

Analyse du vieillissement des alliages nanocristallins FeCuSiNbB par le bruit de Barkhausen

Rania SAOUDI^a, Laurent MOREL^a, Marie Ange RAULET^a, Benjamin DUCHARNE^b

^a Univ Lyon, Université Claude Bernard Lyon 1, INSA Lyon, École Centrale de Lyon, CNRS, Ampère, UMR5005, Villeurbanne, France

^b Laboratoire de Génie Électrique et Ferroélectricité, INSA de Lyon, Villeurbanne, France

RESUME - Cet article s'intéresse au vieillissement thermique d'alliages nanocristallins FeCuSiNbB de trois types « plat » (F), « rond » (R) et « rectangulaire » (Z) à travers le suivi de leurs propriétés magnétiques macroscopiques. L'étude proposée exploite la mesure du bruit de Barkhausen afin d'apporter des éléments de réponses sur les raisons de la modification des propriétés magnétiques dans le temps de ces matériaux. Les résultats obtenus permettent de corroborer l'hypothèse basée sur la modification de la structure en domaines lors du vieillissement thermique.

Mots-clés—*propriétés macroscopiques, matériaux nanocristallins, vieillissement thermique, bruit de Barkhausen, énergies d'anisotropie, domaines magnétiques.*

1. INTRODUCTION

Grâce à leurs propriétés magnétiques intéressantes, une induction à saturation élevée (1,25 T), un faible champ coercitif (<1 A/m) et les différentes formes possibles des cycles B-H « plat », « rond », « rectangulaire », les matériaux nanocristallins sont omniprésents dans les systèmes du génie électrique.

Afin de répondre à l'exigence de l'augmentation de l'efficacité énergétique, ces derniers doivent fonctionner à des températures non conventionnelles et toujours plus élevées. Dans ce contexte, la stabilité dans le temps des composants contenant des matériaux nanocristallins devient une problématique capitale. S'il existe un nombre non négligeable de travaux sur la stabilité dans le temps des matériaux magnétiques polycristallins [1], [2], [3], [4], pour n'en citer que quelques un, une bibliographie bien moindre porte sur le vieillissement des matériaux nanocristallins [5], [6].

Dans une étude précédente [5], Lekdim et al se sont concentrés sur le suivi de l'évolution des propriétés magnétiques au cours du vieillissement thermique de deux types de nanocristallins (R et F). Dans [5], des caractérisations (XRD) portant sur la microstructure des matériaux (F) et (R) avaient montré que les dégradations magnétiques macroscopiques observées ne pouvaient résulter d'un changement de microstructure mais étaient sans doute dues à une modification de la structure en domaines magnétiques.

Les travaux présentés dans cet article viennent compléter ceux réalisés par Lekdim sur les nuances (F) et (R) [5] par des

résultats de comportement dans le temps et en températures de la nuance à cycles fortement « rectangulaires » (Z).

Afin d'apporter des éléments de réponses à l'hypothèse émise dans [5] relative à la modification de la structure en domaines lors du vieillissement, des caractérisations supplémentaires obtenues par des relevés du bruit magnétique de Barkhausen lors du vieillissement sont effectuées (MBN). Cette technique a été retenue car le dispositif expérimental apparenté est relativement peu coûteux et aisé à mettre en œuvre de plus, elle constitue une caractérisation non destructive. Le phénomène MBN résulte de changements discrets de l'aimantation provoqués par les interactions entre les parois des domaines et les sites d'épingle pendant l'aimantation. Cet effet a été utilisé comme méthode d'essai non destructive qui fournit des propriétés intrinsèques intéressantes telles que la taille des grains pendant le traitement thermique [7], la vitesse des parois et le chemin traversé par les parois de différents matériaux, tels que les matériaux polycristallins [8]. Dans cet article, les interprétations MBN habituellement utilisées pour les matériaux polycristallins ont été projetées sur les matériaux nanocristallins, en considérant que les nano grains représentent des sites de pincement pour les parois.

