

# Influence des contraintes de matriçage sur la fréquence de gyrorésonance dans les matériaux composites à base de ferrites doux

Alexis Chevalier, Marcel Le Floc'H

► **To cite this version:**

Alexis Chevalier, Marcel Le Floc'H. Influence des contraintes de matriçage sur la fréquence de gyrorésonance dans les matériaux composites à base de ferrites doux. JCOMM 1998: 5èmes Journées de Caractérisation Microonde et Matériaux, May 1998, Le Touquet, France. 1998. <hal-00802237>

**HAL Id: hal-00802237**

**<http://hal.univ-brest.fr/hal-00802237>**

Submitted on 19 Mar 2013

**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.

# 5eme Journée de Caractérisation Micro-onde et Matériaux

13 au 15 mai 1998

Le Touquet

## INFLUENCE DES CONTRAINTES DE MATRICAGE SUR LA FREQUENCE DE GYRORESONANCE DANS LES MATERIAUX COMPOSITES A BASE DE FERRITES DOUX

*A. Chevalier, M. Le Floch.*

*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 composites sont fabriqués par mélange de poudres magnétiques et non magnétiques, dont la concentration volumique en matière magnétique varie de 0 à 60%. Pour obtenir des fortes concentrations (>60%) il est nécessaire d'appliquer des fortes pressions de matriçage, il faut alors se méfier des effets magnétoélastiques introduit par le processus de fabrication.

Le traitement thermique est un bon moyen pour réduire les contraintes d'origine technologiques. Ainsi, dans le cas des matériaux denses l'opération de frittage, associé à un refroidissement lent, assure la relaxation des tensions au niveau des grains. En revanche, le traitement thermique n'est pas possible sur des échantillons simplement matriçés, cela à cause des liants organiques constituant le milieu hôte qui seraient endommagés ou encore à cause des variations dimensionnelles qui peuvent en découler.

Il est bien connu que les contraintes résiduelles peuvent masquer les propriétés magnétiques intrinsèques en introduisant un terme supplémentaire d'anisotropie. En particulier, la mesure de la fréquence de résonance de spin, dans les matériaux sensibles à la magnétostriction, ne permet plus d'avoir accès à la valeur intrinsèque du champ effectif d'anisotropie.

Nous présentons dans ce travail une étude de l'effet des contraintes, induites par le processus de compactage des matériaux composites à base de ferrite de Nickel-Zinc, sur la fréquence de résonances de spin. Les résultats obtenus montrent comment l'emploi de poudres permet la détermination du champ effectif d'anisotropie en présence de contraintes internes incontrôlées.

### 2. MISE EN EVIDENCE EXPERIMENTALE

Plusieurs travaux du laboratoire [1,2] ont montré que les propriétés dynamiques des composites sont bien décrites par une loi issue d'une théorie de champ moyen (1), dans laquelle deux paramètres interviennent. Le premier noté  $\chi_i$  est la susceptibilité intrinsèque qui ne dépend que de la composition chimique de la poudre magnétique utilisée. Le second paramètre est le "coefficient effectif de forme" N qui rend compte de l'aspect hétérogène (effets démagnétisants) de la matière dispersée.

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

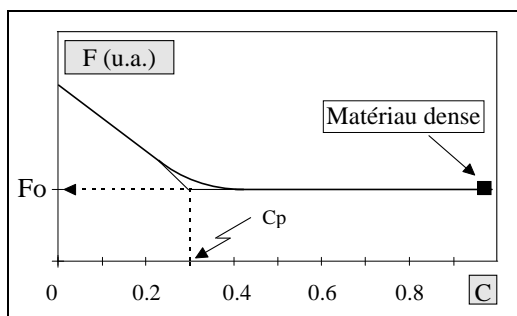


figure 1 : variation théorique de la fréquence de résonance de spin en fonction de la concentration.

De nombreux résultats expérimentaux [2,3] indiquent que la variation de la fréquence de gyrorésonance des composites en fonction de la concentration est du type de celle représentée sur la figure 1.

Au-dessous d'une concentration seuil  $C_p$  voisine de 30%, la fréquence de résonance augmente lorsque la concentration diminue.

Au-dessus de  $C_p$ , la fréquence de résonance est constante et sa valeur est égale à la fréquence de résonance naturelle de spin observée dans les matériaux denses.

La figure 2 présente les variations expérimentales de la fréquence de résonance en fonction du taux de charge pour des composites à base de ferrite de Nickel-Zinc ( $Ni_{1-\delta}Zn_{\delta}Fe_2O_4$ ).

