



HAL
open science

ETUDE DE L'ÉVOLUTION STRUCTURALE D'UN VERRE MÉTALLIQUE $\text{Fe}_{83}\text{B}_{14}\text{Si}_{1,5}\text{C}_{1,5}$ EN RELATION AVEC L'EFFET MAGNÉTOÉLASTIQUE ET L'AMORTISSEMENT MAGNÉTOMÉCANIQUE

F. Guyot, F. Fouquet, J. Perez

► **To cite this version:**

F. Guyot, F. Fouquet, J. Perez. ETUDE DE L'ÉVOLUTION STRUCTURALE D'UN VERRE MÉTALLIQUE $\text{Fe}_{83}\text{B}_{14}\text{Si}_{1,5}\text{C}_{1,5}$ EN RELATION AVEC L'EFFET MAGNÉTOÉLASTIQUE ET L'AMORTISSEMENT MAGNÉTOMÉCANIQUE. Journal de Physique Colloques, 1983, 44 (C9), pp.C9-139-C9-144. 10.1051/jphyscol:1983916 . jpa-00223362

HAL Id: jpa-00223362

<https://hal.science/jpa-00223362>

Submitted on 4 Feb 2008

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.

ETUDE DE L'ÉVOLUTION STRUCTURALE D'UN VERRE MÉTALLIQUE

Fe₈₃ B₁₄ Si_{1,5} C_{1,5} EN RELATION AVEC L'EFFET MAGNÉTOÉLASTIQUE ET L'AMORTISSEMENT MAGNÉTOMÉCANIQUE

F. Guyot, F. Fouquet et J. Perez

*Groupe d'Etudes de Métallurgie Physique et de Physique des Matériaux
(LA 341), INSA de Lyon, Bât. 502, 20, Avenue A. Einstein,
69621 Villeurbanne Cedex, France*

Résumé - Les variations de l'effet ΔE et de l'amortissement magnétomécanique associées à l'évolution structurale d'un verre métallique ferromagnétique Fe-B-Si-C ont été étudiées. L'effet ΔE négligeable dans l'état brut d'hypertrempe devient très important après relaxation structurale de l'alliage puis disparaît dès l'amorce de la cristallisation.

Abstract - The ΔE effect and magnetomechanical damping variations associated with the structural evolution of a Fe-B-Si-C ferromagnetic metallic glass have been studied. The ΔE effect negligible in the as-quenched state becomes very important after structural relaxation and then disappears from the onset of the crystallization.

I - INTRODUCTION

Des mesures de pouvoir thermoélectrique ainsi que des expériences de diffraction et de diffusion aux petits angles des rayons X nous avaient permis de mettre en évidence les différentes étapes de l'évolution structurale d'un verre Fe₈₃ B₁₄ Si_{1,5} C_{1,5} hypertrempe depuis l'état liquide /1/ : (i) relaxation structurale en phase vitreuse avec distinction de deux processus (mise en ordre topologique puis mise en ordre chimique avec ségrégation des métalloïdes) ; (ii) cristallisation primaire de fer α ; (iii) dévitrification de la phase amorphe restante avec cristallisation concomitante de la phase stable de type Fe₂B et des phases métastables de type 0 - Fe₃ B et t - Fe₃ B qui tendent à se décomposer par la suite en Fe - α + Fe₂ B.

Les techniques de mesure de module d'Young et de frottement intérieur n'ont été, à ce jour, que très peu utilisées pour l'étude des verres métalliques /2 - 6/ ; elles sont pourtant susceptibles d'apporter des informations au niveau de la relaxation structurale notamment pour les verres ferromagnétiques par l'intermédiaire du couplage magnétoélastique.

Notre objectif au cours de ce travail a donc été d'étudier les variations du module élastique et du frottement intérieur du verre métallique ferromagnétique Fe₈₃ B₁₄ Si_{1,5} C_{1,5} en liaison avec nos résultats antérieurs sur l'évolution structurale de ce verre /1, 7/.

