

5eme Journée de Caractérisation Micro-onde et Matériaux

13 au 15 mai 1998

Le Touquet

PROPRIETES HYPERFREQUENCES DE MATERIAUX COMPOSITES A BASE DE POUDRES DE FERRITES DOUX

A. Chevalier, J.L. Mattei, M. Le Floc'h.

*Laboratoire d'Electronique et des Systèmes de Télécommunications, (UMR CNRS 6616)
BP 809, 6 av. Le Gorgeu 29285 Brest Cedex téléphone : 02 98 01 62 91 Fax : 02 98 01 63 95
E-Mail : Alexis.Chevalier@lest-gw.univ-brest.fr*

1. INTRODUCTION

Les matériaux magnétiques trouvent de nombreuses applications dans les dispositifs hyperfréquences. Longtemps utilisés sous formes de céramiques massives, de nouveaux besoins en furtivité radar ou en télécommunications ont développé leur emploi sous forme dispersée. Les propriétés magnétiques de ces matériaux composites sont très différentes de celles des matériaux denses, et nous présentons ici les principaux comportements observés. L'étude s'est portée sur des composites à base de poudres de ferrites doux tels que le Grenat d'Yttrium, le ferrite de Nickel et les ferrites de Nickel Zinc. Les propriétés de ces matériaux à l'état massif sont bien connues et leur caractère isolant permet de s'affranchir de l'influence des courants induits.

Les matériaux composites sont obtenus en dispersant les poudres magnétiques dans une poudre non magnétique (résine époxy), puis en compactant le mélange à température ambiante. Les échantillons sont de forme torique et leur concentration volumique en matière magnétique s'étend de 0 à 70 %. Nous présentons l'influence de la concentration sur les propriétés magnétiques des matériaux composites grâce à la mesure de la perméabilité en champ faible, du régime statique jusqu'aux hyperfréquences. Les différents comportements observés expérimentalement sont bien décrits par un modèle théorique basé sur une théorie du milieu effectif.

2. MODELE THEORIQUE

Parmi les nombreuses lois de mélange développées [1], celles basées sur la théorie du milieu effectif semblent être les mieux adaptées pour décrire les propriétés électromagnétiques de la matière sous forme dispersée. En utilisant une théorie de champ moyen, nous avons établi une formulation analytique scalaire [2] reliant la susceptibilité magnétique χ d'un matériau composite isotrope à sa concentration C en matière magnétique :

$$(1 - N) \chi^2 + [1 + (N - C) \chi_i] \chi - C \chi_i = 0 \quad (1)$$

Dans cette expression χ_i représente la susceptibilité intrinsèque de la poudre magnétique qui, dans certaines conditions, ne dépend que de la composition chimique. Plusieurs travaux antérieurs [3,4] ont permis, en effet, de vérifier le caractère intrinsèque de χ_i , mais aussi de montrer son lien avec la susceptibilité rotationnelle.

L'aspect hétérogène de la matière (effets démagnétisants) est pris en compte à travers un "coefficient effectif de forme" N directement relié à la forme des particules. L'évaluation de ce coefficient dans le cas des matériaux réels n'est pas simple. A partir d'une analyse sur un mélange idéal constitué d'ellipsoïdes identiques il est cependant possible de trouver une relation analytique de la variation de N .

Soient N_x , N_y et N_z les coefficients démagnétisants des ellipsoïdes. Le caractère isotrope du milieu est pris en compte au travers d'une moyenne arithmétique des champs internes dans les trois directions de l'espace. Dans le cas simple d'ellipsoïdes de révolution [5], caractérisées par un seul coefficient N_z , le calcul conduit à l'expression suivante du coefficient effectif de forme :

$$N = \frac{2\delta + 3N_z(1 - N_z)}{6\delta + 3N_z + 1} \quad (2)$$

Où $\delta = (\chi_i + 1) / (\chi_i - \chi)$ est appelé le facteur de contraste.

Il apparaît donc que le coefficient effectif de forme N dépend, non seulement du coefficient de forme N_z des particules, mais aussi de la concentration C en matière magnétique du mélange.

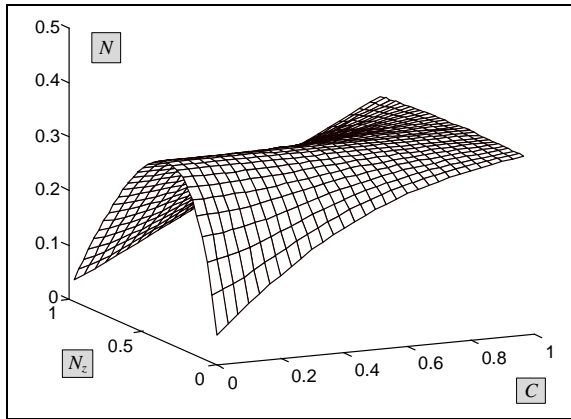


Figure 1: variation du coefficient effectif de forme N en fonction de la concentration en matière magnétique C et de la forme N_z des particules pour $\chi_i=20$

La résolution du système formé par les équations (1) et (2) donne les solutions du coefficient N , représentées sur la figure 1, en fonction de la forme des particules (N_z) et de la concentration (C).