2. MATERIAUX ET OUTILS EXPERIMENTAUX

2.1. Caractérisation en quasi-statique

Un ruban amorphe $Fe_{73,5}Si_{15}B_7Nb_3Cu_1$ et d'épaisseur d'environ 22 μm a été enroulé pour former des tores de diamètre extérieur 22 mm et de diamètre intérieur 16 mm. Pour atteindre l'état nanocristallin (cristallisation d'environ 70 %), un recuit thermique a été appliqué pendant 1 heure à une température de 530 °C. Un cycle d'hystérésis B-H « rond » (R) est obtenu si aucun champ magnétique ni aucune contrainte mécanique ne sont appliqués pendant le traitement. Un cycle B-H « plat » (F-) est obtenue en appliquant un champ magnétique transversal au ruban. Enfin, on obtient un cycle B-H très « rectangulaire » (Z) en appliquant un champ magnétique dans le sens longitudinal au ruban. Pour des raisons de confidentialité les données spécifiques aux traitements effectués par l'application d'un champ magnétique ne peuvent être divulguées.

La figure Fig. 1. donne la superposition des cycles B-H des trois types de nanocristallins étudiés. Enfin, les propriétés magnétiques de chaque type de nanocristallin (champ coercitif

H_c , pertes statiques P_{static} , perméabilité relative maximale μ_r^{max} , énergie d'anisotropie totale lors de la magnétisation E_K , induction maximale B_{max} relevées en quasi-statique, sont données dans le Tableau 1.. Les caractérisations sont faites par un banc expérimental basé sur la technique du transformateur à vide. Les échantillons sont démagnétisés avant d'être remis dans l'étude pour le vieillissement [9]. La courbe de première aimantation permet de définir la valeur de l'énergie d'anisotropie totale E_K .

Les échantillons nanocristallins à cycles rectangulaires (Z-type) ont été soumis à cinq températures de vieillissement (-55, 110, 150, 200 et 240 °C). Après chaque durée de vieillissement, les échantillons et le dispositif de caractérisation sont placés dans une chambre climatique portée à la température de 20 °C. Cette précaution est prise afin d'éviter des dispersions de mesures liées à des fluctuations de la température ambiante où par exemple, une variation de 15 °C sur la température ambiante (différentiel de la température ambiante entre l'été et l'hiver) entrainerait une variation de 1,5% sur la mesure de H_c .

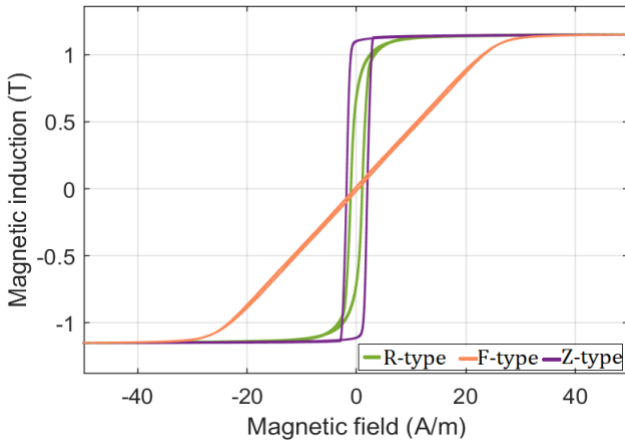


Fig. 2. Cycles quasi statiques des trois types de matériau nanocristallin avant vieillissement.

Tableau 2. Propriétés magnétiques initiales des trois types de nanocristallins

	R-type	F-type	Z-type
Conditions de mesure (H_{max} , f)			
	6 A/m 1 Hz	50 A/m 1 Hz	2 A/m 0.3 Hz
H_c (A/m)	0.6	0.44	0.63
P_{static} (10^{-4} W/kg)	1.08	0.0846	1.358
μ_r^{max}	~500 000	~30 000	~1 000 000
Conditions de mesure (H_{max} , f)			
50 A/m, 0.5 Hz			
E_K (J/m ³)	1.50	16	1.80
B_{max} (T)	1.15		

Plus de détails sur les conditions de caractérisation et le protocole de vieillissement des matériaux nanocristallins (R) et (F) sont donnés dans [5].

