

Influence des conditions de refroidissement sur le comportement magnétostrictif des matériaux ferromagnétiques – approche par modèle biphasé

M. Savary^{a,b}, O. Hubert^a, A.L. Helbert^b, T. Baudin^b,
T. Waeckerlé^c, R. Battonnet^c

a. LMT, ENS Paris-Saclay, UMR CNRS 8535, Université Paris-Saclay, Cachan, France.
savary@lmt.ens-cachan.fr, hubert@lmt.ens-cachan.fr

b. ICMMO, SP2M, Univ. Paris-Sud, Université Paris-Saclay, UMR CNRS 8182, Orsay, France.

maxime.savary@u-psud.fr, anne-laure.helbert@u-psud.fr, thierry.baudin@u-psud.fr

c. Aperam alloys Imphy, Imphy, France.

thierry.waeckerle@aperam.com, remy.battonnet@aperam.com

Résumé

Le document traite de l'influence des conditions de refroidissement d'un alliage fer-cobalt sur son comportement magnétostrictif. Une basse magnétostriction est recherchée. Celle-ci est obtenue au cours d'un traitement thermique développant une anisotropie uniaxiale conduisant à une structure bi-domaines. Ce traitement est suivi d'un refroidissement lent. Un refroidissement cent fois plus rapide conduit à une augmentation sensible de la magnétostriction. Des mesures de diffraction des rayons X permettent d'évaluer le niveau de contraintes résiduelles associées. L'introduction de cet état mécanique dans un modèle biphasé de couplage magnéto-mécanique permet de restituer le comportement observé.

Abstract

The paper deals with the influence of the cooling conditions of an iron-cobalt alloy on its magnetostrictive behavior. Low magnetostriction is sought. This is achieved during heat treatment which develops a uniaxial anisotropy leading to a bi-domain structure. This treatment is followed by slow cooling. Cooling a hundred times faster results in a significant increase of magnetostriction. X-ray diffraction measurements make it possible to evaluate the level of associated residual stresses. The introduction of this mechanical state in a two-phase magneto-mechanical coupling model allows to reconstruct the observed behavior.

Mots clefs : Magnétostriction ; contraintes résiduelles ; modèle multi-échelle magnéto-mécanique

Introduction

Les matériaux ferromagnétiques sont généralement utilisés pour produire et transformer l'énergie électrique. Ces matériaux ont l'inconvénient de se déformer de manière périodique sous l'application d'un champ magnétique ce qui génère un bruit indésirable dans les transformateurs par exemple [1]. La déformation d'un matériau magnétique a deux origines. Les forces d'origine magnétique, associées aux gradients d'aimantation, provoquent d'une part une déformation purement élastique. Elles sont

directement reliées à la géométrie de l'échantillon d'où leur nom d'effet de forme [2]. Il existe d'autre part une déformation "spontanée", intrinsèque au matériau, lorsque celui-ci est soumis à un champ. Cette déformation appelée *magnétostriction* dépend de l'état magnétique local du matériau. Sa réduction fait l'objet de travaux de recherche dont cette communication fait l'écho.

La déformation de magnétostriction est liée à l'existence d'une microstructure de domaines magnétiques [3] qui s'organisent de façon à minimiser l'énergie totale du système (1). A l'échelle d'un domaine, l'équilibre magnétique est le résultat de la compétition entre les différents termes énergétiques :

$$W_{\text{totale}} = W_E + W_K + W_H + W_S \quad (1)$$

W_E correspond à l'énergie d'échange, associée au couplage ferromagnétique entre atomes voisins et tend à rendre uniforme l'aimantation dans un domaine. W_K désigne l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline et tend à aligner l'aimantation selon des directions cristallographiques privilégiées couramment appelées directions de *facile aimantation*. W_H correspond à l'énergie magnétostatique, et tend à aligner l'aimantation selon la direction du champ magnétique appliqué par rotation au sein d'un domaine. Enfin W_S désigne l'énergie magnéto-élastique liée à l'interaction entre l'aimantation et les déformations élastiques du réseau cristallin. Un domaine est ainsi caractérisé par une aimantation et une déformation intrinsèque correspondant à la déformation de magnétostriction locale.

