmoins, une difficulté de déplacement de parois est constatée lors de l'aimantation ;
 - Le vieillissement sous une excitation continue (à saturation) a permis de confirmer qu'à une température plus basse que celle du recuit mais avec une durée plus importante, il est possible de réorienter les axes des anisotropies induites locales pour créer une anisotropie uniforme.

Dans le chapitre 4, nous avons étudié les matériaux nanocristallins lors du vieillissement sous une excitation de forme alternative assurée par les cartes électroniques de capteurs de courant fluxgate. Dans ces conditions, les matériaux nanocristallins ont montré une évolution de leurs cycles en une forme rectangulaire. Les mécanismes de vieillissement dans ces conditions sont similaires à ceux du vieillissement sous une excitation continue. En effet, pour le matériau nanocristallin type-Z, l'évolution est liée à l'amélioration de l'anisotropie « moyennement » uniforme introduite lors du recuit. Tandis que dans le type-R, cette évolution est liée à la réorientation de toutes les anisotropies aléatoires selon la même direction du champ pour aller vers une anisotropie uniforme au niveau macroscopique.

Dans ces conditions de fonctionnement, nous avons conclu que toutes les nuances des nanocristallins finiront par se transformer en nanocristallin de type-Z. Par ailleurs, pour une meilleure stabilité magnétique dans les capteurs de courant, il sera plus judicieux d'utiliser des nanocristallins recuits sous champ longitudinal de type-Z.

Par la suite, nous avons étudié l'impact du vieillissement magnétique des matériaux nanocristallins sur les propriétés électriques des capteurs fluxgate. Nous avons constaté une variation au niveau de la fréquence d'auto-oscillation et de l'offset électrique tandis que l'erreur du gain est restée stable. L'évolution de l'erreur de l'offset est plus stable lors du vieillissement du type-Z par rapport au matériau nanocristallin de type-R, de même en fonction de la température de mesure.

A partir des travaux réalisés dans cette thèse et dans leur continuité, les perspectives peuvent s'articuler autour de ces axes principaux :

-
- Autres essais microscopiques afin de définir les sources mineures de vieillissement notamment lors du vieillissement à saturation des nanocristallins type-Z.
 - Étude de séparation des pertes dynamiques en se basant sur les modèles de Bertotti.
 - Étude du vieillissement sous contrainte mécanique. Dans la réalité, les tores nanocristallins sont protégés par des boîtiers et fixés avec de la colle à l'intérieur. En température, la colle se contracte sur le matériau et appliquerait des contraintes mécaniques. Dans ces conditions pendant une longue période, une énergie d'anisotropie similaire à celle introduite lors du recuit sous contrainte mécanique apparaîtrait et modifierait les propriétés du matériau.
 - Etude des capteurs de courant fluxgate avec compensation. Les capteurs étudiés sont calibrés seulement à la sortie de l'usine. L'entreprise LEM est en train de développer une nouvelle version de capteurs (A) en intégrant un soft qui permet de compenser l'erreur de l'offset en temps réel, tout au long de la période de fonctionnement. Il serait intéressant d'étudier la fiabilité de cette compensation en prenant en compte le vieillissement magnétique des noyaux nanocristallins.
 - Étude de l'influence de la fréquence du signal d'excitation sur l'évolution du vieillissement.
 - Développement de modèles intelligents qui permettent de prédire le comportement magnétique des nanocristallins lors du vieillissement sous différentes conditions. Ce modèle pourrait inclure la température de mesure.

Bibliographie

- [1] A. B. Tuan, “Caractérisation et modélisation du comportement des matériaux magnétiques doux sous contrainte thermique,” 2013.
- [2] J. Degauque, “Magnétisme et matériaux magnétiques : introduction,” *Le J. Phys. IV*, vol. 02, no. C3, pp. C3-1-C3-13, 1992.
- [3] A. H. Abdelhak, *Matériaux électrotechniques*. 2020.
- [4] B. . Cullity and C. . Graham, *Introduction to magnetic materials*. 2009.
- [5] D. Le Roy, “Introduction aux matériaux magnétiques,” 2018.
- [6] R. Boll, Ed., *Soft Magnetic Materials: fundamentals, alloys, properties, products, applications; The Vacuumschmelze Handbook*. The Vacuumschmelze Handbook, 1978.
- [7] Y. Yao, “Etudes des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB pour applications en électronique de puissance,” Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2015.
- [8] G. Herzer, “Anisotropies in soft magnetic nanocrystalline alloys,” *J. Magn. Magn. Mater.* 294 99–106, vol. 294, pp. 99–106, 2005.
- [9] T. Waeckerlé, “Matériaux magnétiques doux cristallins | Techniques de l’Ingénieur,” *Tech. L’ingénieur*.
- [10] L. Néel, “Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d’orientation,” *Phys. Radium*, vol. 15, no. 4, 1954.
- [11] 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,” *J. Appl. Phys.*, vol. 103, no. 7, pp. 1–4, 2008.
- [12] D. De, K. Dey, S. Majumdar, and S. Giri, “Ageing effects in nanocrystalline Co50Ni50 and Fe50Ni50 alloy: Role of magnetic anisotropy,” *Solid State Commun.*, vol. 152, no. 19, pp. 1857–1861, 2012.
- [13] Y. Yoshizawa, S. Oguma, and K. Yamauchi, “New Fe-based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure,” *J. Appl. Phys.*, vol. 64, no. 10, pp. 6044–6046, 1988.
- [14] A. Mansri, “Processus d’aimantation dans les matériaux doux à base de fer- Représentation des Pertes en régime dynamique,” pp. 1–126, 2014.
- [15] R. Hilzinger and W. Rodewald, *Magnetic Materials: fundamentals, alloys, properties, products, applications*. VACUUMSCHMELZE GmbH & Co, 2013.