2.2. Mesure du bruit de Barkhausen

Les mesures du bruit de Barkhausen sont faites en utilisant le système expérimental dont le schéma de principe est présenté dans la figure Fig. 2.. Les formes d'onde de sortie pour contrôler la densité de flux appliquée sont générées à l'aide d'une carte de sortie numérique Picoscope. Cette forme d'onde sinusoïdale de sortie ($H_{max} = 50$ A/m, $f = 0,5$ Hz) est introduite dans un amplificateur de puissance. Le courant de magnétisation est envoyé à une culasse de magnétisation par l'intermédiaire d'une résistance de dérivation ce qui permet de mesurer le courant. La culasse est enroulée autour d'un noyau magnétique en forme de U. La réponse magnétique de l'échantillon est recueillie par la mesure de la tension V_B aux bornes de 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.

$$V_B(t) = N_{s2} \cdot \left(\frac{d\phi_1(t)}{dt} - \frac{d\phi_2(t)}{dt} \right) \quad (1)$$

Où N_{s2} représente le nombre de spires de chaque bobine réceptrice, ϕ_1 le flux vu par la première bobine et ϕ_2 le flux vu par la deuxième bobine.

Ce signal est ensuite amplifié (50 dB) et filtré à l'aide d'un filtre passe-bande (4-50 kHz). Pour des raisons de répétabilité d'une caractérisation à une autre, on utilise souvent le signal RMS (Root Mean Square) de V_B soit V_{MBN} . Après l'obtention de l'enveloppe nous pouvons l'exploiter en analysant la position du pic, la largeur à mi-hauteur, la valeur maximale du pic, la distribution des sauts....

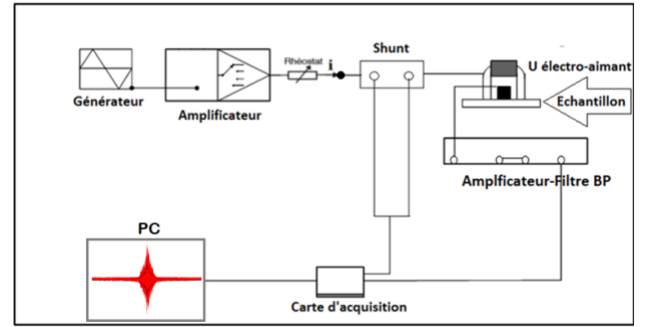


Fig. 2. Schéma de principe du banc de mesure du bruit de Barkhausen.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. Evolution des propriétés magnétiques lors du vieillissement

La figure Fig. 3. montre l'évolution de la variation relative du champ coercitif par rapport à sa valeur initiale pour différentes températures de vieillissement du matériau de type (Z). Une augmentation sensible est observée sauf pour la température la plus élevée de 240 °C où une dégradation plus importante est notée.

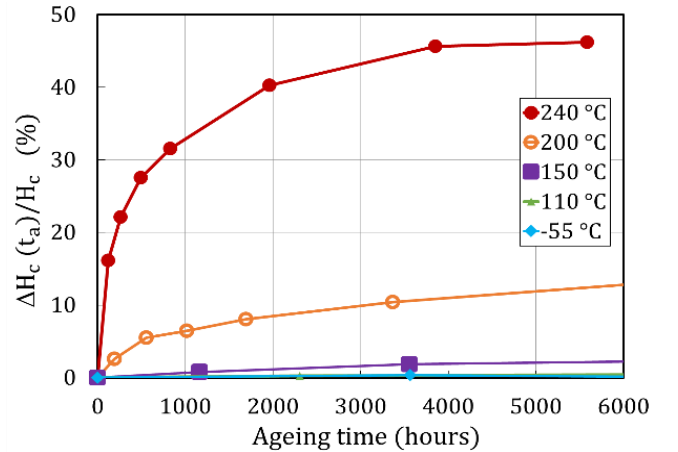


Fig. 3. Évolution du champ coercitif du matériau (Z) pour différentes températures de vieillissement.

