

République algérienne démocratique et populaire
Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique
Université Saad Dahleb Blida 1



Faculté des sciences
Département de physique

Mémoire de fin d'étude
Pour l'obtention du diplôme de Master en Physique

Option : Micro & Nano Physique

Thème :

**Élaboration et caractérisation des matériaux
nanostructures à base de Fe et Ni**

Présenté par :

BOUTAREG SMAÏL

TOUNSI DJALLEL ABDENACER

Soutenu le 03 / 10 / 2019 devant le jury composé de :

Dr. SALAH EDDINE AOUDJ	MCB USDB	Président
Dr. LASLOUNI WARDA	MCB USDB	Examineur
Dr. YOUNES ABDERRAHMANE	MRB CRTI	Encadreur
Dr. ABDELKADER HASSEIN-BEY	MCB USDB	Co-Encadreur

Blida 1-2018/2019

ملخص

الهدف من هذا العمل هو فهم تأثير طريقة السحق الميكانيكي ونوع الطاحونة ووقت الطحن والتركيز على الخواص التركيبية والبنوية والمغناطيسية لسبائك $Fe_{80}Ni_{20}$ النانومترية. تم تطوير سبيكة $Fe_{80}Ni_{20}$ بواسطة تقنية السحق الميكانيكي لخليط من بودرة الحديد والنيكل. لقد قمنا بعدة تحاليل وبتقنية مختلفة نذكر منها : الأشعة السينية (XRD)، و المسح المجهر الإلكتروني (SEM) و الاهتزاز مغناطيسي (VSM). أكدت الدراسة بالأشعة السينية تشكيل سبيكة Fe-Ni بعد 600 دقيقة فقط من الطحن مع حجم بلوري متوسط قدره 13 نانومتر ، في حين أن تحليل المغناطيسي كشفت أن الخواص المغناطيسية تحسنت: كخاصية التشبع المغنطيسي و المقاومة المغناطيسية .

Résumé

L'objectif de ce travail est de comprendre l'influence du mode d'élaboration, du type de broyeur, du temps de broyage et la concentration sur les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$ nanostructuré. L'élaboration de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$ a été effectuée par la technique de la mécanosynthèse d'un mélange de poudres de Fer et de Nickel. Les éléments produits (élaborés) ont été caractérisés par techniques de la diffraction des rayons X (DRX), Microscope électronique à balayage (MEB) et Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM). L'étude par diffraction des rayons X a confirmé la formation de l'alliage Fe-Ni après seulement 600 min de broyage avec une taille moyenne des cristallites de 13 nm, tandis que l'analyse des courbes d'aimantation des alliages Fe-Ni, a révélé des propriétés magnétiques originales : comportement super paramagnétique, et surtout une aimantation à saturation et une coercitivité importante.

Abstract

The aims of this work is to understand the influence of the elaboration method , mill type, milling time and concentration on the structural, microstructural and magnetic properties of $Fe_{80}Ni_{20}$ nanostructured alloy. The production of the $Fe_{80}Ni_{20}$ nanostructured alloy was carried out by the mechanical alloying technique of iron and nickel powders mixture. The elements produced (elaborated) were characterized by X-ray diffraction techniques (DRX), Scanning Electron Microscope (SEM) and Vibrating Sample Magnetometer (VSM). The X-ray diffraction study confirmed the formation of the Fe-Ni alloy after 600 min of milling with an average crystallite size of 13 nm, while the analysis of the magnetization curves of the Fe-Ni alloys, revealed original magnetic properties: super paramagnetic behavior, and especially saturation magnetization and significant coercitivity.

Remerciements

Nous remercions en premier lieu notre Allah qui nous à donner le courage et l'effort de réaliser ce travail.

Nous adressons nos respectueux remerciements à nos promoteurs, Dr.YOUNES Abderrahmane et Dr. ABDELKADER Hassein-Bey qui ont accepté de nous avoir encadre dans leurs laboratoires pour la réalisation de ce mémoire, leurs connaissances et leurs expériences ont été pour nous une source constante de savoir.

Nous remercions également tous les membres de jury, Dr. AOUDJ Salah-Eddine et Dr. LASLOUNI Warda qui nous avons fait l'honneur d'examiner et de juger notre travail.

Nous réservons une place particulière à tous nos enseignants du département de physique (BENCHERCHALI ...etc) et les chercheurs du CRTI Chéraga (A.BOUAMER, N.KHERROUBA, F.REKBI...etc) qui ont contribué à notre formation.

N'oublions pas les encouragements et l'aide de tous nos amis. Nous tenons de présenter nos remerciements aux personnes qui nous ont aidés de loin et de près durant toute l'année.

Dédicace

Je dédie ce travail à quelqu'un que j'admire beaucoup et qui m'a toujours impressionné et qui m'a encouragé, sans lui je n'aurai jamais pu continuer :

Mon père : Mohamed

À ma chère mère qui la seule personne qui n'hésite pas de se priver du nécessaire pour me venir en aide et ma combler de bonheur.

A mes sœurs

A mes frères : Billel et Abdellah

Sans oublier mon binôme Djallel Abdenacer avec lequel j'ai partagé des moments de joie et de peur ainsi que des moments parfois agréables et parfois difficiles.

A toute la section de Master 2 année universitaire (2018/2019), à tous mes amis et à toute ce qui ont participé de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

Dédicace

Je dédie ce modeste travail à :

Ma mère

A mon très cher père qui m'a cessé de sacrifier pour moi.

A mes frères : Madjid, Yousef et mon neveu Maher Amir.

A mon binôme : Smail BOUTAREG.

A toute la section de Master 2 année universitaire (2018/2019), a toute mes amis et a toute ce qui ont participé de prés ou de loin à la réalisation de ce travail.

LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX

Figure (I.1): Exemples d'objets fabriqués ou présents dans la nature dans une échelle de taille en nanomètres	7
Figure (I.2): Types de nanomatériaux répertoriés en fonction de la dimension de la phase ou des phases nanométriques	9
Figure (I.3): Exemple de défauts ponctuels dans un cristal ordonné AB.....	10
Figure (I.4): Approche ascendante et approche descendante.....	11
Figure (I.5) : Schéma du broyeur à attrition.	17
Figure (I.6) : Différents broyeurs vibratoires : (a) agitateur SPEX, (b) broyeur Vibratoire vertical.....	18
Figure (I.7) : Schéma d'un broyeur planétaire (vue de dessus).....	19
Figure (I.8) : a) moteur électrique de montre du type LAVET, b) pièces de montres et de contact, ressorts.....	22
Figure (I.9): alliages réfractaires pour joints.....	22
Figure (I.10). Alliages pour transmission à variation continue	23
Figure (I.11). Mise en scène des mesures de dépassement de Tseuil.	24
Figure (II.1): Origine du magnétisme dans la matière	28
Figure (II.2). Types de Matériaux magnétiques selon leurs domaines d'applications.....	29
Figure (II.3). Évolution de l'aimantation (M) en fonction du champ magnétique appliqué (H) pour un matériau diamagnétique	30
Figure (II.4): Évolution de l'aimantation (M) en fonction du champ magnétique appliqué (H) pour un matériau paramagnétique	31
Figure (II.5): Configuration en domaines dans le matériau ferromagnétique.....	32
Figure (II.6): La paroi de Bloch.....	33
Figure (II.7): Classification des principaux types de matériaux ferromagnétiques doux.....	34
Figure (II.8): Courbe d'aimantation pour un matériau ferromagnétique matériau ferromagnétique doux, matériau ferromagnétique dur.....	35
Figure (II.9): Illustration schématique des deux sous-réseaux d'un matériau antiferromagnétique couplé antiparallèlement (a), évolution de l'aimantation en fonction de la température (b).....	36
Figure (II.10): Structure magnétique d'un matériau ferrimagnétique.....	36
Figure (II.11): Domaine de Weiss et parois de Bloch.....	37
Figure (II.12) : origine des domaines.....	38
Figure (II.13) : Structure magnétique d'un monocristal cubique.....	39
Figure (II.14). Relation entre la perméabilité (à 1 kHz) et l'induction à saturation pour des alliages magnétiquement doux.....	39
Figure (II.15). Courbe de première aimantation.....	40
Figure (II.6). Cycle d'hystérésis.....	43
Figure (II.17): Influence de la taille des particules sur la coercitivité intrinsèque.....	43
Figure (III.1): Diagramme de phase binaire des alliages Fe-Ni.....	47
Figure (III.2): Structure du fer α	48
Figure (III.3): Structure du Ni.....	48

Figure (III. 4) : Diagramme de phase Fe-Ni (les % sont en masse).....	49
Figure (III. 5): Broyeur planétaire PM 400.....	50
Figure (III. 6): Différentes jarres et billes.....	50
Figure (III. 7): Schéma représentant les forces exercées sur la jarre.....	50
Figure (III.8): Schéma d'un MEB équipé d'un détecteur EDS	52
Figure (III .9) : Photographie de l'appareil MEB équipé d'un détecteur EDS.....	53
Figure (III .10) : illustre le principe de la Loi de Bragg.....	54
Figure (III .11) : Principe du diffractomètre dans la géométrie de Bragg-Brentano.....	55
Figure (III .12) : Photographie de l'appareil utilisé pour réaliser DRX.....	56
Figure (III.13): Représentation schématique de VSM.	57
Figure (III .14): Magnétomètre à échantillon vibrant(VSM) du CRTI.....	57
Figure (IV. 1): Diffractogrammes aux rayons-X du $Fe_{80}Ni_{20}$ durant le broyage.....	60
Figure (IV.2) : Évolution de la taille des grains et micro-distorsions en fonction du temps de broyage pour la poudre $Fe_{80}Ni_{20}$ broyée.....	62
Figure (IV.3) : Évolution du paramètre de maille, a (nm), en fonction du temps de broyage pour la poudre $Fe_{80}Ni_{20}$ broyée.....	63
Figure (IV.4):Morphologie de la poudre $Fe_{80}Ni_{20}$ broyée à différent temps de broyage.....	64
Figure (IV.5) : Analyse quantitative du $Fe_{80}Ni_{20}$ en fonction du temps de broyage.....	66
Figure (IV. 6): Cartographie de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$ broyé durant 600 min.....	67
Figure (IV.7): les courbe d'hystérésis du mélange de poudre $Fe_{80}Ni_{20}$ broyées de différent temps.....	70
Figure(IV.8): Évolution de M_s et H_c du mélange $Fe_{80}Ni_{20}$ poudres broyées pour différentes durées	70
Figure (IV.9): Évolution de M_r et M_r/M_s du $Fe_{80}Ni_{20}$ broyées pour différentes temps....	70
Tableau (I.1) : Applications de Fe-Ni.....	19
Tableau(III.1) : Propriétés physiques du fer et du nickel.....	44