II - METHODE EXPERIMENTALE

Les mesures de module d'Young et de frottement intérieur ont été réalisées par la méthode de la lame vibrante, l'échantillon étant encastré à une extrémité et libre à l'autre. L'excitation et la détection du mouvement se font par voie électrostatique. Le système fonctionnant en boucle fermée, l'éprouvette vibre sur un mode propre avec une amplitude maintenue constante ($\approx 2 \cdot 10^{-6}$). Le frottement intérieur est obtenu à partir du décretement logarithmique mesuré en décroissance libre après coupure de l'excitation. Les dimensions des échantillons sont 0,03 x 1,1 x 12 mm³, la fréquence de vibration est alors de 150 Hz pour le mode fondamental et de 800 Hz pour le premier harmonique pour un échantillon brut d'hypertrempe. Les mesures sont réalisables entre - 196 et + 430°C sous un vide de 10⁻³ Torr.

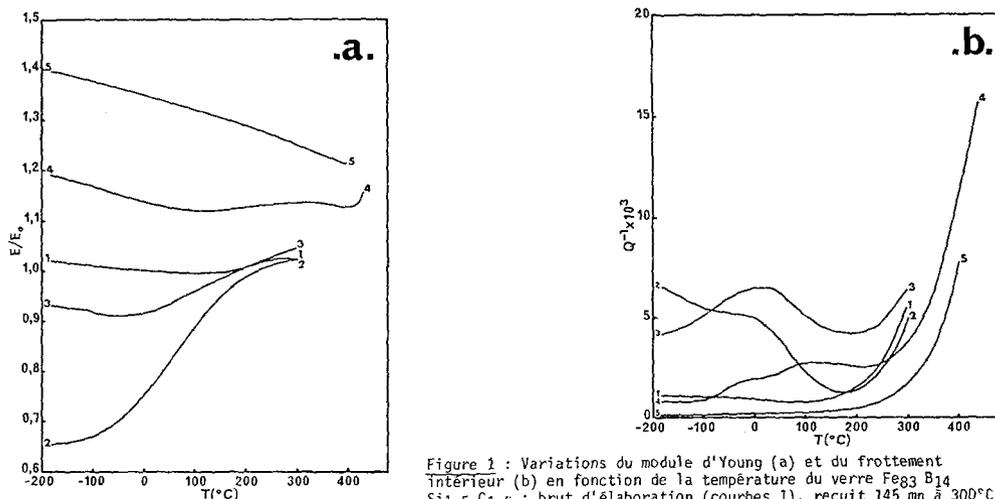


Figure 1 : Variations du module d'Young (a) et du frottement intérieur (b) en fonction de la température du verre $Fe_{83}B_{14}Si_{1.5}C_{1.5}$: brut d'élaboration (courbes 1), recuit 145 mn à $300^{\circ}C$ (courbes 2), après chauffage à $400^{\circ}C$ (courbes 3), $410^{\circ}C$ (courbes 4) et $420^{\circ}C$ (courbes 5) - E_0 valeur du module à $20^{\circ}C$ pour l'échantillon brut d'hypertrempe.

III - VARIATIONS DU FROTTEMENT INTERIEUR ET DU MODULE D'YOUNG EN FONCTION DE LA TEMPERATURE POUR DIFFERENTS ETATS STRUCTURAUX

Les résultats sont représentés par les courbes des figures 1a et 1b. L'échantillon brut d'hypertrempe (courbes 1) présente une faible diminution du module d'Young et du frottement intérieur quand la température augmente depuis $-196^{\circ}C$ jusqu'à $100^{\circ}C$; on peut donc penser qu'un effet magnéto-élastique existe, son amplitude restant toutefois faible.

Les courbes 2 correspondent à un échantillon relaxé structurellement à $300^{\circ}C$ mais toujours dans un état parfaitement vitreux. On constate alors par rapport aux courbes 1 une diminution de E de l'ordre de 35 % à $-196^{\circ}C$, le module augmentant en outre fortement et le frottement intérieur diminuant (jusqu'à $200^{\circ}C$) quand la température augmente. Ce comportement traduit l'existence d'un effet magnéto-élastique ΔE et d'un amortissement magnéto-mécanique d'autant plus importants que la température est basse.

Les courbes 3 se rapportent à un échantillon dans lequel la cristallisation primaire de fer α a été faiblement amorcée. On observe alors que le module présente un minimum et le frottement intérieur un maximum aux environs de $0^{\circ}C$, la valeur de E à $-196^{\circ}C$ ayant fortement augmentée par rapport au cas précédent.