Afin d'interpréter la différence de comportements dans le temps observée entre les trois types de nanocristallins, une étude est menée au niveau des énergies mises en jeu dans les matériaux.

La figure Fig. 4. montre que l'énergie d'anisotropie totale E_K pour les trois types de matériaux nanocristallins a augmenté dans les mêmes proportions au cours du vieillissement à 240°C. Cependant, l'impact diffère d'un type à l'autre, en effet, la dégradation des propriétés magnétiques est la plus importante dans le cas des matériaux de type (R), comme le montre la figure Fig. 5..

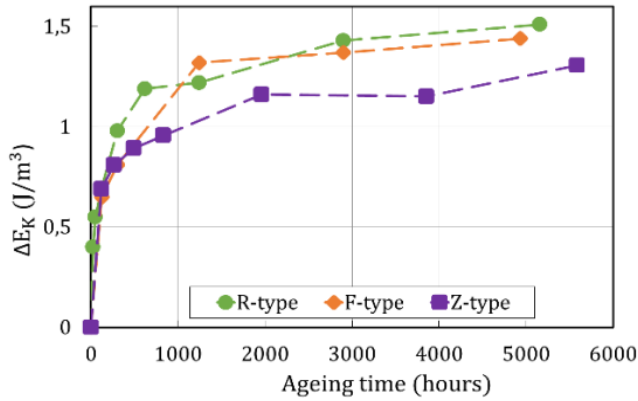


Fig. 4. Évolution de l'énergie d'anisotropie totale pour une température de vieillissement de 240 °C des trois matériaux nanocristallins (F, Z et R).

Pour les matériaux nanocristallins présentant une anisotropie uniforme à longue portée (par exemple celui de type (Z), l'énergie d'anisotropie totale E_K est la résultante des trois énergies : la magnéto cristalline aléatoire, la magnéto élastique et enfin l'énergie uniforme induite pendant le recuit avec champ magnétique.

Pour définir l'origine de l'augmentation de E_K , une étude complète a été menée dans [5] pour évaluer chaque énergie anisotrope indépendamment. Les mesures XRD sur des échantillons nanocristallins vieillis ont prouvé que l'énergie magnéto cristalline aléatoire ne change pas au cours du vieillissement car la fraction cristallisée en volume et la taille des grains ne changent pas. Les mesures de magnétostriction ont montré une diminution de la constante de magnétostriction à saturation ; ainsi, l'énergie magnéto élastique diminuerait [5].

En conclusion, les deux énergies anisotropes magnéto cristalline aléatoire et magnéto élastique ne participent pas à l'augmentation de l'énergie anisotrope totale. L'augmentation de l'énergie E_K au cours du vieillissement ne peut s'expliquer que par une modification de l'énergie anisotrope uniforme induite qui entraîne une variation des propriétés magnétiques au cours du temps. En effet, cette modification de l'énergie anisotrope uniforme induite modifie l'organisation des domaines magnétiques, donc les déplacements des parois.