Table de Matière

INTRODUCTION GÉNÉRALE	1
I. MATÉRIAUX NANOSTRUCTURÉS	5
I.1. Introduction.....	5
I.2. Généralité matériaux nanostructurés.....	6
I. 3. Classification des nanomatériaux	6
I.4. Différents défauts cristallines	7
I.5. Voies de synthèse des nano particules	8
I.6. Différentes techniques d'élaboration	9
I.6.1. Les méthodes mécaniques	11
I.7. Changement de la structure.....	18
I.7.1. Les mélanges ductiles-ductiles.....	18
I.7.2. : Les mélanges ductiles-fragiles	18
I.7.3. Les mélanges fragiles-fragiles.....	18
I.8. Applications industrielles des alliages Fe-Ni.....	18
I.8.1. Quelques applications industrielles des alliages FeNi	19
I.9. Travaux de recherche sur le système Fe-Ni.....	22
II. ÉTUDES MAGNÉTIQUES.....	25
II-1 : Origine du magnétisme.	25
II-2 : Classification des matériaux magnétiques.	26
II-2.1 : Diamagnétisme.	27
II-2.2 : Paramagnétisme.....	28
II-2.3 : Ferromagnétisme.	29
II-2.4 : Antiferromagnétisme.....	33
II-2.5 : Ferrimagnétisme.....	34
II.3. Domaines magnétiques.....	35
II. 3. 1. Matériaux magnétiques durs	37
II. 3. 2. Matériaux pour la mémorisation de l'information.....	37
II. 3. 3. Matériaux magnétiques doux	38
II. 3. 4. Matériaux à usages spéciaux.....	38

II.4. Processus d'aimantation	39
II.4.1 Courbe de première aimantation	39
II.4.2. Le cycle d'hystérésis.....	41
II. 5. Influence de la taille de grain sur les paramètres magnétiques	42
II.5.1. Influence de la taille de grains fins sur le champ coercitive.....	42
III. TECHNIQUES D'ÉLABORATION ET CARACTÉRISATIONS	44
III.1. Introduction	44
III.2. Généralités sur le Fer et le Nickel	44
III. 2.1 Structure Cristallographiques	45
III. 2. 2 Classification du Fer et du Nickel	46
III. 2. 3 Diagramme de Phase	47
III.3. Technique d'élaboration.....	48
III.3.1 Condition d'élaboration.....	48
III.3.2 Principe de fonctionnement.....	49
III.4. Technique de caractérisation.....	50
III.4.1. Caractérisation par microscope électronique a balayage (MEB)	50
III.4.2. caractérisation par diffraction X (DRX).....	53
III.4.3. Mesures par magnétomètre à échantillon vibrant.....	56
IV. RÉSULTATS ET DISCUSSION	59
IV.1.Introduction.....	59
IV.2.Résultats et discussion	59
IV.2.1. Caractérisation structurale du $Fe_{80}Ni_{20}$	59
IV.2.2. Morphologie de la poudre	63
IV.2.3. Caractérisation magnétique	68
CONCLUSION.....	71

INTRODUCTION GÉNÉRALE

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Les matériaux nanostructurés sont des matériaux mono ou polyphasés à grains nanométriques (allant jusqu'à 100 nm). Grâce à leurs propriétés physiques, chimiques, mécaniques modifiées par rapport aux matériaux polycristallins obtenus par les méthodes conventionnelles, ces matériaux présentent un intérêt certain pour l'industrie et trouvent des applications dans des secteurs aussi variés que l'aérospatiale, la production d'énergie...etc. Ils intègrent plusieurs domaines, allant du magnétisme à l'optique en passant par la chimie, la mécanique,...etc. De par l'effet de confinement, ces matériaux recèlent une proportion atomique importante comprise dans les surfaces (nanoparticules), les interfaces (multicouches, nanocristallins) et au sein des joints de grains (poudres nanostructurées).

Plusieurs techniques d'élaboration ont été utilisées pour la fabrication de ces matériaux. Nous avons choisi dans ce travail la technique d'élaboration par mécanosynthèse. Cette technique permet la formation des alliages de taille de grain nanométrique, C'est une technique d'élaboration hors équilibre, par des moyens mécaniques, elle permet aussi d'envisager une production à l'échelle industrielle en raison de son faible coût de mise en œuvre et la facilité avec laquelle on peut élaborer de grandes quantités de matériaux. Cette technique constitue aujourd'hui un des modes d'élaboration d'alliages amorphes, de composés intermétalliques ainsi que certains systèmes métalliques difficiles à obtenir par des méthodes conventionnelles.

Les alliages Fe-Ni sont connus depuis longtemps, ils ont été intensivement étudiés et ils sont utilisés dans beaucoup d'applications. L'utilisation de ces alliages, notamment en microélectronique, est motivée par leurs propriétés physiques (dilatation contrôlée) et magnétique (forte perméabilité magnétique, magnétorésistance).

L'objectif de ce travail est de comprendre l'influence du mode d'élaboration, le type de broyeur, le temps de broyage et la concentration sur les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$ nanostructuré.

Ce mémoire se compose de quatre chapitres. La première partie, est une présentation générale des nanomatériaux, énonçant leurs propriétés structurales, leurs classifications et une description des différents processus de fabrication notamment la

voie mécanique (la mécanosynthèse ou broyage haute-énergie). Le deuxième chapitre présente des généralités sur le magnétisme, les matériaux magnétiques et les domaines magnétiques. Le troisième chapitre, illustre les méthodes expérimentales utilisées, on présente les études structurales des poudres élémentaires utilisées dans l'élaboration de notre alliage, et les différentes techniques de caractérisation utilisées telles que : microscope électronique à balayage (MEB), caractérisation par diffraction des rayons X (DRX), mesures par magnétomètre à échantillon vibrant(VSM). Le quatrième chapitre décrit les différents résultats de l'alliage $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ obtenus avec leurs interprétations. Enfin, Une conclusion générale résume les principaux résultats obtenus et les perspectives futures.

I. MATÉRIAUX NANOSTRUCTURÉS

I.1. Introduction

Nanotechnologie est un terme générique décrivant des applications dans de nombreux domaines scientifiques mais recouvrant d'une manière générale la recherche sur les principes existant à l'échelle nanométrique, c'est à dire au niveau des atomes et des molécules. Un nanomètre (nm) est la milliardième partie d'un mètre. Il existe des nanomatériaux élaborés ou fabriqués par l'homme et d'autres existants dans la nature. La figure I-1 montre divers objets présents dans la nature, placée par rapport à une échelle nanométrique. Ces nanomatériaux sont composés de nanostructure (matériaux nanostructurés) qui peuvent être des nanoparticules, des nanotubes (comme les nanotubes de carbone) ou encore des nano-cristaux qui présentent l'intérêt d'avoir des caractéristiques spécifiques par rapport aux mêmes matériaux à l'échelle macroscopique. L'acquisition de ces nouvelles propriétés physico-chimique ouvre un immense champ de recherches fondamentales et appliquées regroupées sous l'appellation de « nanoscience ».

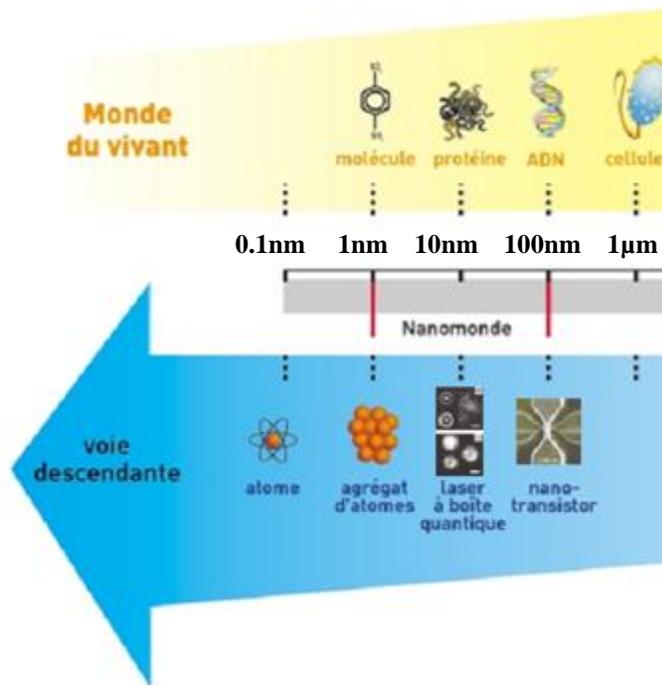


Figure (I-1): Exemples d'objets fabriqués ou présents dans la nature dans une échelle de taille en nanomètres [1]

I.2. Généralité sur les matériaux nanostructurés

En général, les matériaux nanostructurés sont définis comme des matériaux constitués de poly-cristaux qui peuvent être monophasés ou polyphasés, ayant la dimension de cristallites inférieure à 100 nm ou même dans une seule dimension [2-3]. Ces matériaux contiennent une fraction importante des atomes situés aux limites des grains, fraction qui peut leur donner des propriétés intéressantes qui ne se retrouvent pas dans l'équivalent massif [4]. La structure des nanomatériaux peut être considérée comme formée de deux parties : un noyau cristallin (avec structure, paramètre de maille, etc.) et une partie extérieure formée par l'interface (lacunes, défauts, des impuretés... etc) [5-6].

Les matériaux nanocristallins ont des propriétés supérieures aux matériaux ayant des tailles de grain plus grande, parmi ces propriétés amplifiées par la présence des interfaces et du large rapport surface/volume, on peut citer : la dureté supérieure, diffusivité amplifiée, ductilité supérieure, densité réduite, module élastique réduit, résistivité électrique supérieure, chaleur spécifique plus grande, coefficient de dilatation thermique supérieur, conductivité thermique plus petite et propriétés magnétiques douces meilleures[6]. Leurs applications sont extrêmement diverses : ils serviront, par exemple, à créer des filtres anti-pollution plus sélectifs, des composants électroniques plus fiables, des plastiques plus résistants, etc.

I.3. Classification des nanomatériaux

Les matériaux nanostructurés peuvent être classifiés selon différents critères: La dimensionnalité apparaît dans la littérature comme le critère le plus pertinent. Il convient de distinguer 4 grandes classes de nanomatériaux (Figure I.2). On peut distinguer [7-8]:

- 1- Les cristallites (3 dimensions) : dont la structure est celle des nano cristaux dans trois directions.
- 2- Les filamenteuses (2 dimensions) : c'est un matériau nano structuré dans deux des trois directions.
- 3- Les lamellaires (1dimension) : ce type de cristaux possèdent une structure nanocristalline par couche et donc une seule direction.

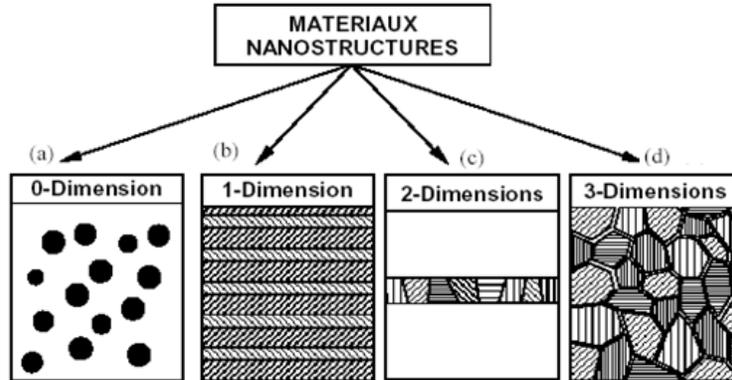


Figure (I. 2): Types de nanomatériaux répertoriés en fonction de la dimension de la phase ou des phases nanométriques [9]

Les propriétés et la structure des nanograins ne dépendent pas seulement de la composition chimique, de la taille et de la forme des grains. Elles dépendent également du mode d'élaboration. Par exemple, l'utilisation de la mécanosynthèse (broyage) ou irradiation à très haute énergie entraîne l'introduction par des déformations d'une très grande densité de défauts dans les grains microcristallins, conduisant à des nanograins cristallins séparés par des joints de grains [10].