Aux énergies reportées dans l'équation (1) s'ajoute un terme démagnétisant non local (un moment magnétique est lui-même la source d'un champ magnétique) qui conduit généralement, au sein d'un cristal à l'existence de plusieurs domaines séparés par des parois où l'aimantation varie de manière brusque (sur une centaine de nanomètres). Ces domaines se combinent pour conduire à une aimantation et une déformation de magnétostriction moyennes minimisant l'énergie globale du système. Sous l'action d'un champ magnétique extérieur, l'équilibre magnétique est modifié par le déplacement des parois de domaines et la rotation des moments magnétiques. La variation d'aimantation associée s'accompagne naturellement d'une déformation de magnétostriction dont l'intensité dépendra des caractéristiques intrinsèques du matériau, et de la structuration en domaines initiale et finale.

Une des voies de recherche empruntées pour la réduction de cette magnétostriction et du bruit associé est la production de matériaux magnétiques présentant une structure bi-domaines. Cette structure peut être obtenue par traitement thermique sur tôles minces et élancées. La vitesse de refroidissement après traitement thermique conditionne cependant le résultat obtenu. L'objectif de ce document est d'observer et de modéliser l'influence de la vitesse de refroidissement sur la magnétostriction. Des mesures par diffraction des rayons X permettent ainsi d'évaluer le niveau de contraintes résiduelles associées au refroidissement. L'état mécanique est ensuite introduit dans un modèle biphasé de couplage magnéto-mécanique afin de restituer le comportement observé.

1. Matériau et procédure expérimentale

Le matériau employé pour cette étude est un alliage de fer-cobalt (Fe-27wt%Co). Les échantillons utilisés sont des bandes de 250 mm de long, de 12,5 mm de largeur et de 0,2 mm d'épaisseur. Les échantillons ont été prélevés et testés selon la direction de laminage (*DL*), la direction transverse (*DT*) et celle à 45° de *DL* (*45*). Nous disposons de deux lots qui diffèrent par la vitesse de refroidissement imposée à la suite du dernier traitement thermique de recristallisation. Le premier lot (noté FeCo^L) est refroidi lentement (300°C par heure - refroidissement four coupé) et le second lot (noté FeCo^R) est

refroidi à une vitesse estimée à environ cent fois la vitesse de refroidissement lent (mise en zone froide des échantillons).

Le comportement magnétostrictif ainsi que le comportement magnétique sont mesurés grâce à un banc de mesure magnétomécanique développé au LMT. Le chargement magnétique utilisé est un chargement magnétique anhystérétique (permettant d'accéder au comportement réversible du matériau). La description du dispositif utilisé et les procédures de mesure peuvent être trouvées dans la référence [4]. La magnétostriction est mesurée dans les directions longitudinale et transversale au champ magnétique grâce à l'emploi de jauges de déformation collées sur les deux faces des échantillons dont le résultat est moyenné.

L'estimation des contraintes résiduelles générées au cours du refroidissement rapide a été effectuée par diffraction des rayons X. Cette méthode est basée sur la variation des distances inter-réticulaires d_{hkl} de la famille de plan $\{211\}$ (utilisation d'une source au Chrome et d'un monochromateur). Cette variation traduit une déformation du réseau cristallin dans la direction normale aux plans considérés [5]. Le montage goniométrique utilisé est illustré figure 1. Les mesures sont donc effectuées pour un angle de Bragg θ moyen de 78° . L'angle ϕ est fixé à 0° . Les clichés de diffraction des rayons X sont obtenus pour ψ variant de -40° à $+40^\circ$ avec un pas de 6° .