Le comportement général est vérifié pour toutes les compositions : le seuil de concentration  $C_p$  est clairement visible et sa valeur est proche de 30 %. Au-delà la fréquence de résonance est constante.

Cependant pour les compositions  $\delta=0.3$  et  $\delta=0.5$  la fréquence de résonance aux fortes concentrations tend vers une valeur supérieure à celle observée dans les matériaux denses.

Nous allons montrer que les contraintes résiduelles, issues du processus de fabrication, sont responsables d'anisotropies induites à l'origine de la différence  $\Delta F$  observée dans ces deux cas.

Dans le cas du ferrite de Nickel pur ( $\delta=0$ ), nous retrouvons directement la valeur de fréquence de résonance que l'on mesure dans les matériaux frittés. Pour cette composition, l'effet des contraintes résiduelles semble donc négligeable devant la valeur plutôt grande ( $H_K \cong 50$  kA/m) de l'anisotropie magnétocristalline.

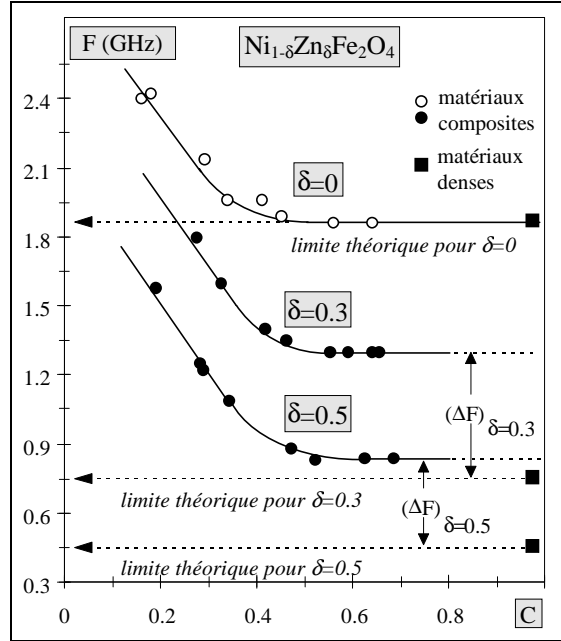


figure 2 : confirmation expérimentale de la variation théorique de la figure 1, avec cependant une différence dans les valeurs de la fréquence due à la présence de contraintes résiduelles.

Pour évaluer l'importance de l'effet des contraintes résiduelles sur les propriétés magnétiques, nous avons choisi une approche expérimentale qui consiste à introduire des contraintes supplémentaires en appliquant une pression de compactage croissante. Nous avons ainsi étudié la variation de la fréquence de résonance, en mesurant la susceptibilité hyperfréquence ( $\chi'-j\chi''$ ), sur des séries d'échantillons compactés par pressage uniaxial entre 15 et 150 MPa. La concentration des échantillons a été choisie supérieure à  $C_p$  pour s'affranchir de l'effet du taux de charge sur la fréquence de résonance.

### 3. DEVELOPPEMENT THEORIQUE

La répartition des contraintes locale au niveau des grains n'est pas accessible. Cependant on peut penser qu'il existe toujours une direction de facile aimantation qui coïncide avec la direction de la contrainte locale. L'effet de la contrainte se traduit alors par l'introduction d'un terme supplémentaire d'anisotropie dans l'énergie magnétique du système [4]. Celle-ci s'écrit comme la somme de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline et de l'énergie magnétoélastique :

$$E = (K_a + 3/2 \lambda_s \sigma) \sin^2 \varphi \quad (2)$$

Où  $\lambda_s$  est le coefficient de magnétostriction à saturation et  $\sigma$  l'intensité de la contrainte locale. Le champ effectif d'anisotropie conduisant à la même valeur d'énergie s'écrit dans le cas des ferrites étudiés (axe facile [111]) :

$$H_{\text{eff}} = \frac{4 (K_a + 3/2 \lambda_s \sigma)}{3 \mu_0 M_s} \quad (3)$$

La fréquence de gyrorésonance est liée au champ effectif d'anisotropie par la relation de Larmor et s'écrit :

$$F_r = F_o + \frac{2\gamma}{\mu_0} \left( \frac{\lambda_s}{M_s} \right) \sigma \quad (4)$$

Où  $\gamma = 35,12 \cdot 10^{-3}$  MHz / A.m<sup>-1</sup> est le rapport gyromagnétique. La fréquence de résonance apparaît comme une fonction linéaire de l'intensité des contraintes. La pente de cette droite est proportionnelle au rapport  $\lambda_s / M_s$ , et l'ordonnée à l'origine est égale à la fréquence de résonance naturelle de spin  $F_o$ .