I.4. Différents défauts cristallines

Les propriétés mécaniques des métaux, alliages et composés intermétalliques sont influencées à des degrés divers par des défauts qui sont à l'origine de certaines propriétés intéressantes de la matière, telles que la déformation plastique, la résistance à la rupture, la conductivité électrique et notamment électronique, On distingue quatre types de défauts :

- les défauts ponctuels, de dimension 0 : ils concernent un nœud unique, et ne perturbent que les quelques nœuds voisins; voir par exemple les atomes interstitiels figure (1.3);
- dislocations, défauts linéaires de dimension 1 : ils ne concernent que les nœuds situés sur une courbe, et ne perturbent que quelques nœuds voisins ;
- les interfaces, de dimension 2 : surface, joint de grain, Joint de macle, Défaut d'empilement, Surface libre ;

- les défauts volumiques, de dimension 3 : pores, précipités, macles.

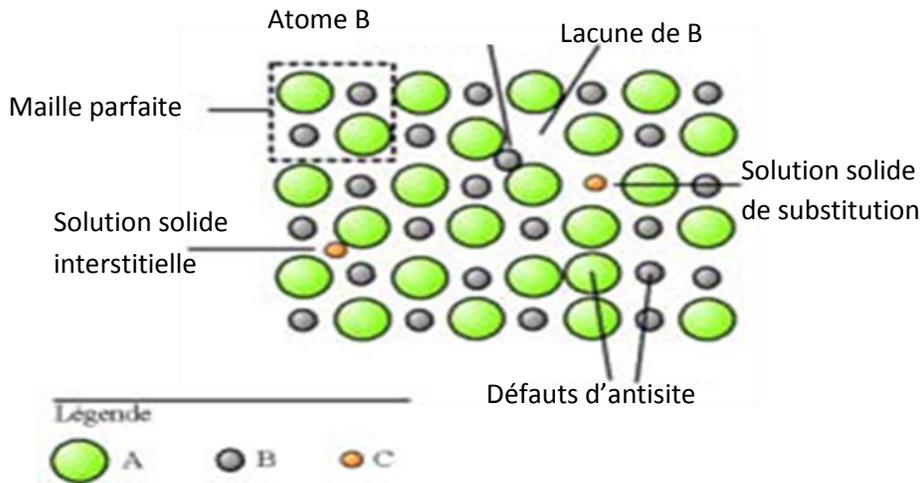
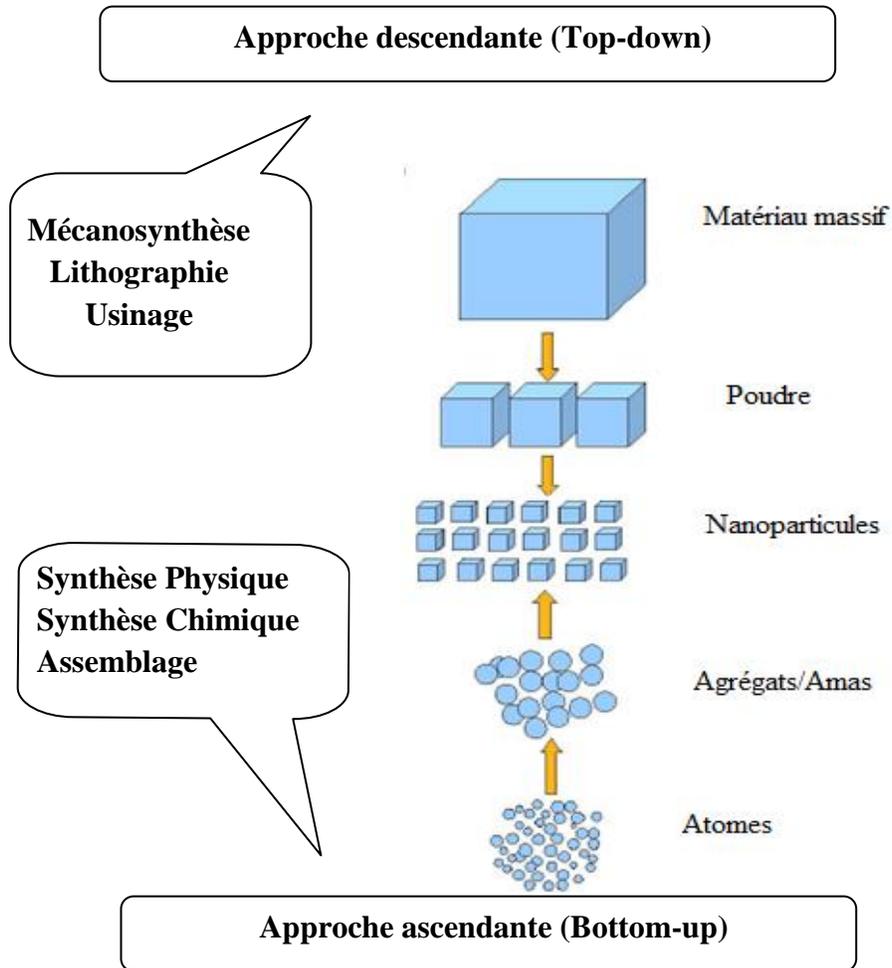


Figure (I.3) : Exemple de défauts ponctuels dans un cristal ordonné AB. [11]

Le type et l'importance relative des défauts changent par rapport à ceux des matériaux poly-cristallins classiques quand la taille des grains devient nanométrique. A cote des changements d'orientation cristallographie entre grains voisins, les grains des nanomatériaux peuvent différer, les uns des autres, par leur structure atomiques et leur composition chimiques. Les joint de grain et les joint triples (colonnes de rencontre de trois grains) sont les défauts prédominants du fait de la forte fraction des atomes, qui leurs est associée [12].

I.5. Voies de synthèse des nano particules

Il existe deux approches dans l'élaboration des nanomatériaux (figure 1.4). Dans l'approche "bottom-up" typique, la matière est assemblée atome par atome pour former des particules ou des molécules intégrables dans des systèmes plus importants. Dans l'approche "top-down", à l'inverse, on part d'un matériau massif et on le réduit à l'échelle nanométrique. Diverses techniques chimiques et physiques sont donc disponibles pour élaborer des nanoparticules. Ces différentes méthodes permettent d'obtenir des nanoparticules libres ou enrobées dans une matrice. Dans ce dernier cas, elles sont protégées de l'atmosphère extérieure (de l'oxydation dans le cas des métaux), et on évite leur agglomération en particules plus grosses [13].



Figure(I. 4): Approche ascendante et approche descendante [14].

I.6. Différentes techniques d'élaboration

L'élaboration des matériaux nanostructurés est devenue une partie importante de la recherche sur les matériaux ces dernières années. Pour préparer des matériaux nanocristallins, il existe plusieurs techniques qui par leur nature peuvent produire des matériaux ayant de petites dimensions. Pour produire des nanoparticules en grande quantité, pour le moment seulement la recristallisation des rubans amorphes et le broyage mécanique semblent utilisables [15]. Parmi les techniques utilisées dans la production des matériaux nanocristallins nous rappelons :

a) Dépôt physique en phases vapeurs

Les vapeurs sont générées par diverses méthodes (évaporation, pulvérisation, ablation laser ou par faisceau d'ions), vapeurs qui sont après condensées sous un substrat. Cette méthode demande un vide très élevé (UHV) [16].

b) Dépôt chimique en phases vapeurs

Dans cette technique, les espèces gazeuses réagissent chimiquement sur une surface chaude, dans le but de former un nouveau composé [16].

c) Traitement de conversion par pulvérisation.(Spray conversion processing)

La méthode implique l'atomisation des précurseurs dans des aérosols et leur dispersion par un milieu gazeux vers un réacteur chauffé où cette solution est évaporée et forme des particules ultrafines ou des couches minces [16-17].

d) Pulvérisation

C'est une méthode de vaporisation des atomes et clusters (neutres et chargés) par l'action des ions accélérés à grandes énergies [18].

e) Ablation laser

Utilise des lasers de haute énergie en impulsion pour vaporiser des clusters d'ions de la surface des solides [18].

f) Condensation des gaz inertes

Cela consiste en la volatilisation des monomères, le refroidissement de ces monomères par un gaz inerte froid et la croissance des clusters par l'addition des monomères aux clusters ou par l'agrégation des clusters [18].

g) Processus sol-gel

Cette méthode consiste dans la génération d'une suspension liquide (sol) qui est après transformée en un gel visqueux et ensuite en un solide [16].

h) Synthèse mécano- chimique

Dans ce processus, les matériaux sont activés mécaniquement par broyage mécanique dans le but d'induire des réactions chimiques entre eux pendant ou après broyage [16].

i) Cristallisation des rubans amorphes

Un ruban amorphe est préparé par refroidissement rapide par exemple et ensuite il est recuit pour réaliser la recristallisation du solide amorphe [18].

j) Broyage mécanique

Dans cette technique, des poudres élémentaires ou préallées sont déformées plastiquement, mélangées et déformées plastiquement de nouveau [16-17].

I.6.1. Les méthodes mécaniques

Parmi les techniques d'élaboration par méthode mécanique, la technique dite mécanosynthèse qui consiste généralement à broyer des poudres micrométriques (1 à 30 μm) de plusieurs alliages. Elle permet l'obtention de nano précipités ou nano objets dispersés de façon homogène au sein de la matrice.

Les techniques de densification consistent à convertir un matériau pulvérulent en une pièce massive et comporte deux étapes : une opération de compactage mécanique et une opération de frittage. La compression isostatique à chaud permet de réaliser ainsi ces deux opérations en une seule étape. Des techniques de forte déformation (torsion, extrusion.....) Sont également développée pour l'obtention de nano-cristaux et de nanostructures [10].

a) Élaboration par mécanosynthèse

La mécanosynthèse est un procédé de la métallurgie de poudres. Comme son nom l'indique, il consiste à utiliser l'énergie mécanique pour réduire la taille de grains du matériau, et réaliser un mélange à l'échelle du grain ou produire un véritable alliage. Il procède par succession de fractures et soudures provoquées lors de choc mécanique. De façon générale, le produit final se présente sous la forme de grains de poudres nanométriques [19]. Le broyage mécanique a une grande importance dans l'industrie des poudres. C'est en fait la principale technique pour la fabrication de poudre de métaux. Le broyage de compacts obtenus à partir de poudre produite par réduction, atomisation ou électrolyse est également une opération très classique. Le broyage permet également de réaliser le mélange simple de deux ou plusieurs matériaux, le mélange à une échelle très fine ou même la constitution d'alliage à l'état solide. Il peut permettre la fabrication de phases hors équilibre telles que des alliages amorphe, des solutions solides étendue et des structures nanocristallines. Une opération de broyage est la conjonction de plusieurs phénomènes (fracturation, déformation et soudage à froid des particules) dont l'importance relative dépend des propriétés physiques et chimiques de la poudre broyée,

du milieu dans lequel le broyage est effectué (vide, gaz, liquide) et des conditions de broyage.

b) Historique de la mécanosynthèse

Cette technique a été développée accidentellement en 1968 pour la fabrication d'alliages métalliques. Les métaux ont été Co-broyés dans un broyeur fortement énergétique, produisant une poudre fine selon un mécanisme alterné de fractures et de soudures froides. Gilman et Benjamin (1983) se sont intéressés aux mécanismes de formation des alliages et ont appliqué la technique à un grand nombre d'éléments métalliques [20].

c) Différentes étapes de la mécanosynthèse

D'après Abdellaoui [7] (1994) quatre éléments sont nécessaires pour élaborer des matériaux par mécanosynthèse:

- Des poudres élémentaires,
- un moyen de choc,
- Un type de mouvement permettant des chocs successifs,
- un container dans lequel se fait la mécanosynthèse.