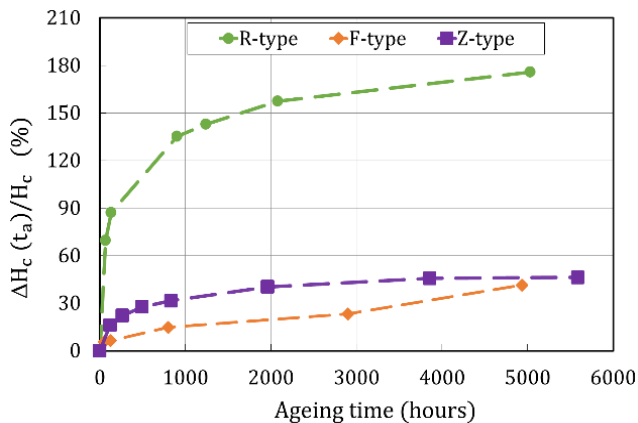


Fig. 5. Évolutions de H_c pour les trois types de matériaux en fonction du vieillissement.

3.2. Evolution du bruit de Barkhausen lors du vieillissement

L'hypothèse de la modification de la structure en domaines est analysée grâce à l'évolution du bruit de Barkhausen relevé lors du vieillissement des trois types de nanocristallins.

La figure Fig. 6. montre le profil du bruit de Barkhausen pour les trois types de nanocristallins soumis à la température de vieillissement de 200 °C. Le profil de l'enveloppe du bruit MBN fournit des informations sur la hauteur du pic MBN, la largeur complète à mi-maximum (FWHM) et la position du pic. Le dernier paramètre ne sera pas analysé car il a une forte corrélation avec le champ coercitif (<1 A/m), par conséquent, un petit déplacement du pic reste très difficile à détecter.

L'enveloppe magnétique de Barkhausen RMS des nuances de type F dans la figure Fig. 6. n'a pas montré de changement remarquable au cours du vieillissement à 200°C, ce qui est cohérent avec les faibles variations des propriétés magnétiques constatées. On peut en déduire que la contribution des mouvements des parois par rapport au phénomène de vieillissement de la nuance de type F est négligée. En effet, le processus d'aimantation dominant dans les matériaux de type F est la rotation de l'aimantation.

Contrairement à la nuance de type F, les hauteurs du pic du MBN pour les matériaux de types R et Z ont augmenté et les événements de Barkhausen (représentés par FWHM) ont diminué (Tableau 2.).

Tableau 2. Évolution du bruit de Barkhausen des trois types de matériaux nanocristallins lors du vieillissement à 200°C

Type	R	F	Z
Durée de vieillissement (h)	1088	2220	2220
FWHM (%)	-66	+0.7	-18
Pic (%)	+41.15	-9.53	+9%

Comme indiqué dans la littérature, ces paramètres sont sensibles à la contrainte interne et à la mobilité des parois [8] [10]. La contrainte interne représente à la fois la contrainte résiduelle et la contrainte externe appliquée. Les contraintes résiduelles sont analysées à l'aide des diagrammes de diffraction XRD. La position et la largeur des pics qui représentent toutes les deux la contrainte résiduelle comme expliqué dans [11], n'ont pas changé après un vieillissement à 240°C (température d'accélération du vieillissement). Étant donné qu'aucun pic ne se déplace, la contrainte résiduelle ne changera pas au cours du vieillissement. Quant à la contrainte externe, elle ne changera pas car aucune contrainte mécanique n'a été appliquée pendant toute la durée de l'étude de vieillissement.

Pour la mobilité des domaines magnétiques, l'augmentation des pics MBN doit être soutenue par l'augmentation du nombre de parois, augmentant ainsi le nombre d'interactions entre les parois et les sites d'épinglage. La diminution du FWHM est le résultat d'obstacles rencontrés par les parois pendant leur déplacement. En d'autres termes, elle peut être le résultat d'un nombre réduit de sites d'épinglage (par exemple, dislocations) et/ou d'un chemin libre moyen plus court pour le déplacement des parois [8].

Toutefois, les mesures XRD n'ont pas révélé de nouveaux pics. Il n'y a donc pas eu de changement de phase ou d'autres modifications de la microstructure (taille des grains, fraction cristallisée du volume et sites d'épinglage). Par conséquent, la variation du signal MBN au cours du vieillissement n'est pas liée à des modifications de la contrainte ou de la microstructure, elle est plutôt liée à un changement du nombre de parois et, par conséquent, à la taille des domaines magnétiques.