-
- [16] Vacuumschmelze, “Nanocrystalline VITROPERM.” .
- [17] G. Herzer, “Modern soft magnets: Amorphous and nanocrystalline materials,” *Acta Mater.*, vol. 61, no. 3, pp. 718–734, 2013.
- [18] T. Waeckerlé et F. Alves, “Alliages magnétiques nanocristallins,” in *Matériaux magnétiques en génie électrique 2*, LAVOISIER, 2006.
- [19] G. Herzer, “Chapter 3 Nanocrystalline soft magnetic alloys,” in *Handbook of Magnetic Materials*, vol. 10, 1997, pp. 415–462.
- [20] G. Herzer, “Grain size dependence of coercivity and permeability in nanocrystalline ferromagnets,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 26, no. 5, pp. 1397–1402, 1990.
- [21] K. Suzuki and G. Herzer, *Soft magnetic nanostructures and applications*, no. May. 2006.
- [22] G. Herzer, “Nanocrystalline soft magnetic materials,” *Phys. Scr.*, vol. 1993, no. T49A, pp. 307–314, 1993.
- [23] F. E. Luborsky and J. L. Walter, “Magnetic Anneal Anisotropy in Amorphous Alloys,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. MAG-13, no. 2, pp. 953–956, 1977.
- [24] B. Hofmaan and H. Kronmüller, “Stress-induced magnetic anisotropy in nanocrystalline alloys,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 152, pp. 91–98, 1996.
- [25] K. Suzuki and G. Herzer, “Magnetic-field-induced anisotropies and exchange softening in Fe-rich nanocrystalline soft magnetic alloys,” *Scr. Mater.*, vol. 67, no. 6, pp. 548–553, 2012.
- [26] G. Herzer, “Magnetic field-induced anisotropy in nanocrystalline Fe-Cu-Nb-Si-B alloys,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 133, no. 1–3, pp. 248–250, 1994.
- [27] Y. Yoshizawa and K. Yamauchi, “Induced Magnetic Anisotropy and Thickness Dependence of Magnetic Properties in Nanocrystalline Alloy ‘Finemet,’” *IEEE Transl. J. Magn. Japan*, vol. 5, no. 11, pp. 1070–1076, 1990.
- [28] L. Ling, Y. Biao, G. Le-ding, Y. Sha, and C. Zhui-hui, “Effects of different annealing treatments on soft magnetic properties of Finemet allo,” in *2nd IEEE International Nanoelectronics Conference*, 2008, pp. 458–461.
- [29] R. Madugundo, O. Geoffroy, T. Waeckerle, B. Frincu, S. Kodjikian, and S. Rivoirard, “Improved soft magnetic properties in nanocrystalline FeCuNbSiB Nanophy® cores by intense magnetic field annealing,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 422, no. September 2016, pp. 475–478, 2017.
- [30] G. Herzer, “Anisotropies in soft magnetic nanocrystalline alloys,” *J. Magn. Magn. Mater.*,

- vol. 294, no. 2, pp. 99–106, 2005.
- [31] K. Yoshizawa, Y. Yamauchi, “Effect of magnetic field annealing on magnetic properties in ultrafine crystalline Fe-Cu-Nb-Si-B Alloys,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 25, no. 5, pp. 3324–3326, 1989.
- [32] 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 75.5Cu 1Nb 1Si 13.5B 9 Alloy,” *J. Mater. Sci. Technol.*, vol. 28, no. 1, pp. 21–26, 2012.
- [33] M. Ohta and Y. Yoshizawa, “Effect of heating rate on soft magnetic properties in nanocrystalline Fe_{80.5}Cu_{1.5}Si₄B₁₄ and Fe₈₂Cu₁Nb₁Si₄B₁₂ alloys,” *Appl. Phys. Express*, vol. 2, no. 2, pp. 78–81, 2009.
- [34] S. Flohrer and G. Herzer, “Random and uniform anisotropy in soft magnetic nanocrystalline alloys (invited),” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 322, no. 9–12, pp. 1511–1514, 2010.
- [35] Z. Xue, X. Li, S. Sohrabi, Y. Ren, and W. Wang, “Magnetic properties in finemet-type soft magnetic toroidal cores annealed under radial stresses,” *Metals (Basel)*, vol. 10, no. 1, pp. 1–10, 2020.
- [36] C. Miguel, A. Zhukov, J. J. Del Val, and J. González, “Coercivity and induced magnetic anisotropy by stress and/or field annealing in Fe- and Co- based (Finemet-type) amorphous alloys,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 294, no. 2, pp. 245–251, 2005.
- [37] G. Herzer, “Creep Induced Magnetic Anisotropy in Nanocrystalline Fe-Cu-Nb-Si-B Alloys,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 30, no. 6, pp. 4800–4802.
- [38] H. K. Lachowicz, “The Nature of Stress-Anneal-Induced Anisotropy in Finemet-Type Magnets,” *J. Magn.*, vol. 3, no. 4, pp. 112–115, 1998.
- [39] H. K. Lachowicz, A. Neuweiler, F. Popławski, and E. Dynowska, “On the origin of stress-anneal-induced anisotropy in FINEMET-type nanocrystalline magnets,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 173, no. 3, pp. 287–294, 1997.
- [40] G. Herzer, V. Budinsky, and C. Polak, “Magnetic properties of nanocrystalline FeCuNbSiB with huge creep induced anisotropy,” *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 266, no. 1, pp. 3–8, 2011.
- [41] A. Hernando, V. Madurga, J. M. Barandiarán, and O. V. Nielsen, “Short range order in (Fe, Co, Ni)₇₅Si₁₅B₁₀ amorphous alloys determined from magnetic anisotropy,” *Solid State Commun.*, vol. 54, no. 12, pp. 1059–1063, 1985.