Cependant l'intensité des contraintes vues par les grains n'est pas celle appliquée sur l'échantillon. Les grains ne remplissent pas tout l'espace (porosité élevée), et leurs surfaces de contacts sont complexes et probablement très réduites. Pour tenir compte de cela, on modifie la relation (4) en introduisant un coefficient  $\alpha$  de proportionnalité entre la pression de compactage et les contraintes locales au niveau des grains:

$$F_r = F_0 + \alpha \frac{2\gamma}{\mu_0} \left( \frac{\lambda_s}{M_s} \right) \sigma \quad (5)$$

Le coefficient  $\alpha$  dépend directement des propriétés mécaniques de la poudre, comme la forme et la taille des grains, et ne sera déterminé que de façon expérimentale.

#### 4. COMPARAISON THEORIE EXPERIENCE

Les figures 3 (a-b-c-d) montrent les variations de la fréquence de résonance en fonction de la pression de matriçage sur des échantillons composites de concentration supérieures à 50%. L'allure est identique pour chacune des compositions et deux zones de comportement se distinguent.

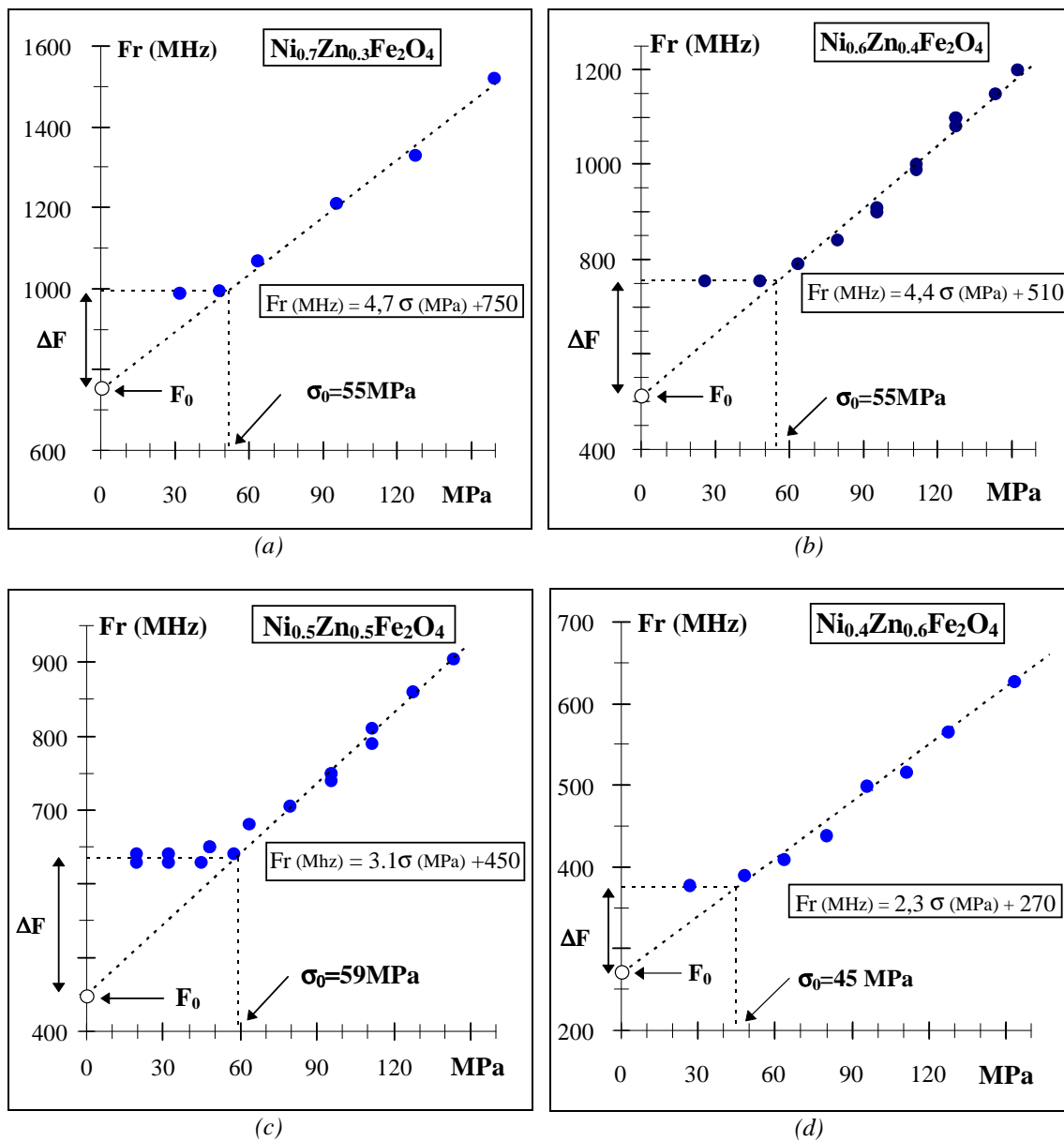


figure 3 : variation de la fréquence de résonance en fonction de la pression appliquée lors du matriçage pour des compositions de ferrites de Nickel-Zinc.  $\sigma_0$  est le seuil de contrainte appliquée à partir duquel la fréquence commence à augmenter.  $\Delta F$  mesure l'écart de fréquence due aux contraintes internes initiales.

La première zone correspond à des pressions inférieures à 60 MPa, la fréquence de résonance y est constante mais supérieure aux valeurs habituellement observées dans les matériaux denses. Cet écart peut s'expliquer par la présence de contraintes résiduelles initiales dans les poudres de ferrites avant le compactage.

La deuxième zone, correspondant à des pressions supérieures à 60 MPa, fait apparaître une variation linéaire de la fréquence de résonance en fonction de la pression de matriçage. Cette variation linéaire permet de justifier, a posteriori, l'hypothèse de proportionnalité (coefficient  $\alpha$ ) entre la pression de matriçage et les contraintes induites au niveau des grains.