En définitive, l'augmentation de la hauteur du pic pour les types (Z) et (R) lors du vieillissement peut être reliée à une augmentation de la mobilité des domaines magnétiques [5], ce résultat vient corroborer l'hypothèse de modification de la structure en domaines lors du vieillissement émise dans [10].

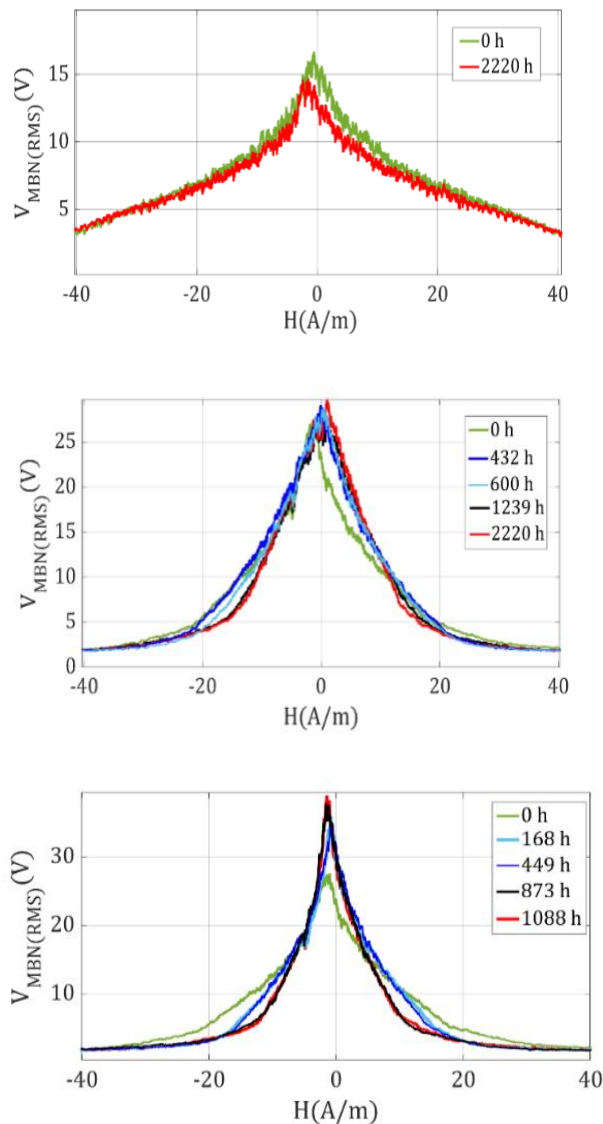


Fig. 6. Evolution du bruit de Barkhausen pour les trois nuances de nanocristallins pour une température de vieillissement de 200 °C (de haut en bas (F), (Z) et (R)).

4. CONCLUSIONS

Cet article a montré l'évolution du champ coercitif de la nuance Z-type lors du vieillissement thermique. Une comparaison avec deux autres types F et R a été faite et a montré une dégradation beaucoup prononcée pour le matériau nanocristallin R-type et en particulier pour les températures élevées.

Dans des études antérieures menées sur le vieillissement des matériaux nanocristallins, les mesures XRD ont prouvé que l'instabilité des propriétés magnétiques n'est pas due à des changements de microstructure, elle résulte plutôt d'une

modification de l'énergie anisotrope qui gère la structure du domaine magnétique.

Afin d'étudier cette hypothèse, une analyse est menée à partir du bruit de Barkhausen au cours du vieillissement. Cette étude a permis de corroborer l'hypothèse d'une modification de la structure en domaines lors du vieillissement. En effet, la méthode MBN a été utilisée qualitativement comme méthode indirecte pour compléter les caractérisations macroscopiques et étudier la structure en domaines des trois différents matériaux nanocristallins (R), (F) et (Z). Il résulte que l'évolution des signaux MBN des matériaux de type Z et de type R n'était pas due à une variation de la contrainte interne, mais plutôt à l'augmentation du nombre de parois après vieillissement.