-
- [42] G. Herzer, “Grain structure and magnetism of nanocrystalline ferromagnets,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 25, no. 5, pp. 3327–3329, 1989.
- [43] J. Petzold, “Advantages of softmagnetic nanocrystalline materials for modern electronic applications,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 242–245, no. PART I, pp. 84–89, 2002.
- [44] Danisense, “The Danisense flux gate current sensor technology.” [Online]. Available: <https://danisense.com/flux-gate/>.
- [45] LEM, “Capteurs Isolés de Courant et de Tension Caractéristiques - Applications - Calculs- 3ème édition.”
- [46] E. Favre and T. Wolfram, “Capteurs de courant : à chacun son argument,” *Technologie*, vol. 133, pp. 74–80, 2004.
- [47] AllianTech, “Techniques de mesure de courant.”, Rapport technique.
- [48] J. A. Ndrianaivoarivelo, “Etude de capteur fluxgate magnetometre,” Thèse de doctorat, Université d’antananarivo, 2014.
- [49] F. Costa and P. Poulighet, “Sondes Pour La Mesure Courant Electronique Puissance,” *Tech. l’Ingénieur*, vol. 33, no. 0, pp. 1–18, 2005.
- [50] Đ. Radivoje and M. Ponjavi, “Self-Oscillating Fluxgate Current Sensor with Pulse Width Modulated Feedback,” vol. 14, no. 2, pp. 33–36, 2010.
- [51] M. Ponjavic and S. Veinovic, “Low-power self-oscillating fluxgate current sensor based on Mn-Zn ferrite cores,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 518, no. August 2020, p. 167368, 2021.
- [52] M. M. Ponjavić and R. M. Durić, “Nonlinear modeling of the self-oscillating fluxgate current sensor,” *IEEE Sens. J.*, vol. 7, no. 11, pp. 1546–1553, 2007.
- [53] P. Pejovic, “A simple circuit for direct current measurement using a transformer,” *IEEE Trans. Circuits Syst. I Fundam. Theory Appl.*, vol. 45, no. 8, pp. 830–837, 1998.
- [54] D. Barthelmy, D. Coutellier, and A. Lekdim, “Fluxgate Transducer For Current Sensing,” 2021.
- [55] A. Lekdim, “Contribution à l’étude du vieillissement thermique des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB et polycristallins FeCoV,” Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1, 2017.
- [56] J. N. Mohapatra, A. K. Panda, M. K. Gunjan, N. R. Bandyopadhyay, A. Mitra, and R. N. Ghosh, “Ageing behavior study of 5Cr-0.5Mo steel by magnetic Barkhausen emissions and magnetic hysteresis loop techniques,” *NDT E Int.*, vol. 40, no. 2, pp. 173–178, 2007.

-
- [57] A. Datta, R. . Martis, and S. . Das, “Accelerated aging behavior of an iron base amorphous alloy for 60 HZ application,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 18, no. 6, p. 55, 1982.
- [58] T. Naohara, “Aging effects of the microstructure and soft magnetic properties in an amorphous Fe-Si-B-Nb alloy,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 68, no. 7, pp. 1012–1014, 1996.
- [59] V. S. Tsepelev, Y. N. Starodubtsev, and V. Y. Belozarov, “Thermal Stability of Nanocrystalline Soft Magnetic Alloys with Different Inhibitors,” vol. 821, pp. 250–255, 2019.
- [60] V. S. Tsepelev and Y. N. Starodubtsev, “Nanocrystalline soft magnetic iron-based materials from liquid state to ready product,” *Nanomaterials*, vol. 11, no. 1, pp. 1–39, 2021.
- [61] M. M. Gong, F. Liu, and K. Zhang, “Thermodynamic stability of binary nanocrystalline alloys: Analysis of solute and excess vacancy,” *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.*, vol. 105, no. 4, pp. 927–934, 2011.
- [62] G. Bonny, N. Castin, J. Bullens, A. Bakaev, T. C. P. Klaver, and D. Terentyev, “On the mobility of vacancy clusters in reduced activation steels: An atomistic study in the Fe-Cr-W model alloy,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 25, no. 31, 2013.
- [63] Memmert, “Memmert étuves de séchage.” [Online]. Available: <https://www.memmert.com/fr/produit/etuves-etuves-de-sechage/etuve-universelle/UN110/>.
- [64] Arctiko, “Low temperature freezers.” [Online]. Available: <https://www.arctiko.com/products/60-40-c-low-temperature-freezers/ltf-85/>.
- [65] Blinder, “Chambres d’essais climatiques pour variation de température rapide.” [Online]. Available: <https://www.binder-world.com/fr-fr/produit/mk-115>.
- [66] A. Lekdim, L. Morel, and M. A. Raulet, “Effect of the remaining magnetization on the thermal ageing of high permeability nanocrystalline FeCuNbSiB alloys,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 460, pp. 253–262, 2018.
- [67] Y. Yao, “Etudes des matériaux magnétiques nanocristallins FeCuNbSiB pour applications en électronique de puissance,” Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2016.
- [68] L. Arbenz, “Characterization of the electromagnetic properties of soft magnetic materials : application to a claw pole rotor,” Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers, 2017.
- [69] H. Barkhausen, “Zwie mit hilfe der neuen verstärkter entdeckte erscheinungen.,” *Phys. Z.*,