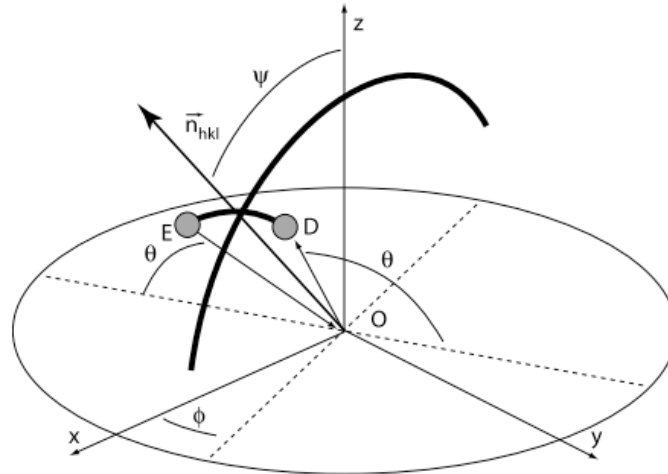


Fig. 1 : Montage goniométrique utilisé pour la détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X.

2. Mesure de la magnétostriction

La figure 2a montre les résultats de magnétostriction longitudinale et transversale mesurés selon les trois directions de prélèvement des échantillons après un refroidissement lent. On observe que quels que soient la direction et le sens de mesure, la magnétostriction ne dépasse pas $\pm 1\text{ppm}$ jusqu'à une valeur d'induction (B) d'environ 1,5T. A des niveaux plus élevés, le matériau s'allonge et se contracte latéralement sous l'effet du champ. On peut noter à ce moment là des différences de comportement d'une direction à l'autre (déformation longitudinale d'environ $5\pm 4\text{ppm}$ à 2,4T). Contrairement à certains aciers tel que le fer-silicium à grains orientés (Fe-Si GO) où la texture GOSS $\{110\}\langle 001\rangle$ pilote la magnétostriction [6], les mesures de texture (non reportées) n'indiquent aucune orientation préférentielle. Le comportement observé s'explique par l'établissement d'une anisotropie induite de la distribution des domaines, majoritairement orientés dans le sens de prélèvement de la bande, au cours du traitement thermique. La figure 2b montre les résultats de magnétostriction longitudinale et transversale mesurés selon les trois directions de prélèvement des échantillons après un refroidissement cent fois plus rapide que le précédent. On constate une augmentation très significative

de l'ensemble des niveaux. La magnétostriction est de forme parabolique et relativement isotrope-plane pour des inductions inférieures à 1,5T (atteignant environ 20ppm dans le sens longitudinal). La déformation longitudinale atteint des niveaux d'environ 35 ± 5 ppm à 2,4T.