L'évolution de la mixture des poudres passe par quatre stades.

➤ **Stade initial**

Durant ce stade, des particules de poudres sont aplaties par la force de compression due à la collision des billes puisque le matériau est généralement doux à ce stade. Le micro-forgeage entraîne un changement de la forme des particules individuelles, des clusters ou agglomérats de particules. Pour les systèmes ductiles-ductiles, une structure lamellaire avec une séparation claire entre les différents éléments se développe au début du broyage.

➤ **Stade intermédiaire**

Le changement significatif qui se produit durant ce stade est mis en évidence par la différence de la morphologie des particules par rapport à celle du stade initial. Le processus de soudage est important et la déformation plastique conduit

à la formation de structure lamellaire dans le cas du mélange ductiles-ductiles. Les processus de fracture et de soudage sont dominants à ce stade. Ainsi, le phénomène de fracture entraîne la diminution de l'épaisseur des lamelles et des dislocations peuvent prendre place. La composition chimique de la poudre est toujours non homogène à ce stade.

➤ **Stade final**

Un affinement considérable et une diminution de la taille des grains sont évidents à ce stade. La microstructure paraît plus homogène à l'échelle macroscopique que celle de stade initial et stade intermédiaire. Aucune structure lamellaire n'est observée et l'alliage est déjà formé. Ce dernier à une composition identique à celle du mélange initial et dont la taille des grains est de l'ordre de quelques nanomètres. Ce stade est caractérisé par un équilibre entre les processus de fracture et de soudage. Sachant que les forces de liaisons des particules de poudre sont plus fortes lorsque la taille des grains est faible, les déformations ne sont plus possibles car elles nécessitent une grande force pour fracturer les particules. Ce cas peut être bien décrit par la relation de HALL-Petch [21].

$$\sigma = \sigma_0 + Kd^{-1/2} \text{(I.1)}$$

Où

σ : contrainte minimale nécessaire pour déformer plastiquement un matériau ;

σ_0 : contrainte initiale ;

K : constantes dépendant du matériau ;

d : taille moyenne des grains.

En basant sur ces différents éléments nécessaires pour réaliser une mécanosynthèse, différents types de broyeurs ont été développés. Lors du broyage, les particules de poudre s'écrasent entre billes-billes où billes-parois des jarres puis s'allongent sous l'effet de la pression. L'énergie transférée à la poudre au cours des chocs produit des déformations importantes accompagnées du phénomène de durcissement et d'élévation de la température locale. Cette élévation peut être significative et favorise certaines transformations.

d) Les paramètres impliqués dans la mécanosynthèse

- **L'énergie du broyeur** : une énergie élevée conduit à une obtention plus rapide du produit final [22]. L'énergie du broyeur nous donne un autre paramètre important : la vitesse de broyage. Une vitesse trop grande fait que les billes restent collées sur les parois sans agir sur la poudre et fait croître la température de la jarre, avec des effets négatifs sur le produit final (par exemple oxydation) [23-24].
- **La nature des billes et des jarres** : considère le type d'acier des billes, leur dimension et leur nombre qui ont des influences sur l'efficacité du broyage [23-25].
- **Le rapport masse bille/masse poudre** : influence la formation des phases dans les poudres broyées. Il peut varier entre 1/1 jusqu'à 220/1, avec la croissance de ce rapport il est possible de réduire le temps nécessaire pour obtenir le produit final [23-25].
- **Le degré de remplissage** : de la jarre avec les billes est un autre facteur important dans le broyage mécanique. Un remplissage trop faible ou trop grand diminue l'efficacité du processus ; un taux optimal de remplissage est trouvé à 50 – 60 % du volume du jarre. Le produit final peut dépendre du taux de remplissage de la jarre avec les billes [23-25].
- **L'atmosphère** : dans laquelle se poursuit le broyage peut influencer la nature du produit final, mais aussi sa taille. En général, des gaz inertes sont utilisés (Ar, He) pour éviter la contamination, mais aussi l'air, N₂ ou H₂ pour produire des nitrures, hydrures, oxydes, etc [23-24].
- **Temps de broyage** : c'est le paramètre qui décrit l'intervalle de temps nécessaire pour obtenir le produit final [25].
- **Broyage continu ou séquentiel** : le broyage continu peut conduire à l'obtention d'un produit différent de celui obtenu pour un broyage avec des pauses [26].
- **La température** de broyage a aussi une influence sur la formation de l'état final du produit. Une température élevée fait que la taille des cristallites augmente mais réduit leurs contraintes et la solubilité dans l'état solide [23-24].
- **La contamination** est le grand défi de la mécanosynthèse, parce qu'elle est toujours présente [23-24].

e) Les différents types de broyeurs

Le broyage agit par chocs et/ou par frottement des billes sur la poudre, suivant le type de broyeur utilisé. En effet, il existe plusieurs types de broyeurs de laboratoire.

- **Broyeur de type "Attriteur"** : Dans ce type de broyeur, plus de 1000 billes de 0,2 à 1 cm de diamètre sont maintenues avec la poudre dans un caisson vertical et sont agitées par des éléments fixés à l'axe, qui tourne (figure I .5). Le broyage agit uniquement par frottements des billes sur la poudre. La température moyenne du creuset peut atteindre 150°C [27]. La durée moyenne d'un broyage est de l'ordre de quelques heures.

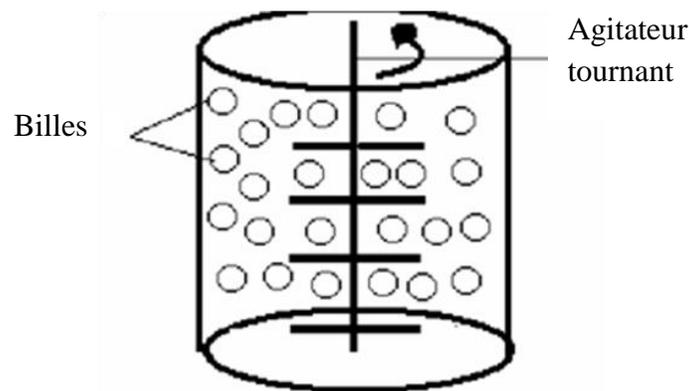


Figure (I.5) : Schéma du broyeur à attrition [28].

- **Les broyeurs à vibrations**

Dans ce type de broyeurs, le broyage agit uniquement par choc des billes sur la poudre, on distingue:

- ❖ l'agitateur SPEX, dans lequel six billes de 1 cm de diamètre sont agitées avec la poudre dans trois directions perpendiculaires les unes aux autres (Fig. I .6a) [29].
- ❖ le broyeur à vibrations verticales, dans lequel une unique bille de 2 à 7 cm de diamètre vient frapper la poudre verticalement, grâce à l'entretien des oscillations verticales du socle du broyeur par un électroaimant (Fig. I .6b) [30].

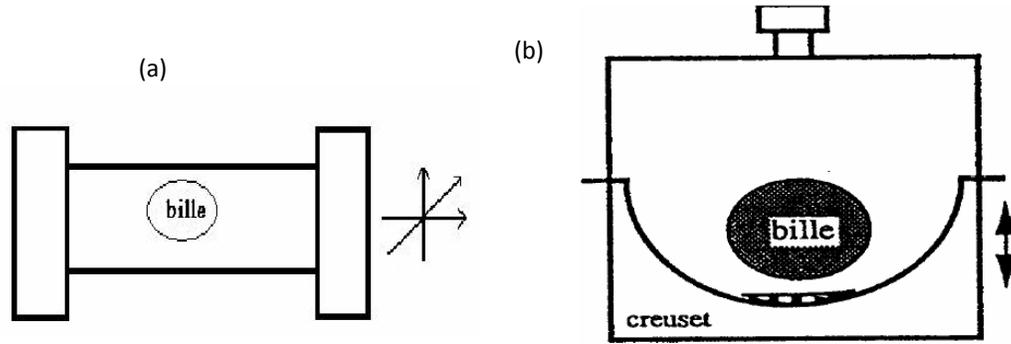


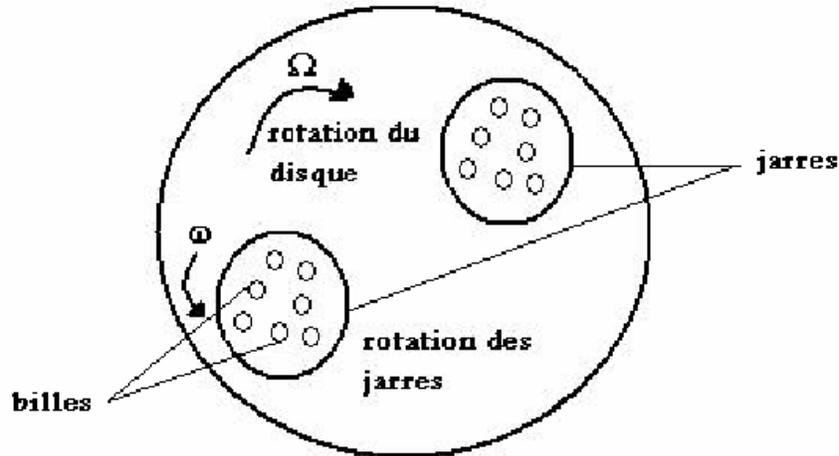
Figure (I.6) : Différents broyeurs vibratoires : (a) agitateur SPEX, (b) broyeur vibratoire vertical [28].

- **Broyeur horizontal**

Dans ce type de broyeur, la poudre et les billes (on utilise parfois des barreaux à la place des billes) sont placées dans un cylindre de diamètre supérieur à un mètre. Le cylindre tourne autour de son axe central à une vitesse de rotation inférieure à la vitesse critique qui correspond au collage des billes (ou des barreaux) sur la surface interne du cylindre. Les broyeurs horizontaux permettent de traiter une grande quantité de poudre de l'ordre d'une tonne. Ils sont bien plus adaptés à la production industrielle qu'en recherche et développement [31]

- **Broyeur planétaire**

Dans de tels types de broyeurs connus comme broyeurs centrifuges, les jarres dans lesquelles on place les billes sont fixées sur des satellites tournants, lesquels sont montés sur un plateau tournant. Les jarres de rayon r tournent avec une vitesse angulaire Ω_1 , le plateau de rayon R tourne avec une vitesse angulaire Ω_2 (figure I. 7). Le broyage agit soit par chocs, soit par frottements. La température moyenne des jarres est comprise entre 50°C et 120°C , suivant la vitesse des billes; l'élévation locale de température est comprise entre 60 et 300°C [32]. Pour éviter que l'échauffement soit trop important, le broyage est en général réalisé en plusieurs cycles interrompus par des périodes de repos. L'état stationnaire est stabilisé après 24 h à 100 h de broyage, suivant les matériaux broyés.