Les courbes 4 et 5 correspondent à une cristallisation primaire de fer α croissante mais n'affectant globalement qu'un faible volume de l'échantillon si l'on s'en réfère à la diffraction X. On constate une augmentation progressive et importante du module, la valeur de E à $-196^{\circ}C$ atteignant pour la courbe 5 le double de celle mesurée pour la courbe 2 ; parallèlement le frottement intérieur diminue. Le minimum de module et le maximum de frottement intérieur observés sur les courbes 3, apparaissent encore sur les courbes 4 mais beaucoup moins marqués et décalés vers les hautes températures ; ils disparaissent par contre complètement sur les courbes 5.

Il est à noter que si l'on poursuit les traitements thermiques jusqu'à dévitrification totale de l'alliage le module d'Young n'augmente que de quelques pourcents supplémentaires ce qui paraît indiquer qu'une cristallisation très partielle du verre est suffisante pour supprimer à la fois l'effet magnéto-élastique et l'anomalie de module entre états vitreux et cristallin.

IV - INTERPRETATION DES RESULTATS ET ANALYSE DES EFFETS MAGNETO-ELASTIQUES

Nous avons pu constater (figure 1 courbes 2) qu'un recuit à 300°C du verre métallique étudié entraînait une chute importante du module d'Young que nous avons attribué à un effet magnéto-élastique (effet ΔE) ; une mesure du module à la température ambiante en plaçant l'échantillon dans le champ d'un aimant permanent nous a conduit à une valeur de E sensiblement égale à celle de l'échantillon brut confirmant ainsi l'hypothèse de l'effet ΔE .

Dans un verre métallique ferromagnétique, en l'absence d'anisotropie magnétocristalline, le seul obstacle au couplage magnéto-élastique est constitué par les contraintes internes. Ces contraintes sont importantes dans l'état brut d'hypertrempe et l'effet ΔE est négligeable (courbes 1 figure 1). Un recuit à 300°C provoque une relaxation structurale et un relâchement des contraintes internes d'où l'apparition d'un effet ΔE .

L'augmentation continue de cet effet ΔE et de l'amortissement magnéto-mécanique qui l'accompagne lorsqu'on descend en température jusqu'à - 196°C, semble être une caractéristique distinguant les verres métalliques des matériaux cristallins ferromagnétiques tel le nickel. Berry et Pritchett /8/ ont en effet observé la même dépendance en température sur deux verres métalliques Fe-P-C et Fe-Ni-P-B recuits. Cette augmentation continue de l'effet ΔE ne peut être que la conséquence directe de l'absence d'anisotropie magnétocristalline et de l'augmentation de la magnétostriction à saturation lorsque la température décroît. Ceci est en accord avec les études de O'Handley et al /9/ sur la magnétostriction des verres Fe-B. L'apparition de cristaux de fer α au sein de la matrice amorphe jouant le rôle d'ancrages et de centres de contraintes va limiter le couplage magnétoélastique. Le maximum de frottement intérieur observé (courbe 3 fig. 1b) peut alors s'expliquer par un désancrage thermiquement activé des parois de Bloch. Lorsque le nombre et la taille des cristaux de fer α sont suffisants le désancrage devient impossible et l'effet ΔE disparaît.

Comme pour les matériaux cristallins, l'effet ΔE et l'amortissement magnéto-mécanique d'un verre métallique ferromagnétique peuvent avoir trois origines /10/ :

- relaxation par courants de Foucault macroscopiques
- relaxation par courants de Foucault microscopiques
- hystérésis magnéto-mécanique.

Dans l'état désaimanté ou l'état saturé la composante relaxationnelle macroscopique est nulle. Donc, dans notre cas n'interviennent que les deux autres contributions. En outre les processus de relaxation sont indépendants de l'amplitude de la déformation ϵ et dépendent de la fréquence f tandis que la composante hystérétique est indépendante de f et dépend fortement de ϵ s'annulant pour $\epsilon = 0$.