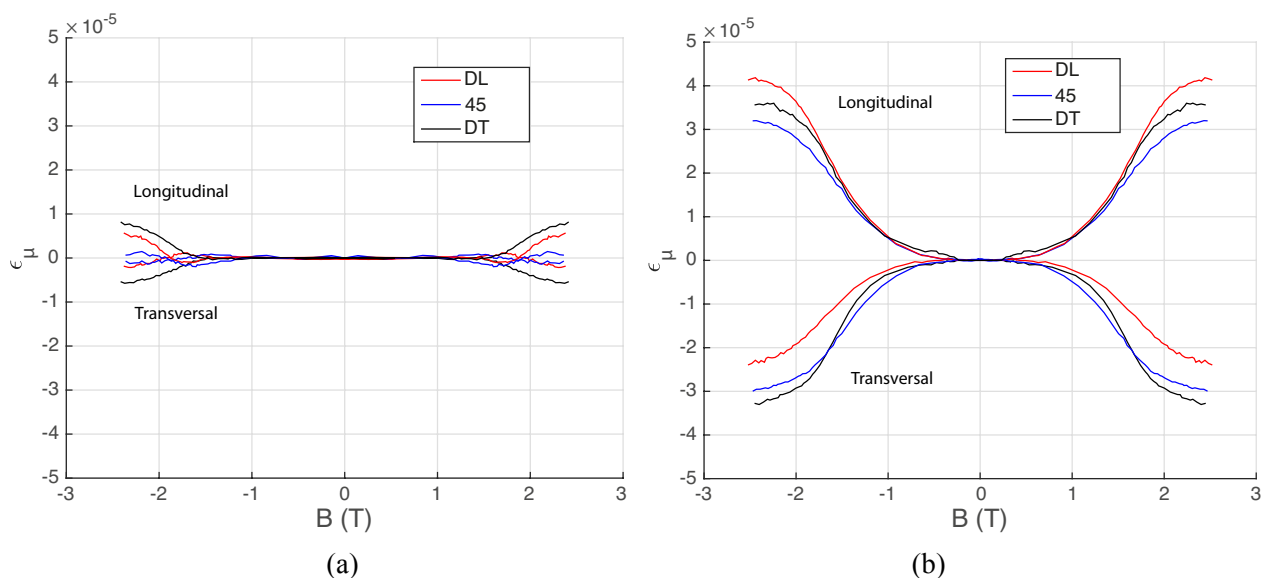


Fig. 2 Evolution du comportement magnétostrictif en fonction de l'induction selon les trois directions de prélèvement d'échantillon : (a) FeCo^L ; (b) FeCo^R.

Une des explications envisagées pour cette différence de comportement entre les échantillons refroidis lentement et rapidement est l'effet d'éventuelles contraintes résiduelles. Les comportements magnétique et magnétostrictif des matériaux sont en effet réputés très sensibles aux contraintes de manière générale [7-8]. Leur évaluation peut se faire à l'aide de la diffraction des rayons X.

La figure 3 reporte un zoom du pic {211} issue de la diffraction X en incidence normale pour les deux échantillons prélevés dans le sens DL. En considérant le matériau refroidi lentement comme matériau de référence (supposé libre de contraintes) on constate un élargissement du pic à mi hauteur de $0,022\pm 0,001^\circ$ (élargissement observable pour les autres incidences) pour l'échantillon refroidi rapidement. La position moyenne du pic n'est en revanche pas modifiée. Ce résultat indique l'absence a priori de contraintes résiduelles d'ordre 1 (à l'échelle de l'échantillon). L'élargissement est en revanche symptomatique de contraintes résiduelles d'ordre 2 [7]. Quelques hypothèses permettent d'en évaluer leur intensité.

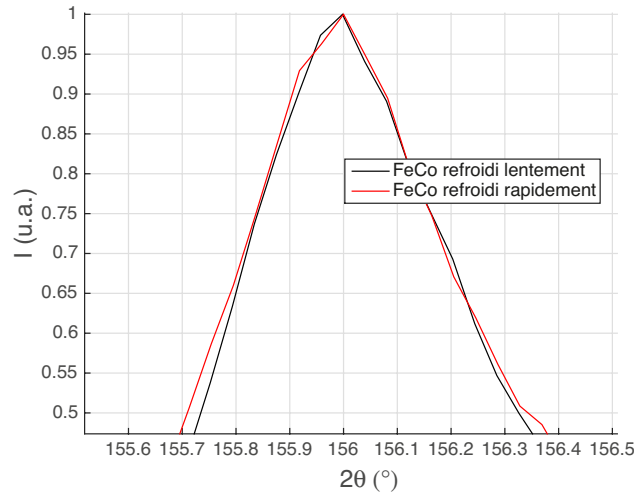


Fig. 3 Zoom de la position relative des pics de diffraction X correspondant au plan $\{211\}$ du fer-cobalt pour les deux vitesses de refroidissement

3. Evaluation des contraintes résiduelles

L'état mécanique du matériau après refroidissement lent est inconnu. Les hypothèses employées pour l'estimation du niveau des contraintes résiduelles sont les suivantes :

- L'état mécanique est supposé homogène par grain
- Le champ de contrainte dans chaque grain est supposé plan
- L'équilibre mécanique est assuré en supposant une distribution bi-modale des contraintes (les contraintes sont supposées opposées en signe mais de même amplitude d'un grain à l'autre).