Dans le cas d'un mélange de particules sphériques distinctes pour lesquelles $N_z=1/3$, le coefficient effectif N est constant et égal à $1/3$ quelle que soit la concentration.

Cependant, dans le cas de particules non sphériques $N_z \neq 1/3$ réparties aléatoirement, on constate que la valeur du coefficient effectif N est inférieur à $1/3$.

Ce résultat important a été vérifié expérimentalement aux faibles concentrations dans le cas de particules allongées [6].

La figure 1 montre que le coefficient effectif de forme est d'autant plus faible que l'on s'éloigne d'une forme sphérique de particule. Cette situation s'applique au cas des matériaux réels. En effet les grains de poudre ont tendance à s'agglomérer pour former, par exemple, des chapelets que l'on pourra assimiler à des particules allongées.

3. COMPARAISON EXPERIENCE THEORIE

La perméabilité complexe des échantillons composites a été mesurée dans le domaine basse fréquence (10kHz-100MHz) par une méthode du transformateur coaxial et dans le domaine hyperfréquence (50MHz-18GHz) par une méthode en ligne coaxiale APC7.

Les résultats de mesure en basse fréquence (figure 2 a-b-c) montrent que la susceptibilité statique des matériaux composites est nettement inférieure à celle observée dans les matériaux denses. Même si les grains de poudres sont multidomains (diamètre de 0.1 à 100 μ m) il semble que les parois, du fait de leur mobilité très réduite, ne contribuent pas à l'aimantation. Ainsi la susceptibilité intrinsèque, déduite de la confrontation du modèle (équation 1) avec les points expérimentaux, conduit à une valeur proche de la susceptibilité rotationnelle pour les compositions étudiées [7,8]. Le modèle développé permet de rendre compte, de façon très satisfaisante, de l'évolution de la susceptibilité statique des matériaux composites en fonction de la concentration en matière magnétique.

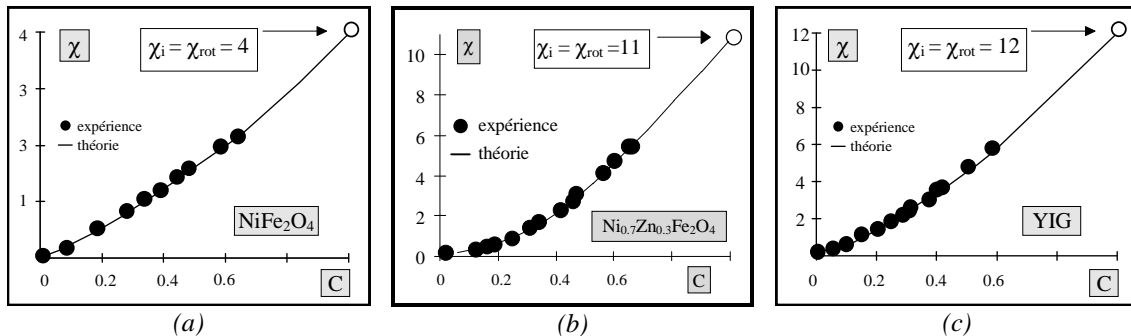


figure 2: variation de la susceptibilité statique en fonction de la concentration. La susceptibilité intrinsèque déterminée expérimentalement est égale à la susceptibilité rotationnelle.

Les figures 3-a et 3-b montrent les spectres fréquentiels expérimentaux de la susceptibilité magnétique complexe ($\chi' - j\chi''$) pour plusieurs concentrations en matière magnétique. Les faibles valeurs

de la susceptibilité et l'observation d'une seule zone de pertes dans les hautes fréquences confirment le caractère exclusivement rotationnel du processus d'aimantation.