Figure(I.7) : Schéma d'un broyeur planétaire (vue de dessus). [28]

f) Paramètre de broyage

Les poudres de départ et celles obtenues après broyage dépendent de nombreux paramètres tels que :

- L'intensité du broyage qui est un paramètre critique en mécanosynthèse, car elle mesure l'énergie de broyage qui est directement proportionnelle à la puissance générée durant le processus de broyage.
- L'un des problèmes cruciaux en mécanosynthèse est la contamination. Cette dernière peut être liée aux outils de broyage (nature des billes et des jarres), à l'atmosphère dans laquelle se fait le broyage (l'argon ou l'azote). Pour minimiser cette contamination, différents matériaux peuvent être utilisés comme outils selon la nature des poudres étudiées et les jarres préparées sous atmosphère d'argon dans une boîte à gants.
- L'utilisation des différents types de broyeurs peut conduire à différents mécanismes et cinétiques de formation pour le même mélange. De plus, l'énergie de broyage, qui varie selon les vitesses de rotation des jarres, joue un rôle important dans la formation des alliages et la nature des poudres finales.
- Le rapport masse des billes sur celle de poudres, est un paramètre important en mécano synthèse. En effet, plus le rapport est grand, plus il s'avère néfaste pour le processus de broyage. Le rapport le plus utilisé est compris entre 10/1 et 20/1[10].

I.7. Changement de la structure

La structure et la taille des particules des poudres broyées dépendent des propriétés mécaniques des poudres initiales. On distingue trois types de mélanges de poudres.

I.7.1. Les mélanges ductiles-ductiles

Le broyage de poudres ductiles-ductiles conduit à la formation d'une structure lamellaire alternée des éléments de départ durant les premières heures. Au cours du broyage, les déformations plastiques réduisent les différences entre les lamelles jusqu'à ce qu'elles ne soient plus détectables. Le broyage prolongé conduit à l'homogénéisation de la taille des particules.

I.7.2. : Les mélanges ductiles-fragiles

Durant le broyage, les particules fragiles sont fragmentées et les fragments formés se mélangent aux particules ductiles. Une fine dispersion de la phase fragile dans la matrice ductile est réalisée si les particules fragiles ne sont pas solubles dans la matrice.

I.7.3. Les mélanges fragiles-fragiles

Dans ce type de mélange, on s'attend à ce que le broyage ne conduise qu'à une réduction de la taille des particules sans mélange réel des éléments. Cependant certains cas des solutions solides d'éléments fragiles ont pu être élaborés [10].

I.8. Applications industrielles des alliages Fe-Ni

On peut distinguer trois grandes applications des alliages Fe-Ni :

- Les alliages pour l'électrotechnique miniaturisée, utilisés sous formes des fils, des bandes d'épaisseurs de 0.1 à 2 mm, des grilles...etc ;
- Les alliages à très hautes perméabilités, généralement des bandes de faibles épaisseurs et sous forme de circuits bien traités ;
- Les alliages à cycles d'hystérésis spéciaux, que l'on retrouve principalement dans le domaine de l'électronique, tel que les dispositifs de sécurité.

Le tableau ci-dessous résume quelques applications de l'alliage Fe-Ni suivant leurs propriétés magnétiques [33].

Tableau(I.1) : Applications de Fe-Ni. [34]

Domaine	Type du FeNi	Applications
Horlogerie	Fe-80Ni	Le stator du moteur pas à pas, les noyaux magnétiques
Blindage électromagnétique	Fe-50Ni	Des tôles sandwich pour la protection contre les spectres électromagnétiques
Domain de l'automobile	Fe-50Ni	les capteurs mesurant le positionnement précis des roues
	Fe-36Ni	Les alliages réfractaires pour les joints de culasses -injecteurs pour automobile
Électronique	Fe-80Ni (permalloy)	la réalisation des profils destinés à divers composants magnétiques et modems, filtres de téléphonie mobile.....
	Fe-41Ni	Les supports des circuits intégrés, les pièces décantons à électrons TVC, condensateurs.....
Applications particulières de l'invar (prix nobel 1920)	Fe-36Ni	Les cuves de méthaniers, les pipes pour transfert de fluides cryogéniques, les moules des coques composites des avions (Boeing et Airbus) et spatiaux, les boîtiers de composants électroniques, les armatures de télescope spatial, les dissipateurs thermiques, les pièces de machines-outils, etc.

I.8.1. Quelques applications industrielles des alliages FeNi

a) Horlogerie

Les alliages FeNi sont présents dans le monde prestigieux et innovant de l'horlogerie. Le mouvement des aiguilles de montres classiques analogiques est assuré par un moteur électrique pas à pas de type LAVET. Ce moteur comporte un rotor bipolaire constitué d'un aimant permanent, un stator découpé dans une bande d'alliage magnétique doux et un noyau bobiné en alliage magnétique doux éventuellement différent de celui dont est constitué le stator [35].

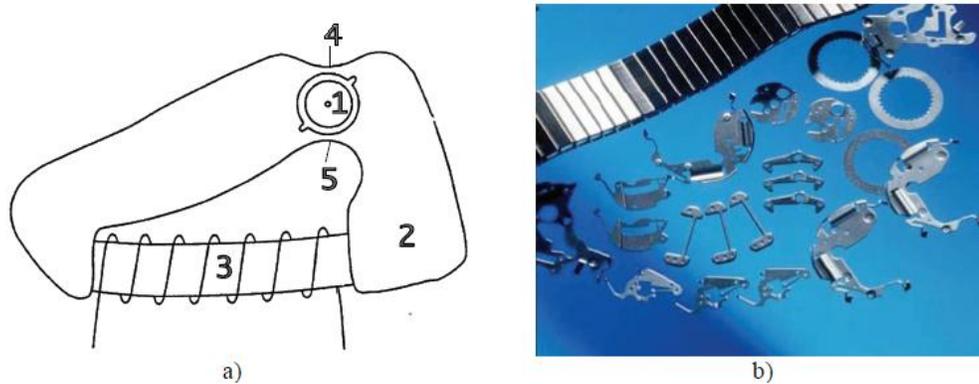


Figure (I.8) : a) moteur électrique de montre du type LAVET, b) pièces de montres et de contact, ressorts [36].

b) Domaine de l'automobile

Capteurs et pièces: dans le domaine de l'automobile, les constructeurs intègrent une part croissante de capteurs et d'actionneurs. Dans le domaine particulier de la direction assistée électrique, l'alliage Fe-50%Ni est utilisé dans un capteur de couple, il permet d'avoir une mesure précise du positionnement des roues. Des alliages réfractaires qui tiennent à la fois mécaniquement, à l'oxydation, et également aux hautes températures sont utilisés pour les joints de culasses (Figure 1.9).



Figure(I.9): alliages réfractaires pour joints [36]

c) Alliages magnétiques pour pièces d'injecteurs :

L'injection automobile est en particulier faite par des piézoélectriques qui font un couplage électrique mécanique. Des bases en Fe-36%Ni (Invar) sont associées à ces

injecteurs piézo céramiques pour faire en sorte que l'injecteur ne bouge pas, quelle que soit la température du compartiment moteur [35].

d) Courroie de transmission variable :

Pour camions ou automobiles qui ne disposent pas de boîte de vitesse à pignons mais d'une boîte de vitesse "continûment variable". Les pignons sont remplacés par des cônes et une bande vient transmettre les couples en passant d'un cône un autre. Les alliages utilisés à cet effet sont des alliages Maraging (aciers spéciaux FeNiMbCo), ils tiennent des limites élastiques jusqu'à 2000 MPa avec des tenues à la « fatigue » très importantes. Cette technologie est très pointue et le niveau d'exigence est très élevé [35].



Figure (I.10). Alliages pour transmission à variation continue [36]

e) Quelques applications potentielles des FeNi – Complément

Dispositifs de mesure de température et de marquage de dépassement de température, sans contact Les méthodes interrogatives pour la mesure de température sans contact peuvent être utilisées en se basant sur l'analyse du spectre harmonique du signal en sortie. La chaîne de mesure (Figure 1.11) se scinde en deux parties indépendantes : étiquette magnétique en FeNi (partie passive) et système d'interrogation à distance (partie active) [35].

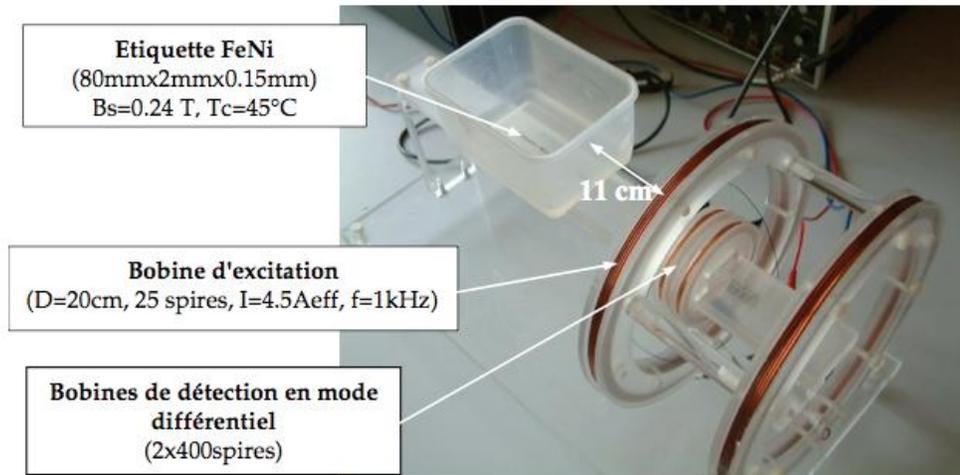


Figure (I.11). Mise en scène des mesures de dépassement de T_c seuil. [36]

I.9. Travaux de recherche sur le système Fe-Ni

S. Lamrani et al. [37] ont élaboré des poudres nanostructurées $Fe_{80}Ni_{20}$ à l'aide du vario-broyeur planétaire P4, pour différents temps de broyage du 3 à 25 h. Ils ont montré que la solution solide Fe(Ni) commence à se former de 6 h de broyage. La formation totale du composé FeNi a été mise en évidence à partir de 10 h de broyage. Le paramètre de maille augmente au cours du broyage pour atteindre la valeur de 0.28668 nm après 25 h de broyage. La taille des grains diminue pour atteindre une valeur minimale de 11 nm après 25 h de broyage. Parallèlement à cela, le taux de microdéformation augmente jusqu'à la valeur de saturation de 0.811 % après 25 h.

Florin Popa [38] a élaboré des alliages Ni-Fe par mécanosynthèse pour trouver les conditions optimales pour l'élaboration du composé intermétallique Ni_3Fe à des meilleures propriétés magnétiques dans de futures applications. Et trouver le temps minimum pour améliorer ses propriétés magnétiques.