Ces hypothèses permettent de réduire les inconnues à une seule valeur d'amplitude.

La déformation du réseau cristallin se traduit par la variation des distances interréticulaires $\Delta d = d - d_0$ (où d_0 est la distance de référence associée à l'angle de référence θ_0) dans la direction normale \vec{n}_{hkl} aux plans considérés. En différenciant la loi de Bragg on obtient l'équation (2).

$$\varepsilon = \frac{d-d_0}{d_0} = -\frac{\Delta\theta}{\tan(\theta_0)} = \vec{n}_{hkl} \cdot \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \vec{n}_{hkl} \quad \text{avec} \quad \vec{n}_{hkl} = \begin{pmatrix} \cos\phi \cdot \sin\psi \\ \sin\phi \cdot \sin\psi \\ \cos\psi \end{pmatrix} \quad (2)$$

On suppose que l'état de contrainte local est biaxial. En considérant un milieu isotrope de module d'Young E et de coefficient de Poisson ν , le tenseur de déformations est défini de la façon suivante :

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \frac{1}{E}\sigma_{xx} - \frac{\nu}{E}\sigma_{yy} & \frac{1+\nu}{E}\sigma_{xy} & 0 \\ \frac{1+\nu}{E}\sigma_{xy} & \frac{1}{E}\sigma_{yy} - \frac{\nu}{E}\sigma_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{-\nu}{E}(\sigma_{xx} + \sigma_{yy}) \end{pmatrix} \quad (3)$$

Les équations (2) et (3) se combinent pour définir la variation angulaire $\Delta\theta$ associée à un état de contrainte équi-biaxial d'amplitude σ pour chaque valeur de ψ selon :

$$\Delta\theta = \frac{\sigma \tan(\theta_0)}{E} (2\nu \sin^2\psi(1 + \nu)) \quad (4)$$

Une fonction Lorentzienne (5) est choisie pour représenter le pic de diffraction. Cette fonction correspond théoriquement à l'intensité diffractée d'un milieu polycristallin présentant une taille de grain distribuée. La largeur à mi-hauteur est fixée à $\Gamma = 0,6145$ et $2\Delta\theta=0$ (on suppose l'échantillon refroidi lentement libre de contraintes) (Fig. 5).

$$L(2\theta) = \frac{\frac{2}{\pi\Gamma}}{1 + \left(\frac{(2\theta - 2\theta_0) - 2\Delta\theta}{\frac{\Gamma}{2}}\right)^2} \quad (5)$$

On peut grâce à cette fonction représenter le pic correspondant à un polycristal isotrope soumis à une amplitude de contrainte σ et le pic correspondant à un polycristal isotrope soumis à une amplitude de contrainte $-\sigma$. Le matériau après trempe peut être considéré comme une juxtaposition des deux polycristaux [ref]. La figure 6 permet de comparer les pics de diffraction moyen obtenus pour une contrainte équi-biaxiale de 0MPa et de 100MPa (en fixant $\phi = 0^\circ$, $\psi = 0^\circ$). La contrainte de ± 100 MPa entraîne un étalement de la corde à mi-hauteur de la fonction Lorentzienne. Il est alors possible, par identification inverse, de remonter à l'état de contrainte σ apparent correspondant au pic expérimental. L'élargissement $\Delta\theta = 0,022 \pm 0,001^\circ$ correspond ainsi à une contrainte $\sigma = \pm (30 \pm 2)$ MPa. Ce niveau de contrainte, bien que paraissant faible, est susceptible d'entraîner de profondes modifications du comportement magnétostrictif [9].