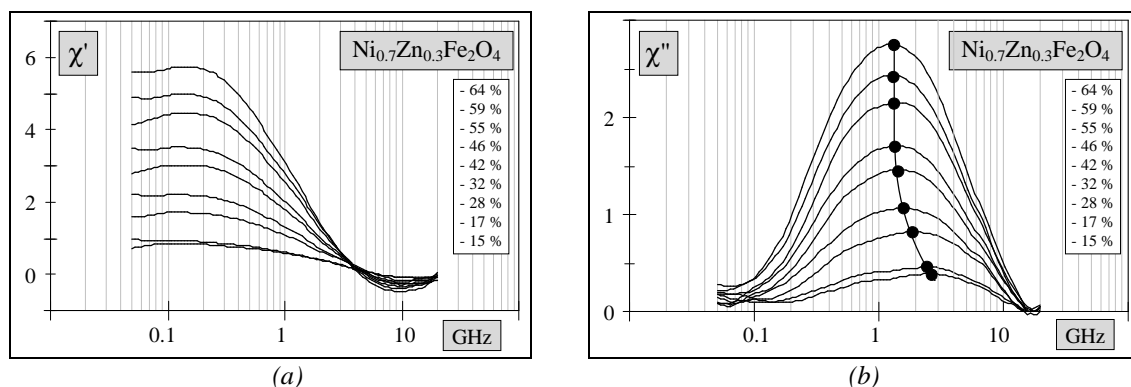


figure 3 : variation expérimentale de la susceptibilité réelle et imaginaire en fonction de la concentration pour des composites à base de ferrite de Nickel Zinc ($Ni_{0.7}Zn_{0.3}Fe_2O_4$)

L'effet de la dilution ne se limite pas à une décroissance de l'amplitude de la susceptibilité mais montre un décalage significatif de la fréquence de résonance (maximum de χ'') aux basses concentrations. Ce décalage, souvent observé dans les matériaux dispersés [9], n'intervient qu'en dessous d'une concentration seuil voisine de 30%. L'extension de l'équation (1) au plan complexe permet de décrire le comportement dynamique de la susceptibilité et montre l'aptitude du modèle à prédire cette augmentation de la fréquence de résonance [3,10].

La concordance entre les variations expérimentale et théorique de la fréquence de résonance en fonction de la concentration est reportée sur les figures 4-a et 4-b pour des composites à base de YIG et de ferrite de Nickel. On y distingue clairement la concentration seuil C_p en dessus de laquelle la fréquence de résonance commence à augmenter. Au-dessus de C_p la fréquence de résonance est constante et égale à la fréquence de résonance naturelle de spin telle qu'on l'observe dans les matériaux denses. Les valeurs expérimentales trouvées (400 MHz pour le YIG et 1850 MHz pour la ferrite de Nickel) coïncident avec celle de la littérature [11].

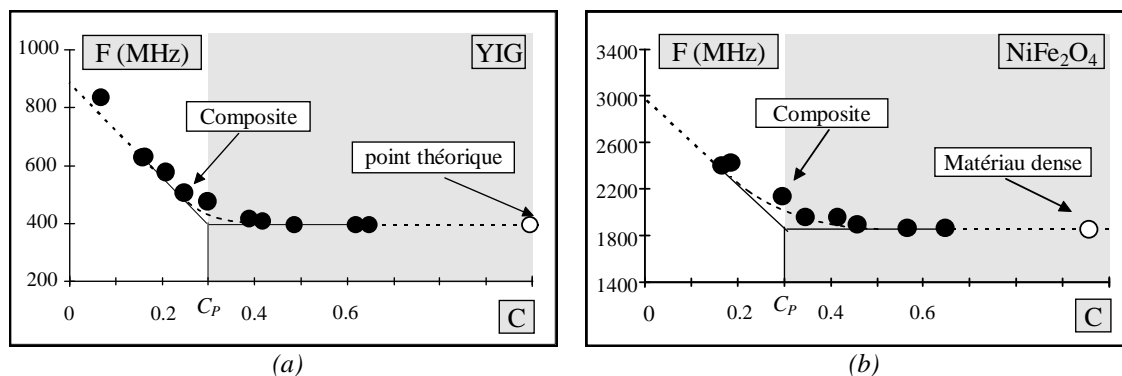


figure 4 : variation de la fréquence de gyrorésonance en fonction de la concentration. Mise en évidence de la concentration seuil C_p . Les points (\bullet) sont les résultats expérimentaux (maximum de χ''), les lignes brisées (---) représentent la variation théorique issue de l'équation (1).

Le modèle théorique permet de remonter au spectre fréquentiel de la susceptibilité intrinsèque χ_i ; celle-ci correspond à la susceptibilité d'un matériau composite de "concentration unité". En inversant l'équation 1 l'expression de la susceptibilité intrinsèque χ_i s'écrit :

$$\chi_i = \frac{[(1-N)\chi + 1]\chi}{C - (N-C)\chi} \quad (3)$$

Les figures 5-a et 5-b présentent les courbes réduites de la susceptibilité intrinsèque, obtenues dans le cas des résultats expérimentaux de la figure 3.