On peut estimer le coefficient  $\alpha$  en comparant la valeur de la pente théorique  $a_{th}$  donnée par la relation 4, à la valeur expérimentale  $a_{exp}$  donnée par la relation 5 ( $\alpha$  satisfaisant à la relation  $a_{exp} = \alpha a_{th}$ ). Le tableau 1 regroupe les résultats obtenus pour les différentes compositions.

Tableau 1 : détermination de  $\alpha$

$Ni_{\delta}Zn_{(1-\delta)}Fe_2O_4$	$M_s$ (kA/m)	$-\lambda_s$ ( $10^{-6}$ )	$a_{th}$ ( $10^{-7}$ ) (MHz/Pa)	$a_{exp}$ ( $10^{-7}$ ) (MHz/Pa)	$\alpha$
$\delta=0.4$	345	6.5	10.5	23.6	2.2
$\delta=0.5$	410	11	15	31.8	2.1
$\delta=0.6$	415	15	20	44.9	2.2
$\delta=0.7$	410	18	24.5	47.8	1.9

La variation de la pente expérimentale en fonction du rapport  $\lambda_s / M_s$  est bien vérifiée et la valeur du coefficient  $\alpha$  est identique pour toutes les compositions.

Au-delà d'une valeur seuil  $\sigma_0$  (voisine de 60 MPa), la variation linéaire de la fréquence, comme le prévoit la relation 5, permet de vérifier de façon remarquable, que l'extrapolation de la droite à contrainte nulle redonne la valeur de fréquence  $F_0$  observée dans les matériaux denses.

Ce résultat important semble assez général pour en retirer une méthode de détermination du champ effectif d'anisotropie dans les matériaux composites, pourvu qu'ils présentent une sensibilité suffisante aux effets magnétoélastiques.

## 5. CONCLUSION

La fréquence de résonance dans les matériaux composites à base de poudre magnétique tend vers la fréquence de résonance naturelle de spin pour des concentrations bien inférieures à l'unité. Nous avons montré comment une méthode simple permet de s'affranchir des contraintes d'origine technologique, souvent incontrôlées dans les matériaux sensibles aux effets magnétoélastiques. Cette méthode permet de remonter à la fréquence de résonance naturelle de spin et ainsi de déterminer le champ effectif d'anisotropie.

[1] P. Laurent, A. Chevalier, Ph. Talbot, M. Le Floch'h, 4<sup>èmes</sup> J.C.M.M., Chambéry, Avril 1996.

[2] A. Chevalier, F. Le Floch'h, J.L. Mattei, Ph. Talbot, M. Le Floch'h, (présentée à SMM13, Grenoble sept. 1997), à paraître dans J. de Physique IV.

[3] A. Chevalier, J.L. Mattei, M. Le Floch'h, 5<sup>èmes</sup> J.C.M.M., Le Touquet, mai 1998

[4] J. Smit et H.P.J. Wijn, Les ferrites (ed. Dunod, Bibliothèque Technique Philips, 1961) p. 62