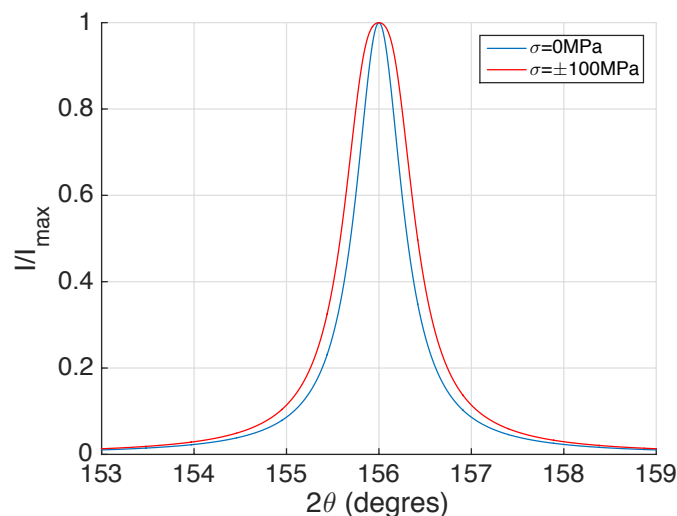


Fig. 4 Simulation du pic moyen $\{211\}$ soumis ou non à un chargement équi-biaxial de ± 100 MPa.

4. Modélisation multidomaine biphase

4.1 Modèle multidomaine

La modélisation proposée utilise un modèle réversible à deux échelles (domaines magnétiques et échelle de grains) introduit dans [10] et utilisé pour modéliser l'influence de la plasticité dans un cadre biphase dans [11]. Dans ce modèle, le comportement d'une phase est censé être décrit par le comportement d'un seul grain, après un choix approprié de la direction de chargement (magnétique et mécanique). Le comportement d'un polycristal isotrope est nécessairement donné par un chargement le

long d'une direction spécifique à l'intérieur du triangle cristallographique standard. Cette direction n'est pas la direction moyenne et peut changer avec le niveau de contrainte ou de champ magnétique compte tenu de la non-linéarité des comportements concernés. Néanmoins il est possible, en première approximation, de considérer qu'un comportement isotrope est approximativement obtenu lorsque le chargement correspond à la direction moyenne \vec{n} du triangle standard. En cas de symétrie cubique, cette direction est définie par des angles sphériques $(\phi, \psi) = (38,81^\circ; 77,54^\circ)$. Un ensemble de 34635 directions également réparties dans la sphère unitaire a été utilisé pour décrire les directions potentielles du domaine de ce grain. A chaque domaine α de direction $\vec{\gamma}_\alpha = \gamma_u \cdot \vec{e}_u$, il existe un vecteur d'aimantation correspondant $\vec{M}_\alpha = M_s \cdot \vec{\gamma}_\alpha$ et un tenseur de magnétostriction ϵ_α^μ défini par l'équation (6).

$$\epsilon_\alpha^\mu = \frac{3}{2} \begin{pmatrix} \lambda_{100}(\gamma_1^2 - \frac{1}{3}) & \lambda_{111}\gamma_1\gamma_2 & \lambda_{111}\gamma_1\gamma_3 \\ \lambda_{111}\gamma_1\gamma_2 & \lambda_{100}(\gamma_2^2 - \frac{1}{3}) & \lambda_{111}\gamma_2\gamma_3 \\ \lambda_{111}\gamma_1\gamma_3 & \lambda_{111}\gamma_2\gamma_3 & \lambda_{100}(\gamma_3^2 - \frac{1}{3}) \end{pmatrix} \quad (6)$$

λ_{100} et λ_{111} sont les constantes de magnétostriction du matériau. Le cristal correspondant au matériau est soumis à un champ magnétique H et à une contrainte σ_{eq} (contrainte scalaire *équivalente* à un chargement mécanique multiaxial) appliqués dans la direction \vec{n} . L'énergie libre d'un domaine magnétique α correspond à la somme de l'énergie magnétostatique, l'énergie magnéto-cristalline et de l'énergie magnétoélastique. Une énergie de configuration utilisant une contrainte fictive de configuration à l'échelle du cristal peut devoir être employée pour tenir compte d'un déséquilibre possible dans la distribution initiale des domaines [6].