La figure 2 montre les variations de E et que Q^{-1} en fonction de la déformation ϵ_{\max} pour deux fréquences différentes 130 Hz (2a) et 800 Hz (2b). On constate que E et Q^{-1} varient linéairement avec ϵ_{\max} pour $2 \cdot 10^{-6} < \epsilon_{\max} < 10^{-5}$ et qu'à plus basse amplitude ils tendent asymptotiquement vers une limite qui doit correspondre à la suppression de tout phénomène hystérétique. Nos résultats (fig. 1) ayant été obtenus pour $\epsilon_{\max} \approx 2 \cdot 10^{-6}$ la contribution hystérétique ne peut qu'être faible.

La valeur du frottement intérieur mesuré à très faible déformation devrait donc correspondre au processus de relaxation par courants de Foucault microscopiques qui peut être décrit par un spectre de relaxation (g_k, ν_k), ($k = 1, 2, 3, \dots$) /10/.

La première fréquence du spectre étant égale à : $\nu_1 = \frac{10^9 \rho}{2\mu_r d^2}$ avec d dimension moyenne des domaines (en cm), ρ résistivité électrique ($\Omega \cdot \text{cm}$), μ_r perméabilité réversible ($\mu_r = \mu_0$ dans l'état désaimanté).

A partir des données expérimentales de la littérature concernant les alliages

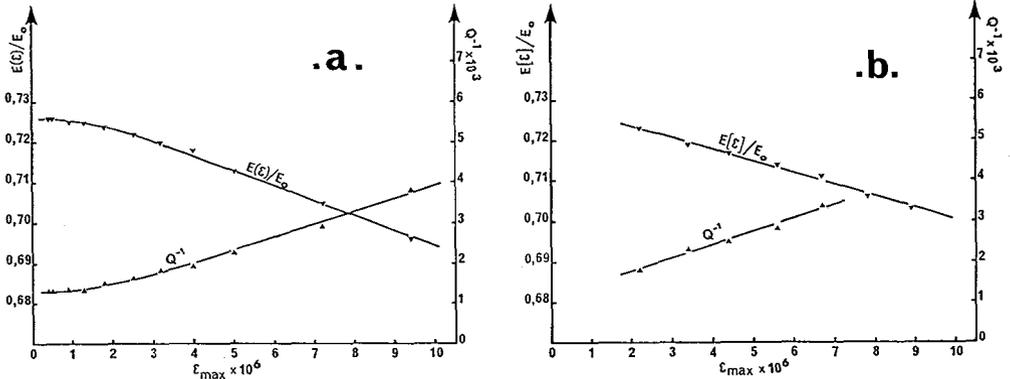


Figure 2 : Variation du module d'Young et du frottement en fonction de ϵ_{max} , pour un échantillon recuit à 300°C : (a) mesure réalisée sur le mode fondamental de vibration (b) mesure réalisée sur le premier harmonique.

Fe-B /11/ on obtient $v_1 = 20$ khz pour une taille moyenne de domaine $d = 300 \mu m$ et $v_1 = 2$ MHz pour $d = 30 \mu m$ /7/. La fréquence v_1 est donc quel que soit le cas très supérieure à la fréquence de mesure, le module est alors complètement relaxé et

$$\frac{\Delta E}{E} = \left(\frac{\Delta E}{E} \right)_R = \left(\frac{E_s - E}{E} \right)_R \quad \text{et} \quad Q^{-1} = \left(\frac{\Delta E}{E} \right)_R \frac{6}{\pi^2} \frac{f}{v_1}$$

Une estimation de E_s par extrapolation à 20°C de la partie de la courbe $E = f(T)$ pour $T > T_c$ nous a permis d'évaluer $\left(\frac{\Delta E}{E} \right)_R \approx 0,6$. Dans le cas où $d = 30 \mu m$ on obtient alors $Q^{-1} \approx 2,5 \cdot 10^{-5}$ et pour $d = 300 \mu m$ $Q^{-1} \approx 2,5 \cdot 10^{-3}$ /7/. Cette dernière valeur du frottement intérieur est bien du même ordre de grandeur que celle observée expérimentalement. Néanmoins si Q^{-1} correspond au processus de relaxation microscopique, il doit dépendre linéairement de la fréquence f ; la comparaison des figures 2a et 2b montre que Q^{-1} est loin d'être proportionnel à f . On doit alors conclure que la contribution du processus de relaxation par courants de Foucault microscopiques au frottement intérieur reste faible et il faut admettre comme Berry /10/ que le frottement intérieur à $\epsilon \approx 0$ implique une autre contribution indépendante de la fréquence et qui constituerait une sorte de fond continu magnéto-mécanique.