Abderrahim Guittoum [28] a montré à l'aide de DRX et EDX qu'après 8 h de broyage, le composé $Fe_{80}Ni_{20}$ est formé, et au-delà de 8 h tous les atomes de Ni se sont dissous dans la matrice de Fe qui donne lieu à la formation de la solution solide Fe(Ni) de structure cubique centrée (cc). Des caractérisations des spectres Mössbauer confirment le fait qu'après 8 h, seule la phase $Fe_{80}Ni_{20}$ existe. Pour les temps de broyage, $t < 12$ h, les spectres Mössbauer ont été simulés par un sextuplet correspondant à la phase (cc) $Fe_{80}Ni_{20}$

($t = 8$ h) et à la phase (cc) Fe ($t < 8$ h) avant la formation de la solution solide Fe(Ni). Une augmentation de la durée de broyage cause une augmentation du paramètre de maille, a (nm) et une diminution de la taille des grains, D (nm). Pour la plus longue durée de broyage, la valeur de a (nm) est très proche de celle du massif et celle de D est de 11 nm. L'aimantation à saturation diminue lorsque le temps de broyage augmente; ce comportement est peut-être dû à l'augmentation du nombre d'atomes dans les joints de grains. Le champ coercitif augmente pendant le stade de formation de l'alliage, probablement dû à l'introduction des contraintes dans le matériau. Une fois l'alliage formé, un broyage de plus induit une diminution de H_c , qui peut être associée à une réduction de la taille des grains. De faibles valeurs de la taille des grains (11 nm) et un comportement doux ($H_c = 4$ Oe) sont atteints après 36 h de broyage.

R. Hamzaoui et al. [39] ont élaboré à l'aide d'un broyeur PM 400 et un Variobroyeur (P4), une phase bcc-Fe (Ni) de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$. Ils ont découvert que plus la puissance de choc est élevée, plus le paramètre de réseau est grand ($a = 0,2870$ et $0,2871$) et plus la taille des cristallites est faible (10 et 9,6 nm). Les spectres de Mössbauer des alliages enregistrés à 77 et 300K qui sont typiques d'alliages ferromagnétiques désordonnés Enfin, Une telle aimantation est seulement modifiée par la diminution de la taille des cristallites et par l'augmentation du paramètre de réseau. Par conséquent, le broyage mécanique s'est avéré convenir à la production de poudres magnétiques douces de $Fe_{80}Ni_{20}$ Nanocristallin magnétique.

H. Schönrrath et al [40] est formé un alliage homogène $FeNi_3$ par LBM à partir d'un mélange binaire de poudres de Fe et Ni disponibles ayant la composition de Fe 78,5 Ni21,5. Les échantillons obtenus ont été trouvés produisant une anisotropie magnétique uniaxiale importante. Par conséquent, la fabrication additive des alliages magnétiques peuvent permettre d'ajuster la direction et la magnitude de l'aimantation et l'anisotropie magnétique des futurs appareils.

Bünyamin Alım et al [41] a fait une étude sur les matériaux magnétiques Fe_xNi_{1-x} qui jouent un rôle important dans la recherche fondamentale et appliquée en raison de l'avance rapide de la magnéto-électronique. Certains membres de la famille des alliages Fe_xNi_{1-x} présentent une combinaison intéressante magnétostriction, une faible coercivité

et haute perméabilité, ce qui en fait le matériau de choix pour supports d'enregistrement magnétiques, capteurs et magnétiques non volatiles mémoire à accès aléatoire.

W.R Michael et al. [42] ont fabriqué l'alliage $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ par mécano synthétise, ils ont trouvé qu'après 960 min la taille de cristallite est environ 11 nm. Les paramètres magnétiques montrent que la réduction de la taille et le soudage à froid des particules entraînent une augmentation de la rémanence et une diminution du coercivity ainsi qu'une augmentation des interactions magnétostatiques.

II. ÉTUDES MAGNÉTIQUES

II-1 : Origine du magnétisme.

Le magnétisme de matériau est la conséquence des mouvements des électrons gravitant autour du noyau des atomes. On effectue un électron tournant sur une orbitale est une charge électrique en mouvement qui engendre un champ magnétique, de plus l'électron tourne sur lui-même, c'est le spin de l'électron, cette rotation de spin engendrera aussi un champ magnétique, le mouvement orbital et le spin génère donc des dipôles magnétiques qui sont caractérisés par un moment magnétique et qui seront influencés par l'application d'un champ magnétique extérieur (figure-II.1).

Le moment magnétique orbital : $M_o = m\mu_B$ ($M_o \equiv \mu_L$), où m est le nombre quantique magnétique associé à l'électron et $\mu_B = (e \hbar / 2me) = (eh/4 \pi me)$ est le magnéton de Bohr [43-44]. Où $\hbar = h/2\pi$ (constante de Planck ($6,63 \cdot 10^{-34}$ Js) divisée par 2π), (e : charge de l'électron $1,6 \cdot 10^{-19}$ C), (m : masse de l'électron ($9,11 \cdot 10^{-31}$ kg)).

L'influence des nucléons sur le moment magnétique atomique peut être négligée à cause de la masse des nucléons comparativement à la masse de l'électron (le rapport entre les masses des nucléons et électron est de 1/1836,5). Le moment magnétique de spin est : $M_S = \pm \mu_B$, ($M_S \equiv \mu_S$), selon que le spin de l'électron est égal à $\pm 1/2$.

Le moment magnétique net de l'atome sera égal à la somme vectorielle des moments magnétiques orbitaux et de spins de tous les électrons gravitant autour du noyau de cet atome.

Si deux électrons sont appariés, c'est-à-dire ont de spins opposés, leurs moments magnétiques de spins sont des signes opposés et s'annulent, ces deux électrons ne contribuent pas au moment magnétique global de l'atome, de plus le moment magnétique résultant des électrons de toute couche ou sous-couche électrique est nul, le moment magnétique net de l'atome dépendra donc seulement des électrons appartenant aux couches électroniques extérieurs pour lesquelles la somme des nombres quantiques n 'est pas nulle.

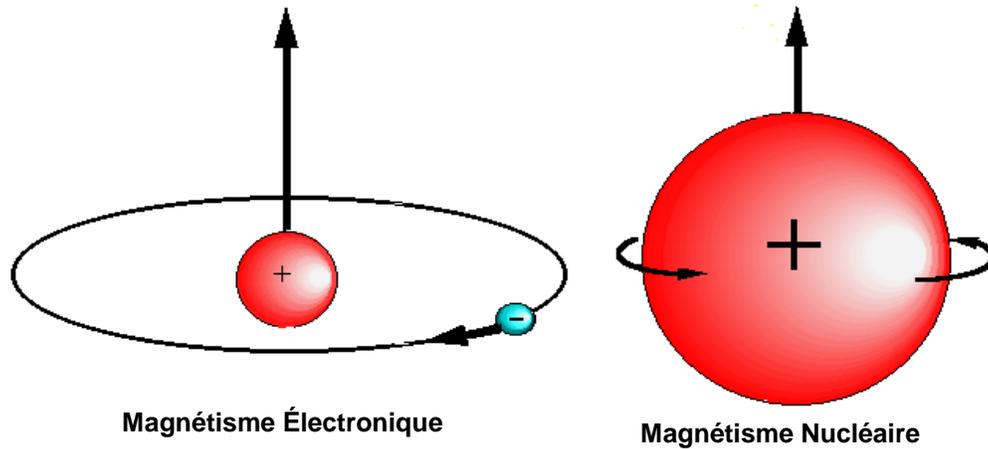


Figure (II-1): Origine du magnétisme dans la matière. [45]

II-2 : Classification des matériaux magnétiques.

Les propriétés magnétiques intrinsèques d'un matériau sont la température d'ordre magnétique (température de Curie dans les corps ferromagnétiques), l'aimantation à saturation et certains types d'anisotropie magnétique. Pour la plus part des applications, la température d'ordre doit être supérieure à l'ambiante, ce qui explique l'intérêt porté aux matériaux qui sont à base d'éléments de transition (Fe, Co, Ni et éventuellement Mn) [46].

Cependant, la recherche d'une forte aimantation à saturation tend à privilégier les matériaux à base de Fe ou de Co. Une autre caractéristique importante des matériaux magnétiques est la coercivité. Celle-ci est de nature extrinsèque et est étroitement liée à la microstructure du matériau. Selon le domaine d'application, les matériaux magnétiques sont classés en trois grandes catégories: matériaux durs, matériaux pour l'enregistrement magnétique et matériaux magnétiquement doux (figure II.2) [47-48] :

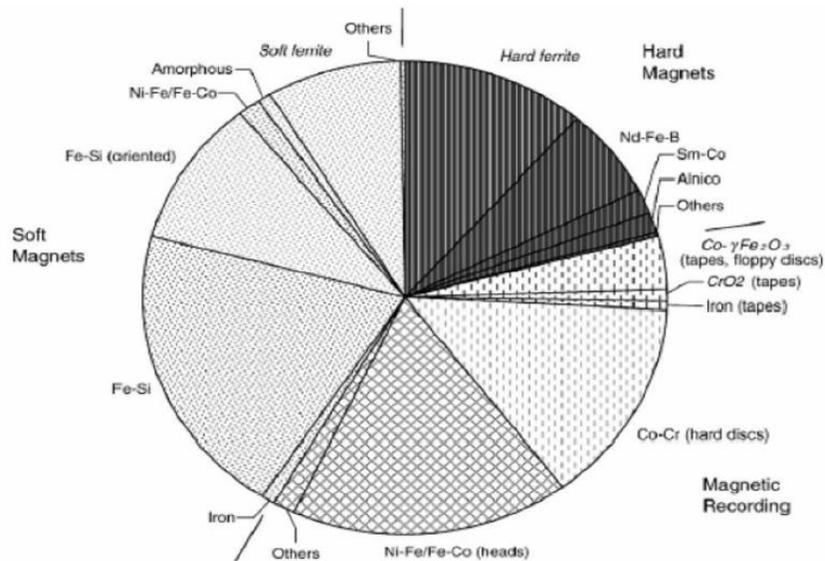


Figure (II. 2). Types de Matériaux magnétiques selon leurs domaines d'applications [49-13].

Comme nous avons vu l'origine du magnétisme se trouve, donc, dans le mouvement orbital et de spin des électrons et dans la façon dont les moments correspondants interagissent entre eux [43-45]. La meilleure façon de classer les matériaux du point de vue magnétique est de considérer la valeur de leur moment magnétique atomique. Les matériaux qui ont un moment magnétique non nul, ne peuvent être classés en fonction de l'interaction qui existe ou qui n'existe pas entre les moments magnétiques atomiques (figure- II-3).