La fraction volumique f_α d'un domaine α est calculée en fonction des énergies libres en utilisant la formule (7) dérivée de la fonction de Boltzmann où A_s est un paramètre lié à la susceptibilité initiale de la courbe d'aimantation du matériau considéré.

$$f_\alpha = \frac{\exp(-A_s W_\alpha)}{\int \exp(-A_s W_\alpha) d\alpha} \quad (7)$$

Connaissant la fraction de chaque famille de domaine, il est alors possible de calculer l'aimantation et la déformation moyennes dans la direction du champ appliqué.

4.2 Application au Fe-Co soumis au champ de contrainte résiduel équi-biaxial

Dans le cas qui nous concerne, le matériau est constitué d'une partie en traction et d'une partie en compression. Chacune est vue comme une phase qu'on peut modéliser séparément. Les règles de localisation auto-cohérentes sont utilisées pour le calcul du champ magnétique et de la contrainte à l'échelle de la phase. L'aimantation et la magnétostriction sont estimées à chaque boucle de calcul et introduites dans le schéma auto-cohérent. Le calcul est itéré jusqu'à la convergence des quantités moyennes. Comme indiqué dans les paragraphes précédents, la contrainte introduite dans la modélisation multidomaine doit être une contrainte uniaxiale équivalente. On transforme donc pour le calcul l'état de contrainte équi-biaxial en contrainte équivalente à appliquer sur chaque phase selon :

$$\sigma_{eq} = \frac{3}{2} \vec{\nu} \cdot \mathbf{s} \cdot \vec{\nu} \quad (8)$$

où s est le déviateur des contraintes macroscopiques dans chaque phase et \vec{v} la direction du chargement dans le repère macroscopique. Après calcul, la contrainte équivalente dans chacune des phases vaut ainsi $\pm\sigma/2$.

Le modèle est ensuite appliqué pour la situation sans contrainte résiduelle et avec contrainte résiduelle ($\pm\sigma/2=\pm 15\text{MPa}$), situations correspondant aux refroidissements lent et rapide. La forme d'anisotropie retenue pour la modélisation est une anisotropie uniaxiale d'axe [100] dans le cristal équivalent permettant de retranscrire l'anisotropie induite lors du traitement thermique. L'énergie d'anisotropie s'exprime selon :

$$W_K = K_1 \cdot (1 - \gamma_1^2) \quad (9)$$

Ce choix impose également une modification des angles de chargement. Les constantes du matériau sont regroupées dans le tableau suivant :

K_1	$\lambda_{100} ; \lambda_{111}$	A_s	$\phi ; \psi$	E	ν
800 J/m ³	70 ; 0 ppm	$16 \cdot 10^{-3}$ m ³ /J	52 ; 90 (°)	200 GPa	0,3

Tableau 1 : Constantes utilisées dans le modèle multidomaine

La figure 5 montre les résultats de simulation obtenus (seul le comportement longitudinal dans le sens DL (//) peut être restitué à ce stade par le modèle – réputé isotrope). On constate que l'introduction de la contrainte résiduelle modifie bien le comportement magnétostrictif du matériau en augmentant en particulier sa déformation aux bas niveaux d'induction. Ce résultat peut être expliqué par le fait que le comportement restitué correspond à un comportement moyen de deux polycristaux soumis à deux contraintes opposées mais dont la sensibilité à l'état de contrainte n'est pas symétrique. Même si les ordres de grandeurs sont globalement respectés, on ne parvient pas à restituer les niveaux expérimentaux observés (40ppm par exemple pour le Fe-Co refroidi rapidement). L'utilisation d'un modèle plus complet incluant les effets d'anisotropie (modèle multiéchelle [7]) est nécessaire et sera mis en place prochainement.