Pour étayer les résultats du MBN et confirmer que la configuration des domaines magnétiques a changé après le vieillissement (domaines plus petits), des techniques d'imagerie directe telles que les mesures par effet Kerr seront réalisées dans des travaux à venir.

5. REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient APERAM Alloys d'avoir fourni les échantillons nanocristallins NANOPHY®.

6. REFERENCES

- [1] K. M. Marra, F.J.G. Landgraf, V.T. Buono, Magnetic losses evolution of a semi-processed steel during forced aging treatments, *J. Magn. Magn. Mater.* 320 (2008) e631–e634.
- [2] A.A. de Almeida, F.J.G. Landgraf, Magnetic aging, anomalous and hysteresis losses, *Mater Res.* vol. 22, no. 3 (2019).
- [3] G.M.R. Negri, N. Sadowski, N.J. Batistela, J.V. Leite, J.P.A. Bastos, Magnetic aging effect losses on electrical steels, *IEEE Trans. Magn.* vol. 52, no. 5 p1-4 (2016).
- [4] J.R. de Oliveira and al, Kinetics of magnetic ageing of 2% Si non oriented grain electrical steel, *Mater. Res.*, vol. 21, no.1 (2018).
- [5] A. Lekdim, L. Morel, M. Raulet, Magnetic ageing study of high and medium permeability nanocrystalline FeSiCuNbB alloys, *J. Magn. Magn. Mater.* 428 (2017) 260–268.
- [6] V.S. Tsepelev, Y.N. Starodubtsev, V.Ya Belozarov, Thermal Stability of Nanocrystalline Soft Magnetic Alloys with Different Inhibitors, *KEM* 821, (2019) 250–255.
- [7] V. Chunchu, G. Markandeyulu, Magnetic Barkhausen noise in amorphous Fe_{73.3}Cu₁Nb₃Si_{13.5}B₉ nanocrystalline ribbons, 321 (2013), 2012-2015.
- [8] S. Santa-Aho, Barkhausen noise method for hardened steel surface characterization-the effect of heat treatments, thermal damages and stresses, (2012)13-14.
- [9] A. Lekdim, L. Morel, M. Raulet, Magnetic ageing study of high and medium permeability nanocrystalline FeSiCuNbB alloys, *J. Magn. Magn. Mater.* 428 (2017) 260–268.
- [10] V.S. Tsepelev, Y.N. Starodubtsev, V.Ya Belozarov, Thermal Stability of Nanocrystalline Soft Magnetic Alloys with Different Inhibitors, *KEM* 821, (2019) 250–255.
- [11] V. Chunchu, G. Markandeyulu, Magnetic Barkhausen noise in amorphous Fe_{73.3}Cu₁Nb₃Si_{13.5}B₉ nanocrystalline ribbons, 321 (2013), 2012-2015.
- [12] S. Santa-Aho, Barkhausen noise method for hardened steel surface characterization-the effect of heat treatments, thermal damages and stresses, (2012)13-14.
- [13] A. Lekdim, L. Morel, M.A. Raulet, Effect of the remaining magnetization on the thermal ageing of high permeability nanocrystalline FeCuNbSiB alloys, *J. Magn. Magn. Mater.* 460 (2018) 253-262.
- [14] V. Moorthy, S. Vaidyanathan, T. Jayakumar & Baldev Raj, On the influence of tempered microstructures on magnetic Barkhausen emission in ferritic steels. *Philosophical Magazine A*, (1998), 1499-1514.
- [15] A.M. Fitzpatrick, A. Fry, P. Holdway, F. Kandil, J. Shackleton, L. Suominen, Determination of residual stresses by x-ray diffraction, *A National Measurement Good Practice Guide*, 2002.