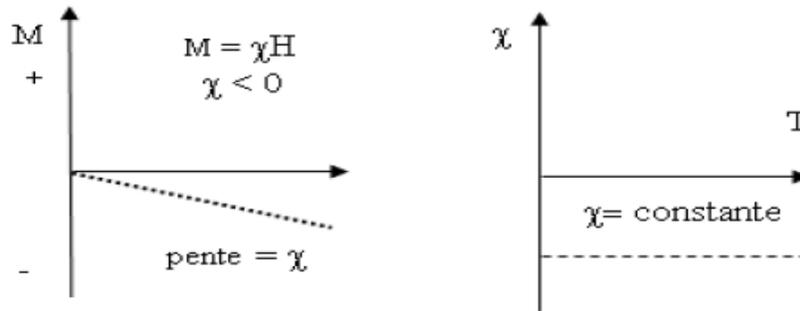
Les matériaux paramagnétiques sont ceux qui ne présentent aucune interaction magnétique collective et ne sont pas magnétiquement ordonnés [45]. Les matériaux ferromagnétiques, antiferromagnétiques ou ferrimagnétiques présentent un ordre magnétique à longue distance en dessous d'une certaine température critique [50]. Les matériaux ferromagnétiques et ferrimagnétiques sont généralement ceux que nous considérons comme étant magnétiques (se comportant comme le fer, ils peuvent présenter une aimantation macroscopique). Les trois autres catégories sont si faiblement magnétiques qu'elles sont généralement considérées comme des "non magnétiques".

II-2.1 : Diamagnétisme.

Le diamagnétisme est une propriété fondamentale (intrinsèque) de la matière, (Conséquence de la loi de Lenz) mais elle est généralement très faible. L'origine du

diamagnétisme est le comportement non coopératif des électrons lorsqu'ils sont exposés à un Champ magnétique appliqué. Les substances diamagnétiques sont composées d'atomes qui n'ont pas de moments magnétiques permanents (toutes les couches électroniques sont remplies et tous les électrons sont appariés).

Toutefois, lorsque le matériau est exposé à un champ, une aimantation induite s'oppose à la direction du champ magnétique et donc la susceptibilité est négative [43-44]. Si nous traçons $M = f(H)$ et l'évolution de la susceptibilité magnétique en fonction de la température, les matériaux diamagnétiques sont caractérisés par une susceptibilité négative, indépendante de la température (figure-II.3).



Figure(II.3). Évolution de l'aimantation (M) en fonction du champ magnétique appliqué (H) pour un matériau diamagnétique et l'évolution de la Susceptibilité (χ) en fonction de la température (T) [51].

Notons que lorsque le champ est zéro, l'aimantation est nulle. Ces matériaux sont caractérisés en général par une perméabilité magnétique relative $\mu_r < 1$ et des valeurs de la susceptibilité comprises entre 10^{-5} et 10^{-6} .

II-2.2 : Paramagnétisme.

Dans cette classe de matériaux, quelques-uns des atomes ou des ions dans le matériau ont un moment magnétique permanent en raison des électrons non appariés dans des couches électroniques partiellement remplies [43-52]. Toutefois, les moments magnétiques individuels ne sont pas ordonnés magnétiquement, et l'aimantation est nulle lorsque le champ est supprimé. En présence d'un champ, il y a maintenant un alignement partiel des moments magnétiques atomiques dans la direction du champ magnétique, ce qui conduit à une aimantation positive et une susceptibilité positive.

En outre, l'efficacité du champ magnétique dans l'alignement des moments magnétiques est combattue par les effets de la température (agitation thermique). Il en résulte une susceptibilité dépendant de la température, connue sous le nom de loi de Curie :

$$\chi = \frac{C}{T} \quad (\text{II.1})$$

Où C : Constante de Curie

T : Température

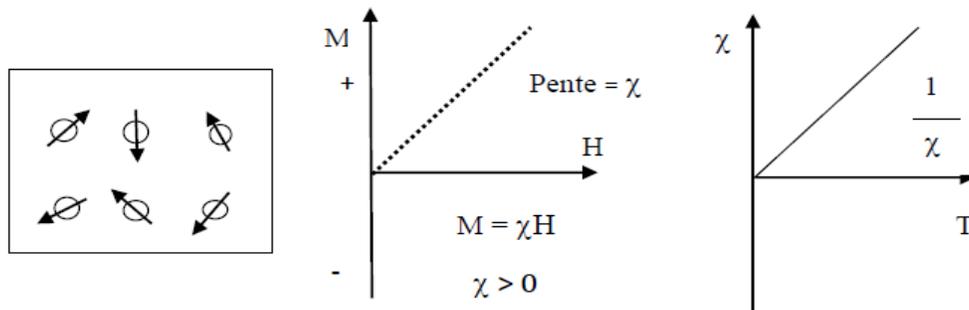


Figure (II.4) : Évolution de l'aimantation (M) en fonction du champ magnétique appliqué (H) pour un matériau paramagnétique et évolution de la susceptibilité (χ) en fonction de la température (T) [52].

A des températures normales et dans des domaines de champs magnétiques modérés, la susceptibilité paramagnétique est petite (10^{-3} – 10^{-5}) mais, plus grande que dans le cas des substances diamagnétiques. À moins que la température soit très basse ($T \ll 100$ K) ou que le champ soit très élevé, la susceptibilité paramagnétique est indépendante du champ appliqué (figure-II.4). Ces matériaux sont caractérisés en général par une perméabilité magnétique relative $\mu_r > 1$.

II-2.3 : Ferromagnétisme.

Contrairement aux matériaux paramagnétiques, les moments atomiques dans ces matériaux présentent une très forte interaction. Ces interactions d'échange quantique donnent naissance à un alignement parallèle ou antiparallèle des moments magnétiques atomiques [43-50]. Les interactions d'échanges sont très grandes, de l'ordre de 1000 Tesla, soit environ 1100 millions de fois la force du champ terrestre [53]. L'interaction d'échange est un phénomène quantique dû à l'orientation relative des orbitales électroniques atomiques.

Les matériaux ferromagnétiques présentent un alignement parallèle des moments, conduisant à une forte aimantation même en absence d'un champ magnétique (aimantation spontanée). Mais comment expliquons-nous la nécessité d'un champ extérieur pour aimanter un ferromagnétique si ce dernier possède sa propre aimantation ? La réponse a été formulée par Pierre Weiss en 1907. En effet, les moments magnétiques de chaque matériau se regroupent dans des volumes qui s'appellent "domaines", selon leurs différentes orientations (figure-II.5). Les domaines possédant une orientation aléatoire annulent le champ macroscopique.

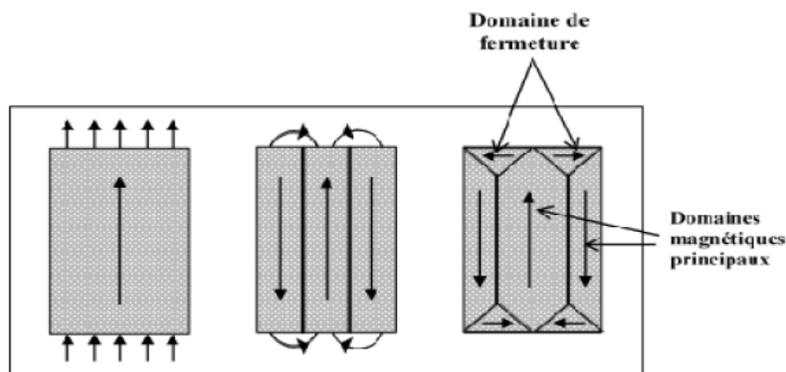


Figure (II.5): Configuration en domaines dans le matériau ferromagnétique. [51]

Les domaines de Weiss sont séparés entre eux par des parois. On peut donc imaginer une subdivision de ces domaines et l'apparition de parois (figure II.6). Cela fait appel à une énergie compensant celle qui devrait être à l'extérieur si tous les moments étaient alignés.

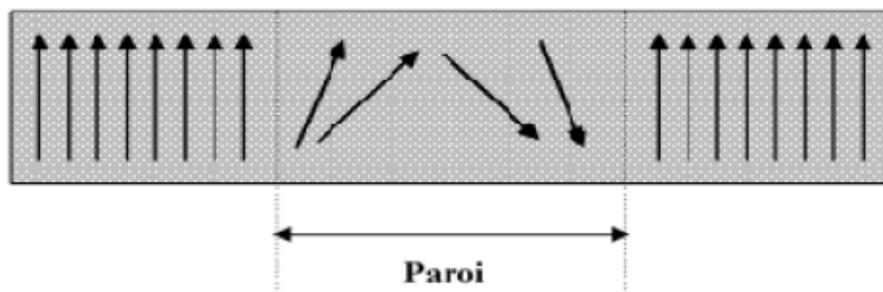


Figure (II.6) : La paroi de Bloch [51]

Les parois ont une épaisseur de l'ordre de quelques centaines d'Angström. A l'intérieur de la paroi, le changement d'orientation de l'aimantation se fait quasi continûment. Les moments des différents domaines étant dirigés dans toutes les directions, l'aimantation macroscopique globale est alors nulle [54], ceci malgré l'aimantation spontanée à saturation de chaque domaine pris séparément. Pour obtenir une aimantation macroscopique, un champ appliqué est alors indispensable. En effet, sous un champ magnétique, tous les domaines dont l'orientation est proche de celle du champ se trouvent favorisés énergiquement : leurs parois se déplacent, les domaines orientés dans le sens du champ croissent au détriment des autres. En outre, les moments des autres domaines tentent de s'orienter dans la même direction que le champ appliqué.

Ces phénomènes contribuent à l'aimantation macroscopique du matériau, ceci dans le même sens que le champ excitant. Si on augmente davantage ce dernier, la substance tend alors vers un domaine unique, et l'aimantation tend à la saturation. Les principaux matériaux ferromagnétiques sont le fer, le cobalt, le nickel, le gadolinium, et leurs alliages. Il faut toutefois signaler que certains alliages de fer ne sont pratiquement pas ferromagnétiques, tels que l'alliage 80% fer, 12%Mn et l'alliage 68%Fe 32%Ni qui se comportent comme des matériaux paramagnétiques. Il en est d'ailleurs de même pour tous les matériaux ferromagnétiques au-dessus d'une température dite "de Curie" exemple : (T_c : fer = 770°, Ni=358°, Co=1 127°).

Par contre, certains alliages comme l'alliage 61%Cu, 23,5%Mn, 15%Al sont fortement ferromagnétiques alors que, tous les constituants pris séparément, ne possèdent pas des propriétés ferromagnétiques [55].

a) Principaux types de matériaux ferromagnétiques doux usuels.

Il existe deux principaux types de matériaux ferromagnétiques doux permettant de limiter les courants de Foucault dans les applications où l'induction est variable : les matériaux faits de tôles isolées et les matériaux faits de poudre de fer dont les particules sont isolées. Les premiers sont les plus répandus dans les applications à basse fréquence qui représentent la plus grande partie du marché en termes de tonnage. Ils sont généralement à base de fer, de silicium, de Nickel et de Cobalt (plus d'autres éléments additionnels, dans la réalisation des alliages afin d'être économique et performants) qui

sont les trois principaux éléments simples ferromagnétiques à l'état naturel. Les seconds sont les plus utilisés aux fréquences élevées. Dans les filtres des étapes continus et dans les culasses de rotor à aimants, les matériaux massifs peuvent être utilisés (généralement des aciers faiblement alliés). Les matériaux ferromagnétiques doux usuels peuvent être classés en fonction de leur structure et de leurs constituants suivant le diagramme de la (figure-II.7).