-
- vol. 20, pp. 401–403, 1919.
- [70] M. Unterberg, J. Stanke, D. Trauth, and T. Bergs, “A time series classification approach to non-destructive hardness testing using magnetic Barkhausen noise emission,” *Prod. Eng.*, vol. 15, no. 3–4, pp. 509–517, 2021.
- [71] C. M. Matzkanin, George A., Beissner, Robert E., et Teller, “The Barkhausen effect and its applications to nondestructive evaluation.,” 1979.
- [72] A. H. Amalric, “Etude par mesure du bruit Barkhausen de la microstructure et de l’état de contrainte d’aciers biphasés: application aux aciers pour tôle automobile,” Thèse de doctorat, L’Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2007.
- [73] D. J. Buttle, J. P. Jakubovics, G. A. D. Briggs, and C. B. Scruby, “Magneto-acoustic and Barkhausen emission from domain-wall interactions with precipitates in Incoloy 904,” *Philos. Mag. A Phys. Condens. Matter, Struct. Defects Mech. Prop.*, vol. 55, no. 6, pp. 735–756, 1987.
- [74] M. A., “Study of the possibilities of magnetic noise analysis in non-destructive measurement of surface stresses.,” in *8ème conférence mondiale sur les essais non destructifs.*, 1976.
- [75] L. Małkiński and T. Kulik, “Correlation between Barkhausen Noise and Coercivity in Amorphous and Nanocrystalline Fe-Cu-Nb-Si-B Alloys,” *Acta Phys. Pol. A*, vol. 91, no. 2, pp. 435–438, 1997.
- [76] S. Szabó, D. L. Beke, L. Harasztosi, L. Daróczy, G. Posgay, and M. Kis-Varga, “Correlation between the grain-shape and magnetic properties in nanocrystalline iron,” *Nanostructured Mater.*, vol. 9, no. 1–8, pp. 527–530, 1997.
- [77] S. Santa-Aho, *Barkhausen Noise Method for Hardened Steel Surface Characterization-The Effect of Heat Treatments, Thermal Damages and Stresses*. 2012.
- [78] H. Alex and S. Rudolf, *Magnetic domains: The analysis of magnetic microstructures*. .
- [79] YIMEI ZHU, *Modern techniques for characterizing magnetic materials*. 2005.
- [80] A. Lekdim, L. Morel, and M. A. Raulet, “Magnetic properties evolution of a high permeability nanocrystalline FeCuNbSiB during thermal ageing,” *EPJ Appl. Phys.*, vol. 79, no. 2, 2017.
- [81] Meliad, “Analyse par diffraction des rayons X,” 2019. [Online]. Available: <https://www.meliad-sas.com/fr/service-laboratoire/analyse-par-diffraction-des-rayons-x>.
- [82] 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,” *Anal. Chim. Acta*, vol. 262, no. 2, pp. 269–275, 1992.
- [83] A. M. Fitzpatrick, A. Fry, P. Holdway, F. Kandil, J. Shackleton and L. Suominen, *Determination of residual stresses by x-ray diffraction A National Measurement Good Practice Guide*, vol. 52. 2002.
- [84] M. Churyukanova *et al.*, “The effect of heat treatment on magnetic and thermal properties of Finemet-type ribbons and microwires,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 492, no. July, p. 165598, 2019.
- [85] V. Moorthy, S. Vaidyanathan, K. Laha, T. Jayakumar, K. B. S. Rao, and B. Raj, “Evaluation of microstructures in 2.25Cr-1Mo and 9Cr-1Mo steel weldments using magnetic Barkhausen noise,” *Mater. Sci. Eng. A*, vol. A231, no. 1–2, pp. 98–104, 1997.
- [86] R. Saoudi, L. Morel, M. A. Raulet, and B. Ducharne, “Magnetic properties and Barkhausen noise evolution during FeSiCuNbB nanocrystalline material aging,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 563, no. May, p. 169986, 2022.
- [87] 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,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 177–181, no. PART 2, pp. 949–950, 1998.
- [88] K. H. J. Buschow, *Handbook of Magnetic Materials, Volume 4 (Handbook on Ferromagnetic Materials)*. North Holland, 1988.
- [89] R. Schäfer, “The magnetic microstructure of nanostructured materials,” *Nanoscale Magn. Mater. Appl.*, pp. 275–307, 2009.
- [90] H. Kronmuller and S. Parkin, Eds., *Magnetism and advanced magnetic materials : Volume 4*. 2007.
- [91] R. Schäfer, A. Hubert, and G. Herzer, “Domain observation on nanocrystalline material,” *J. Appl. Phys.*, vol. 69, no. 8, pp. 5325–5327, 1991.
- [92] K. Suzuki, “Origin of microstructure and soft magnetic properties in nanocrystalline Fe-M-B (M = Zr, Hf and Nb) alloys,” The University of New South Wales, 1996.