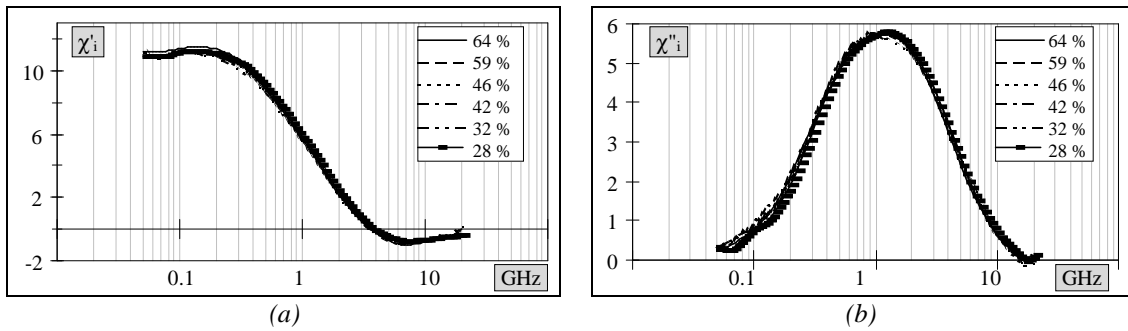


figure 5: susceptibilité intrinsèque réelle (a) et imaginaire (b) des composites à base de ferrite de Nickel Zinc ($Ni_{0.7}Zn_{0.3}Fe_2O_4$)

Les spectres pour les différentes concentrations se superposent parfaitement et donnent l'allure de la susceptibilité intrinsèque dynamique de la poudre magnétique.

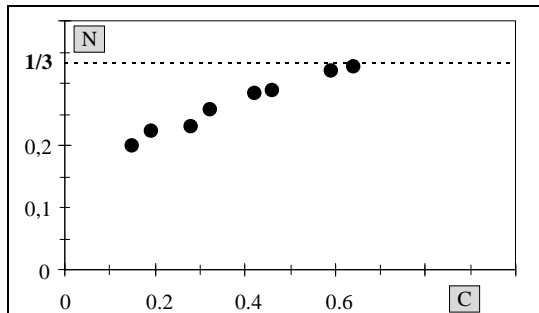


figure 6 : coefficient effectif de forme

Le profil du coefficient effectif de forme N , injecté dans l'équation 3 pour obtenir les courbes réduites, est présenté sur la figure 6. Aux fortes concentrations ($C > 55\%$) le coefficient N est proche de $1/3$ puis décroît lorsque la concentration diminue.

Cette variation en fonction de la concentration est en parfait accord avec les résultats théoriques de la figure 1. Le composite se comporte comme un mélange de particules non sphériques, traduisant de la sorte la présence d'agglomérats.

4. CONCLUSION

Nous disposons d'un modèle capable de prédire l'évolution statique et dynamique de la susceptibilité magnétique des matériaux composites isotropes en fonction de la concentration. Ce modèle simple s'appuie sur deux paramètres scalaires. Le premier est la susceptibilité intrinsèque χ_i qui ne dépend que de la composition chimique de la poudre utilisée et dont la valeur se rapproche de celle de la susceptibilité rotationnelle. Le second est le coefficient effectif de forme N , rendant compte de l'aspect hétérogène de la matière et des effets démagnétisants; sa valeur est inférieure à $1/3$ et dépend de la concentration en matière magnétique.

- [1] Progress in Electromagnetics Research 6 (ed. A. Priou - Elsevier N.Y. 1992).
- [2] M. Le Floch, J.L. Mattei, P. Laurent, O. Minot, A.M. Konn, J. of M. M. M., **140-144** (1995) 2191
- [3] P. Laurent, Thèse de doctorat, Université de Brest, France (1994)
- [4] P. Le Fur, A.M. Konn, P. Laurent, M. Le Floch, F. Le Floch, P. Binon, J. de Phys. IV France 7 (1997) C1-545
- [5] M. Le Floch, A. Chevalier, J.L. Mattei, (présentée à SMM13, Grenoble sept. 1997), à paraître dans J. de Phys. IV
- [6] J.L. Mattei, P. Laurent, A. Chevalier, M. Le Floch, J. de Phys. IV France 7 (1997) C1-547
- [7] A. Globus, P. Duplex, C.R. Acad. Sc., **262** (1966) 1188-1191
- [8] A. Globus, P. Duplex, M. Guyot, IEEE Trans. On Magn., **MAG-7** (1971) 617-622
- [9] A. Berthault, D. Rousselle, P.G. Zerah, J. of Magn. Magn. Mat., **112** (1992) 477
- [10] P. Laurent, A. Chevalier, P. Talbot, M. Le Floch, JCMM Chambéry (1996) 255
- [11] A. Globus, J. de Phys. France, 38 (1977) C1-1 C1-15