Enfin nous avons pu montrer /7/ qu'étant donné la faible anisotropie d'origine structurale les processus de rotation de l'aimantation dans les domaines et de déplacement des parois doivent intervenir simultanément avec pour conséquence un effet ΔE de grande amplitude.

V - APPLICATION A L'ETUDE DE LA RELAXATION STRUCTURALE

L'apparition de l'effet ΔE étant lié au relâchement des contraintes internes et à la relaxation structurale du verre nous avons étudié la cinétique de cette relaxation en suivant l'évolution du module d'Young en fonction du temps pour trois températures de recuit 250, 275 et 300°C. Les vieillissements sont réalisés in situ, chaque recuit est précédé d'une montée en température à 1 K/mn et suivi d'un refroidissement rapide. Le module est mesuré à 20°C. Les résultats de cette étude sont représentés sur la figure 3. Pour chaque température on peut définir un temps t_s à partir auquel la valeur du module se stabilise. Le temps t_s suit une loi d'Arrhénius comme le montre la figure 4. On a également reporté sur cette figure les temps t_0 qui correspondent au temps à partir duquel le phénomène de mise en ordre chimique devient prépondérant par rapport au phénomène de mise en ordre topologique au cours de la relaxation structurale ; ce temps t_0 a été déterminé par ailleurs /7/. On constate que les droites correspondant respectivement à t_0 et t_s sont parallèles, c'est-à-dire que les énergies d'activation apparentes sont identiques.

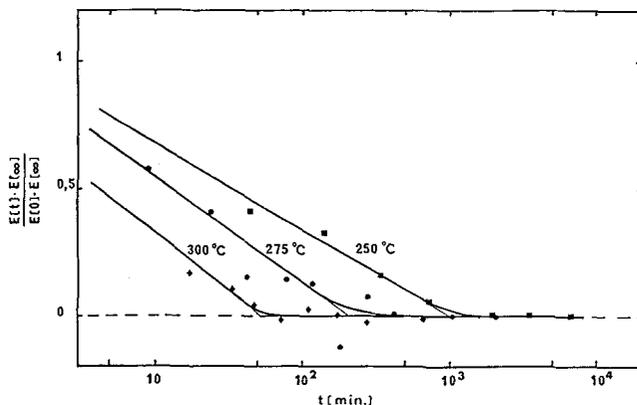


Figure 3 : Cinétiques normalisées d'évolution du module d'Young du verre Fe₈₃ B₁₄ Si_{1,5} C_{1,5} lors de recuits isothermes à 250, 275 et 300°C.

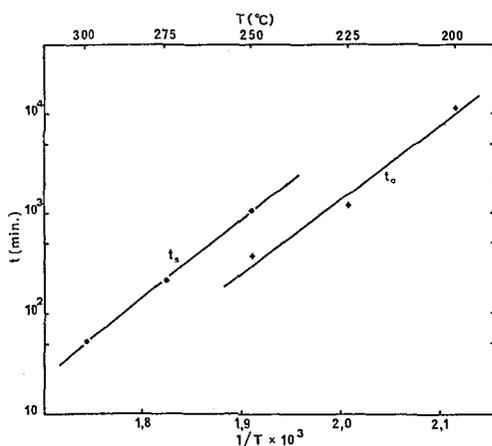


Figure 4 : Diagramme d'Arrhénius illustrant la dépendance en température de t_s et t_o .

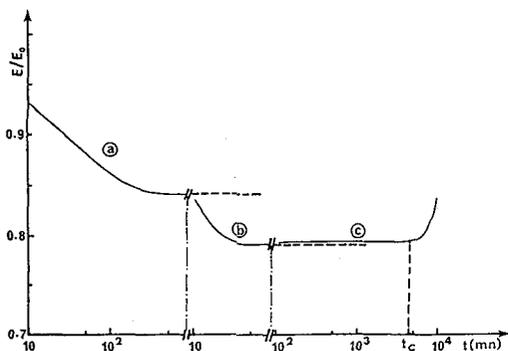


Figure 5 : Variation du module d'Young en fonction du temps de traitement pour un échantillon recuit d'abord à 275°C (a) puis à 300°C (b) et de nouveau à 275°C (c).