Annexes

Les conditions de vieillissement des trois capteurs A, B et C sont trop différentes pour permettre une comparaison entre les trois vieillissements. En effet :

- **Au niveau du noyau magnétique** : les échantillons utilisés dans les trois capteurs n'ont pas ni les mêmes dimensions (voir section 2.2.2.3) ni les mêmes PM à l'état initial.
- **Au niveau du circuit électronique** : les trois capteurs sont conçus pour mesurer des amplitudes de courant différentes, le niveau d'excitation n'est pas le même, le niveau du courant d'excitation n'est pas le même...etc.

A. Évolution des PM des nanocristallins lors du vieillissement sous excitation du capteur (B)

Le Tableau A présente les propriétés magnétiques en quasi statique avant vieillissement de la nuance type-Z mesurées à 2 A/m, $f= 0.3$ Hz et de la nuance type-R mesurées à 6 A/m, $f= 1$ Hz.

Tableau A Propriétés magnétiques initiales mesurées en quasi statique des nanocristallins type-Z et type-R.

Nuance	$H_c(A/m)$	B_r/B_{max}	μ_r^{max}
Type-Z	0.7	0.93	850000
Type-R	0.85	0.65	450000

A.1. Vieillissement des matériaux nanocristallins type-Z

A.1.1. Caractérisations en quasi statique

La Figure A.1-1 présente l'évolution des cycles d'hystérésis statiques de la nuance type-Z lors du vieillissement à 200°C sous excitation de 1100 Hz. Nous constatons que le cycle B-H s'élargit faiblement en fonction du temps du vieillissement, par ailleurs, une faible augmentation au niveau du champ coercitif est constatée. Contrairement au capteur (A), la rectangularité du cycle reste constante lors du vieillissement, ceci est dû à l'état initial de ces tores qui possèdent une rectangularité plus forte que celle des tores utilisés dans les capteurs (A).

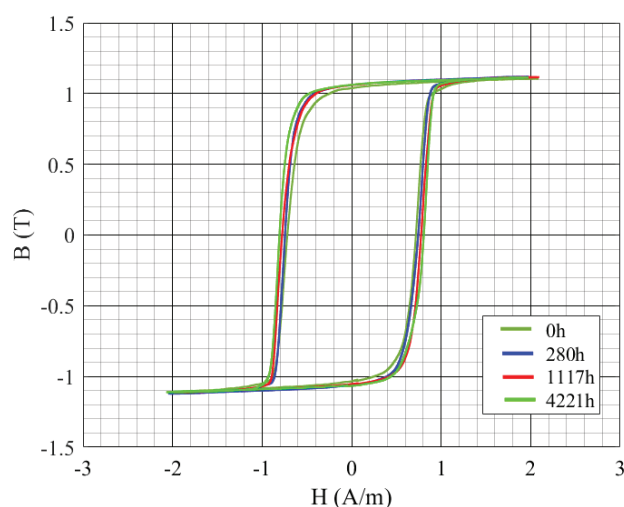


Figure A.1-1 Évolution des cycles B-H quasi statiques 2 A/m, $f=0.3$ Hz des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 1100 Hz.

A.1.2. Caractérisation en dynamique

La Figure A.1-2 présente l'évolution des cycles d'hystérésis dynamiques, mesurés à 26°C et à 200°C, lors du vieillissement à 200°C. En fonction du temps de vieillissement, les cycles d'hystérésis dynamiques se rétrécissent au début de vieillissement puis s'élargissent engendrant une augmentation des pertes totales.

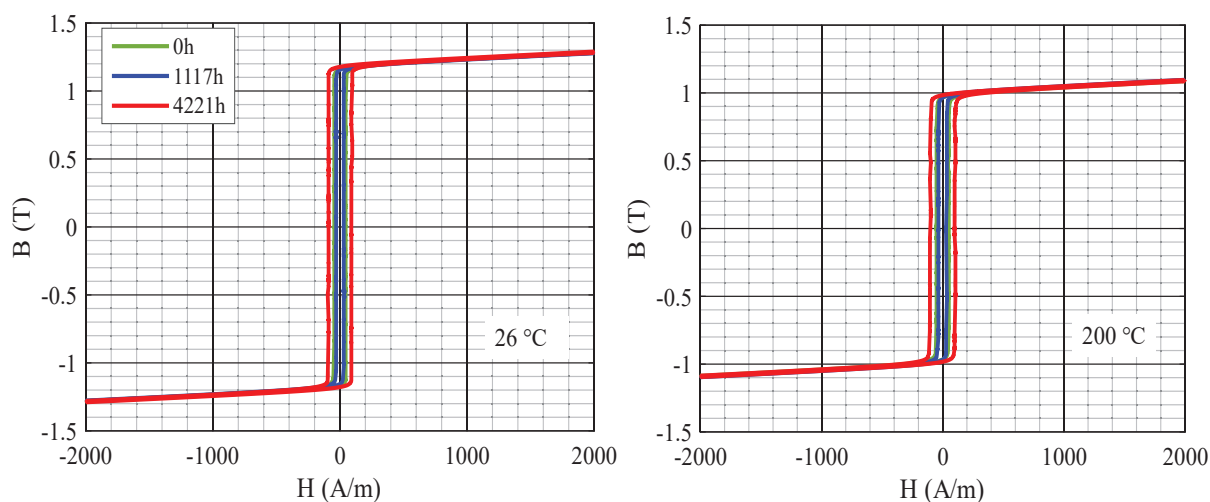


Figure A.1-2 Évolution des cycles B-H dynamiques des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 1100 Hz.

La résistance shunt qui permet la mesure du courant (champ magnétique H) est plus faible que celle du capteur (A). Par ailleurs, le rapport bruit/signal est plus important, donc la précision de mesure est moins bonne.