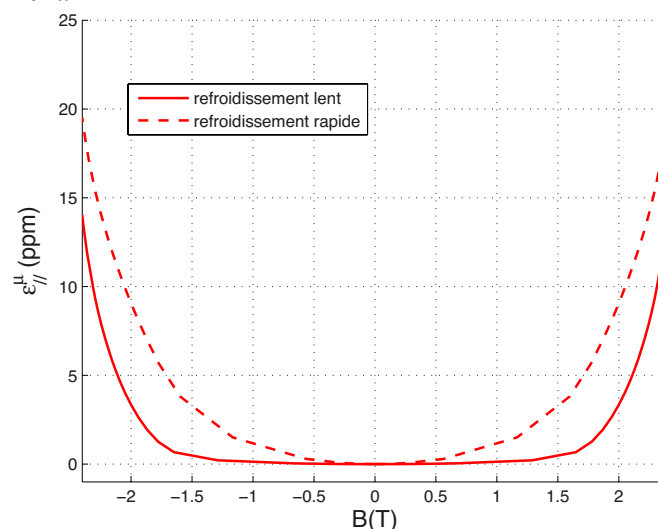


Fig. 5 Résultat de simulation par le modèle multidomaine de l'influence du refroidissement rapide sur le comportement magnétostrictif longitudinal du Fe-Co.

5. Conclusion

L'influence des conditions de refroidissement sur le comportement magnétostrictif a été traité dans ce document. Un refroidissement lent (300°C par heure - refroidissement four coupé) mène à une basse magnétostriction isotrope. Ce comportement magnétostrictif est perdu dès lors que la vitesse de refroidissement est estimée à environ cent fois la vitesse de refroidissement lent (mise en zone froide des échantillons). Ce refroidissement génère des contraintes résiduelles de l'ordre de 30 MPa suffisantes pour dégrader le comportement magnétostrictif. Même si toutefois une amélioration du modèle est nécessaire, celui-ci est en accord avec les résultats expérimentaux.

Bibliographie

- [1] M. Liu, O. Hubert, X. Mininger, IEEE Transactions on Magnetics. Vol. 52 (2) (2016) 1-12.
- [2] L. Hirsinger, L. Billardon, J. Magn. Magn. Mater. Vol. 140 (2002) 2199- ?.
- [3] A. Hubert, R. Schäfer, Magnetic domains: the analysis of magnetic microstructures. Springer Science & Business Media (1998).
- [4] C. Gourdin, Thèse de doctorat, Université Paris 6 (1998)
- [5] V. Ji, Habilitation à Diriger des Recherches, Université de Lille (2004).
- [6] O. Hubert, L. Daniel, J. Magn. Magn. Mater. Vol 320 (20) (2008) 1412-1422.
- [7] L. Daniel, O. Hubert, N. Buiron, R. Billardon, J. of the Mechanics and Physics of Solids. Vol. 56 (2008) 1018-1042.
- [8] E. Hug, O. Hubert, J.J. Van Houtte, Materials Science and Engineering A, Vol. 332 (2002) 193-202.
- [9] N. Leuning, S. Steentjes, M. Schulte, W. Bleck, J. Magn. Magn. Mater. Vol. 417 (2016) 42-48.
- [10] C. Bormio-Nunes, O. Hubert, J. Magn. Magn. Mater. Vol. 393 (11) (2015) 404-418.
- [11] O. Hubert, S. Lazreg, J. Magn. Magn. Mater, Vol. 424 (2) (2017) 421-442.