La diminution du module d'Young, associée à l'effet ΔE est donc essentiellement liée à la relaxation structurale topologique par l'intermédiaire des contraintes internes. Par contre, le phénomène de mise en ordre chimique ne semble pas affecter la valeur du module d'Young. Notons en outre que, pour un même échantillon, la valeur stabilisée du module obtenue après traitement pour différentes températures est d'autant plus faible que la température de recuit est élevée. On peut donc en conclure que l'effet ΔE dans le verre Fe₈₃ B₁₄ Si_{1,5} C_{1,5} "stabilisé" augmente avec la température du recuit de stabilisation, augmentation qui peut être attribuée à un niveau de contraintes internes d'autant plus bas que le recuit est réalisé à une température plus élevée.

Par ailleurs, nous avons cherché à savoir si l'on pouvait passer réversiblement de la valeur de E obtenue après stabilisation à 300°C à celle obtenue après stabilisation à 275°C. Les résultats sont montrés sur la figure 5. On constate que le recuit à 275°C consécutif à celui à 300°C n'a pour conséquence qu'une très faible remontée du module d'Young par rapport au niveau de stabilisation à 300°C, la remontée rapide qui s'amorce à partir de t_c correspond à l'apparition des premiers cristallites de fer α . Il semble donc que la diminution du niveau de stabilisation du module quand on augmente la température de recuit est un phénomène essentiellement irréversible.

VI - CONCLUSION

Cette étude d'un verre métallique Fe₈₃ B₁₄ Si_{1,5} C_{1,5} nous a permis de mettre en évidence un effet magnétoélastique de grande amplitude et un amortissement magnéto-mécanique fortement sensibles à l'état structural du matériau. Leur développement, accompagnant la relaxation structurale topologique, est dû au relâchement des contraintes internes qui dans l'état brut d'hypertrémie limitent le mouvement des parois et la rotation de l'aimantation des domaines. L'amorce de la cristallisation primaire de fer α est suffisante pour faire disparaître l'effet ΔE et la plus grande partie de l'anomalie de module entre état vitreux et état cristallin.

L'analyse de l'effet ΔE et de l'amortissement magnéto-mécanique nous a montré que : (i) pour les valeurs de la déformation considérées, la contribution hystérétique est faible, (ii) la relaxation par courants de Foucault ne suffit pas à expliquer le niveau de frottement intérieur à faible déformation. Il faut admettre l'existence d'une autre contribution, indépendante de la fréquence et constituant une sorte de fond continu magnéto-mécanique.

Références

1. D.C. TIAN, F. FOUQUET, F. GUYOT, C. MAI, J. PEREZ, Mat. Sci Eng. 53 (1982) 179.
2. H.V. KUNZI, K. AGYEMAN, Proc. European Conf. on Internal Friction and Ultrasonic Attenuation in Solids, Manchester, (1979), 371.
3. B.S. BERRY, in "Metallic Glasses", A.S.M., Metals Park (Ohio), (1978) 161.
4. E. TOROK, G. HAUSCH, Proc. 3 rd Int. Conf. on Rapidly quenched Metals, Brighton, vol. 2, (1978) 105.
5. T. SOSHIRODA, M. KOIWA, T. MASUMOTO, J. Non. Cryst. Solids, 22 (1976) 173.
6. S. KISS, G. POSGAY, I.Z. HARANGOZO, F.J. KEDVES, Proc. 7th Int. Conf. on Internal friction and Ultrasonic attenuation in Solids, J. Physique 42-C5 (1981) 529.
7. F. GUYOT, Thèse Docteur Ingénieur INSA LYON (1982)
8. B.S. BERRY, W.C. PRITCHET, A.I.P. Conf. Proc., New-York, 34 (1979) 292.
9. R.C. O'HANDLEY, M.C. NARASIMHAN, M.O. SULLIVAN, J. Appl. Phys. 50 (1979) 16633.
10. B.S. BERRY, W.C. PRITCHET, J. Appl. Phys. 47 (1976) 3295.
11. R. HASEGAWA, R.C. O'HANDLEY, L.I. MENDELSON, A.I.P. Conf. Proc., New-York, 34 (1979) 298.