A.2. Vieillissement des matériaux nanocristallins type-R

A.2.1. Caractérisation en quasi statique

La Figure A.2-1 présente l'évolution des cycles d'hystérésis statiques lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 1100 Hz. Nous constatons que le cycle B-H passe d'un cycle rond à un cycle de plus en plus rectangulaire en fonction du temps du vieillissement.

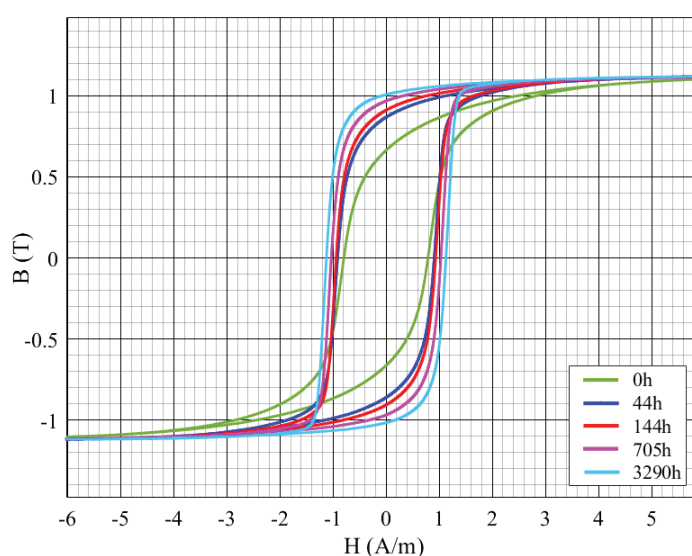


Figure A.2-1 Évolution des cycles B-H quasi statique (6 A/m, $f=1$ Hz) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 1100 Hz.

Cette évolution engendre une augmentation notable de la rectangularité B_r/B_{\max} et de la perméabilité. Cette variation est remarquable même pour les basses températures contrairement aux nanocristallins type-Z.

A.2.2. Caractérisations en dynamique

Quelle que soit la température de mesure, nous remarquons des variations au niveau du champ coercitif lors du vieillissement Figure A.2-2, mais le même problème d'incertitude de mesure expliqué dans la section (A.1.2) lié à la résistance shunt subsiste.

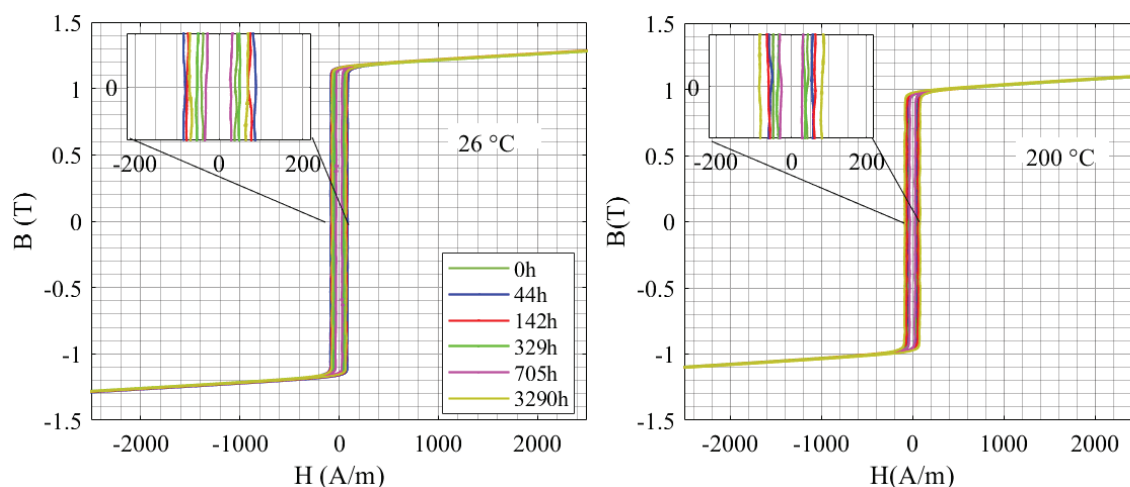


Figure A.2-2 Évolution des cycles B-H dynamiques des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 800 Hz.

B. Évolution des PM des nanocristallins lors du vieillissement sous excitation alternative du capteur (C)

Le Tableau B présente les propriétés magnétiques en quasi statique avant vieillissement, de la nuance type-Z mesurées à 2 A/m, $f=0.3$ Hz et de la nuance type-R mesurées à 6 A/m, $f=1$ Hz.

Tableau B Propriétés magnétiques mesurées en quasi statique des nanocristallins type-Z et type-R avant vieillissement.

	H_c (A/m)	B_r/B_{max}	μ_r^{max}
Type-Z	0.72	0.97	900000
Type-R	0.67	0.64	550000

B.1. Vieillissement des matériaux nanocristallins type-Z

B.1.1. Caractérisations en quasi statique

La Figure B.1-1 présente l'évolution des cycles d'hystérésis statiques de la nuance type-Z lors du vieillissement sous excitation de 800 Hz à 200°C. Nous constatons que le cycle B-H s'élargit en fonction du temps du vieillissement par ailleurs, le champ coercitif augmente. Ceci a été constaté pour les deux températures de vieillissement (150 et 200°C). A l'état initial, les tores utilisés dans les capteurs (C) ont une rectangularité forte par rapport aux tores utilisés dans les capteurs (A) et (B), cela explique la non variation de la rectangularité lors du VSE.

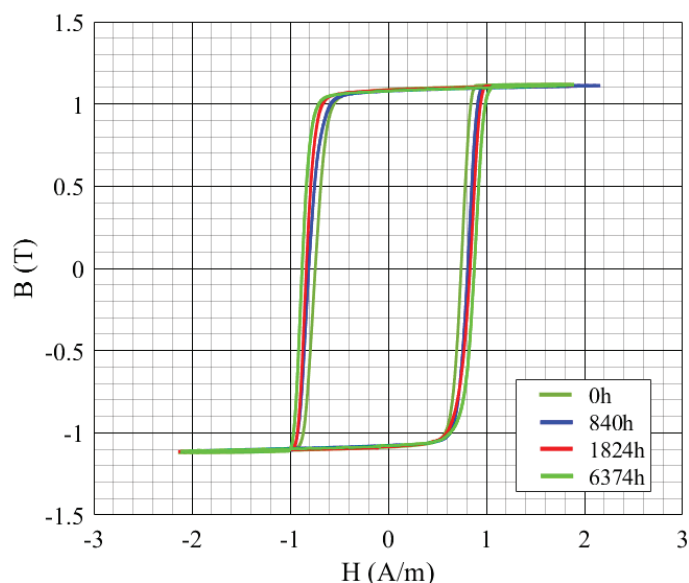


Figure B.1-1 Évolution des cycles B-H quasi statiques 2 A/m, $f=0.3$ Hz des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 800 Hz.

Dans ce cas, la variation de la perméabilité maximale sera liée à l'augmentation du champ coercitif seulement, vu que ce dernier augmente, la perméabilité aurait tendance à diminuer lors du VSEA.

B.1.2. Caractérisations en dynamique

Les résultats magnétiques dynamiques du capteur (C) sont beaucoup plus difficiles à exploiter. La résistance shunt qui permet de mesurer le courant d'excitation donc du champ magnétique H, est encore plus faible que celle du capteur (B). Par ailleurs, le signal d'excitation est noyé dans le bruit et difficile de séparer les variations dues à l'incertitude de mesure par rapport à celles dues au vieillissement.

Néanmoins, nous constatons dans la Figure B.1-2 un comportement magnétique similaire à celui du capteur (A), c'est-à-dire, que les cycles se rétrécissent puis s'élargissent lors du vieillissement. Le problème donc reste dans la quantification des évolutions.

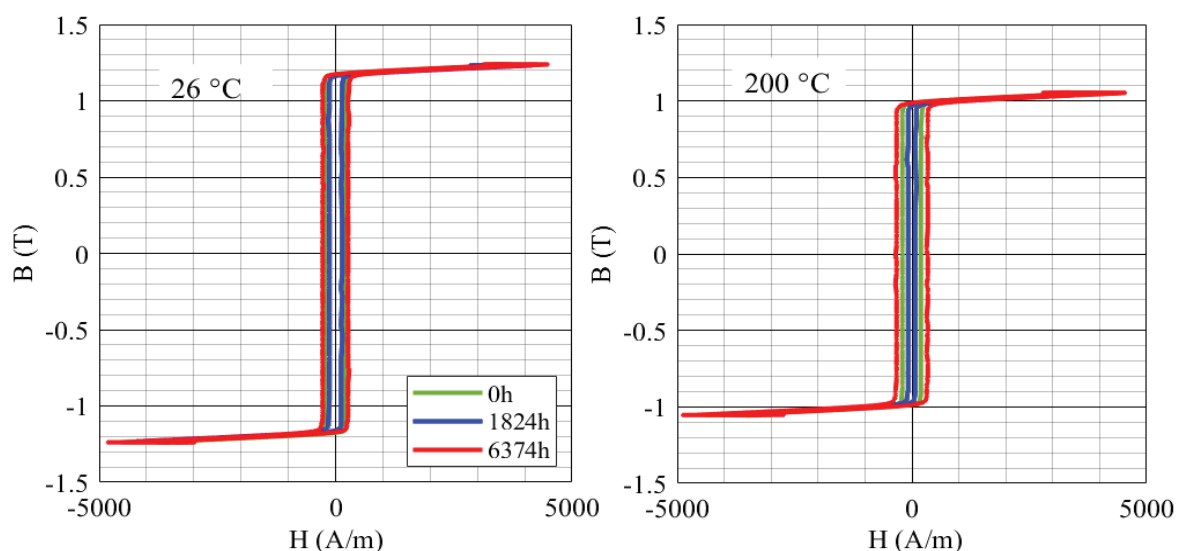


Figure B.1-2 Évolution des cycles B-H dynamiques des matériaux nanocristallins type-Z lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 800 Hz.

B.2. Vieillissement des matériaux nanocristallins type-R

B.2.1. Caractérisations en quasi statique

La Figure B.2-1 présente l'évolution des cycles d'hystérésis statiques lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 800 Hz. Nous constatons que le cycle B-H passe d'un cycle rond à un cycle de plus en plus rectangulaire en fonction du temps du vieillissement.

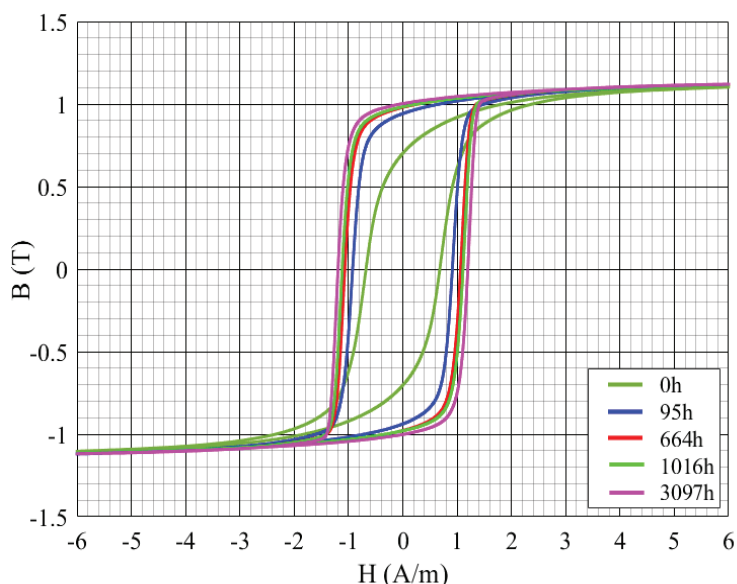


Figure B.2-1 Évolution des cycles B-H quasi statiques (6 A/m, $f=1$ Hz) des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement à 200°C sous une excitation alternative de fréquence 800 Hz.

B.2.2. Caractérisations en dynamique

Nous avons les mêmes problèmes que ceux soulignés dans la section B.1.2 liés à l'incertitude de mesure du champ magnétique H . De même, pour les évolutions lors du vieillissement qui sont similaires à celles du capteur (A) où nous remarquons que les cycles BH (Figure B.2-2) diminuent en surface donc en pertes totales puis augmentent lors du vieillissement. Ces évolutions sont constatées quelle que soit la température de caractérisation.

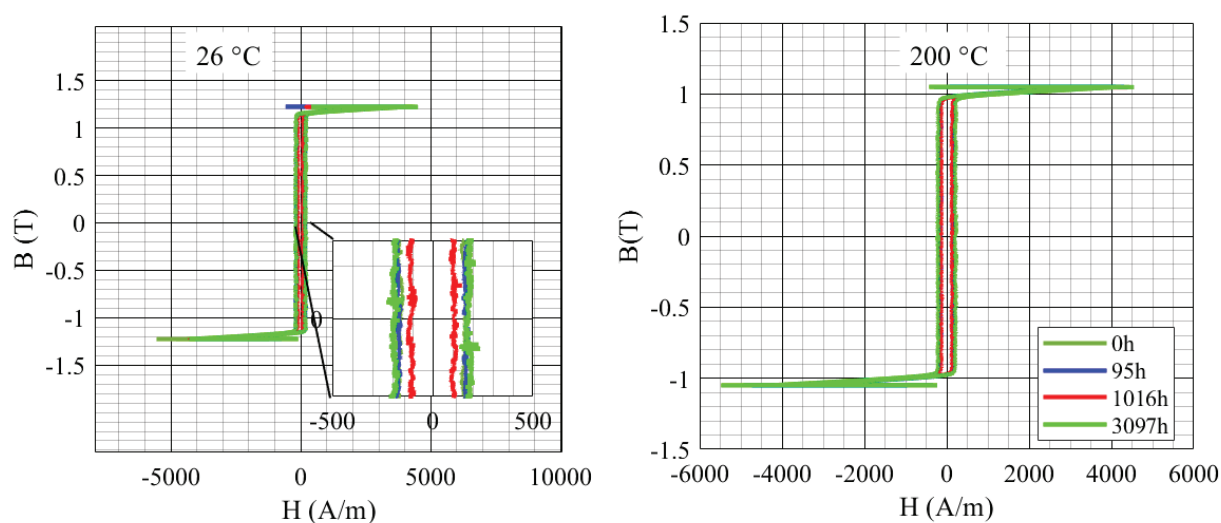


Figure B.2-2 Évolution des cycles B-H dynamiques des matériaux nanocristallins type-R lors du vieillissement sous une excitation alternative de fréquence 800 Hz à 200°C.

B.3. Conclusions des annexes

Les PM statiques des nanocristallins type-R lors du vieillissement sous excitation alternative du capteur (B) et du capteur (C) ont montré les mêmes tendances de variations que celles du capteur (A) étudié dans le chapitre 3. Les évolutions sont plus notables sur la rectangularité des cycles où elle augmente lors du VSEA. Pour les nanocristallins type-Z, les variations sont différentes au niveau de la rectangularité, ce dernier reste constant dans le capteur (C), contrairement aux capteurs (A) et (B). Ceci est dû aux différents états initiaux des échantillons utilisés dans chaque capteurs (A, B et C). En effet, dans les noyaux magnétiques du capteur (C) la rectangularité est très élevée avant vieillissement, grâce à l'anisotropie « complètement » uniforme induite lors du recuit. Alors que dans les échantillons dédiés aux capteurs (A), l'anisotropie induite est « moyennement » uniforme comme expliqué dans le chapitre 4. Quant au capteur (B), la rectangularité de ces noyaux type-Z se trouve entre les deux (capteur A, et B). Nous pouvons considérer que l'anisotropie

introduite lors du recuit est moins uniforme que celle introduite dans les noyaux du capteur (C) mais plus uniforme que celle introduite dans les noyaux du capteur (A).

Contrairement aux caractérisations statiques, les caractérisations dynamiques ne sont pas exploitables à cause des fortes incertitudes de mesures.

En perspectives, il serait intéressant de mener une étude d'évolution des propriétés électriques des deux capteurs (B et C), notamment sur l'offset et l'erreur du gain afin de définir l'impact du vieillissement magnétique sur ces paramètres.