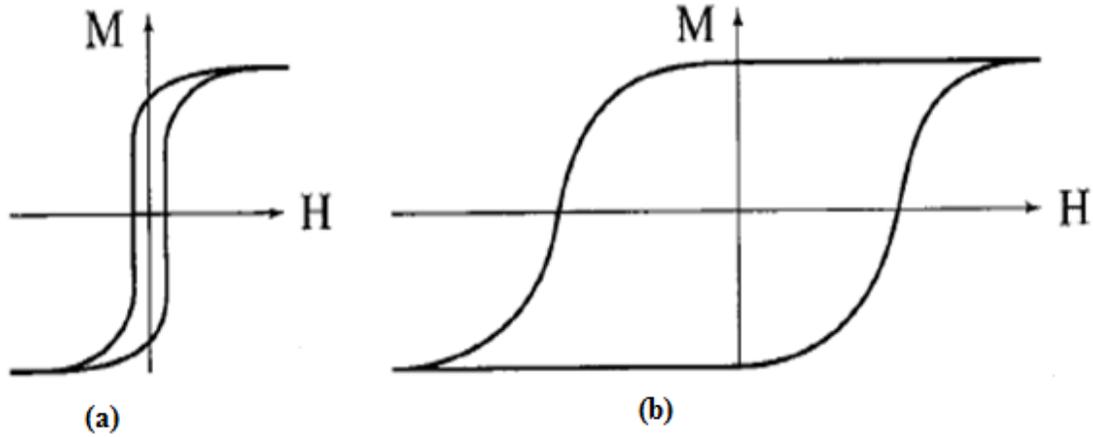
Figure(II.7): Classification des principaux types de matériaux ferromagnétiques doux

[51]

On distingue différentes catégories de matériaux ferromagnétiques: les matériaux doux et les matériaux.

- Matériaux doux (figure-II.8) ont une capacité faible à réagir à un champ magnétique extérieur de faible intensité; ils se caractérisent par une aimantation rémanente M_r et un champ coercitif (H_c) faible. Les matériaux doux servent de guide au flux magnétique (transformateurs ou moteurs); dans d'autres applications, ils sont capables de détecter la présence d'un champ magnétique de très faible intensité (têtes de lecture, capteurs).

- Matériaux durs (figure-II.8), tel que l'acier, présentent un champ coercitif important. Ils sont utilisés pour réaliser des aimants permanents.



Figure(II.8): Courbe d'aimantation pour un matériau ferromagnétique

(a) matériau ferromagnétique doux, (b) matériau ferromagnétique dur. [56]

II-2.4 : Antiferromagnétisme.

Dans le cas des matériaux antiferromagnétiques, les moments magnétiques interagissent entre eux, mais ces substances sont constituées en général de deux réseaux magnétiques dont les moments magnétiques sont couplés antiparallèlement [43-50]. Les aimantations des deux réseaux se compensent et les matériaux antiferromagnétiques ne présentent pas d'aimantation macroscopique.

Les matériaux antiferromagnétiques ont également une rémanence nulle, pas d'hystérésis, mais une susceptibilité faible et positive qui varie d'une manière particulière avec la température comme s'est illustré dans la (figure-II.9). La clé de l'antiferromagnétisme est le comportement de la susceptibilité au-dessous d'une température critique, la température de Néel (T_N) [52]. En dessus de la température de Néel, la susceptibilité suit la loi de Curie – Weiss:

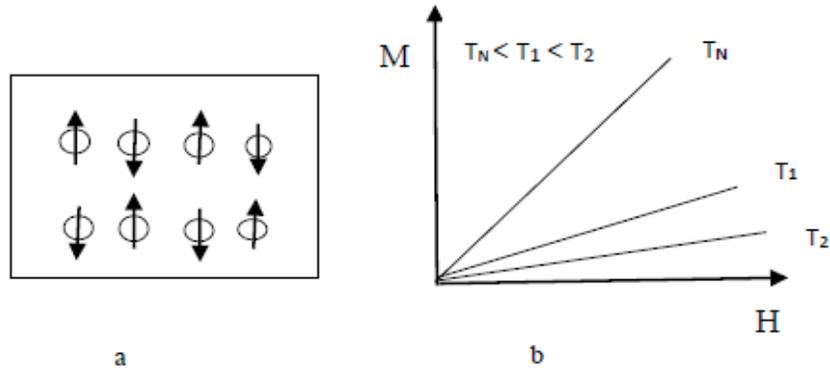


Figure (II.9) : Illustration schématique des deux sous-réseaux d'un matériau antiferromagnétique couplé antiparallèlement (a), évolution de l'aimantation en fonction de la température (b). [51]

II-2.5 : Ferrimagnétisme.

Des formes les plus complexes d'ordre magnétique peuvent se produire en raison de signe de couplage d'échange et la valeur de l'aimantation des sous-réseaux magnétiques. Dans les ferrimagnétiques, les moments magnétiques des sous-réseaux A et B ne sont pas égaux, l'interaction d'échange est négative, comme dans les antiferromagnétiques et le comportement magnétique se traduit par une aimantation spontanée similaire au ferromagnétiques [43-52].

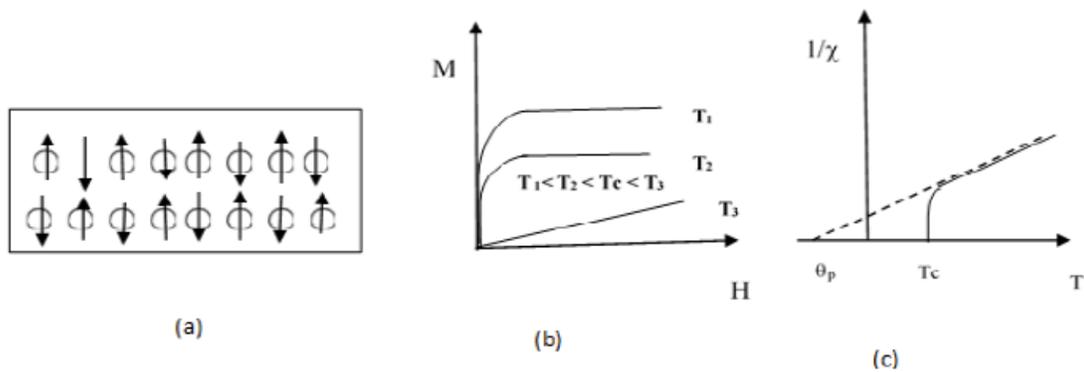


Figure (II.10): Structure magnétique d'un matériau ferrimagnétique (a), évolution de l'aimantation en fonction de la température (b) et évolution de la susceptibilité magnétique en fonction de la température (c) [51].

Le ferrimagnétisme présente donc des similitudes avec le ferromagnétisme. Les matériaux ferrimagnétiques présentent de nombreuses caractéristiques des matériaux ferromagnétiques : aimantation spontanée, température d'ordre, hystérésis et rémanence. Toutefois, ferro-et ferrimagnétiques sont très différents au niveau de l'ordre magnétique. Par exemple, l'évolution de $1/\chi$ pour les ferrimagnétiques présente une augmentation

rapide au voisinage de la température de Curie (Figure-II.10 (c)). Quant aux ferrites dures elles répondent actuellement à plus de la moitié des besoins industriels [12] bien que leur aimantation rémanente soit modeste. Elles sont utilisables dans la fermeture magnétique des portes, dans les mémoires à tore magnétique, etc

II.3. Domaines magnétiques

La décomposition des matériaux magnétiques en domaines aimantés se fait dans le but de diminuer l'énergie interne (globale), et c'est pour cette raison que l'arrangement des domaines aimantés est tel que l'énergie magnétostatique qui est d'un ordre de grandeur plus grand que les autres formes d'énergie qui peuvent intervenir soit minimisée. Néel et Lifshitz [57] proposent un système de domaines dont le rôle est de fermer le flux magnétique à l'intérieur de la matière. De tels domaines ont été appelés par Néel domaines de fermetures. Nous pouvons comprendre les domaines de fermeture en considérant les structures sur la figure (II.11), chacune de ces structures représente la coupe d'un monocristal ferromagnétique.

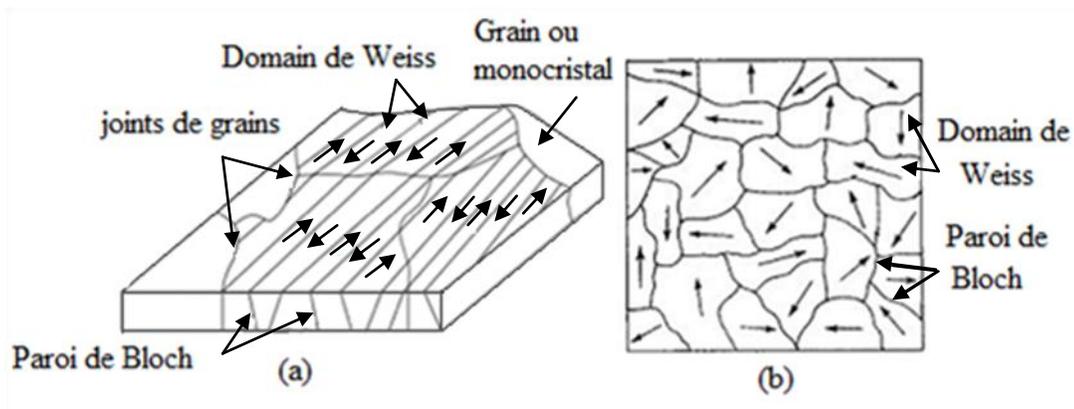
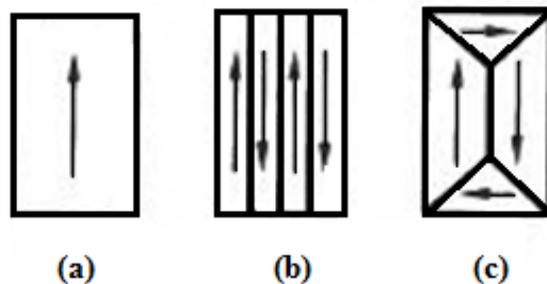
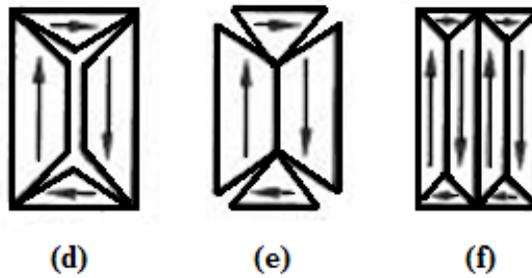


Figure (II. 21): Domaine de Weiss et parois de Bloch [58].





Figure(II.12) : origine des domaines. [58].

En (a) nous avons un seul domaine (mono domaine) qui avait une haute valeur d'énergie magnétique.

En (b) l'énergie magnétique peut être réduite de moitié (domaines aimantés en sens opposés).

En (c) avec N domaines magnétiques, les faibles étendues du champ dans l'espace réduisent l'énergie magnétique à $\frac{1}{N}$ de sa valeur en (a).

Pour les arrangements (d) et (e) l'énergie magnétique est nulle, les limites entre les domaines au voisinage des extrémités du cristal forment des angles égaux.

Donc les domaines sont constitués de telle sorte que les lignes de flux au lieu de déboucher à l'extérieur se referment à l'intérieur de la matière supprimant ainsi le champ extérieur, d'où l'appellation de «domaines de fermetures ».

Dans le cas idéal d'un monocristal ferromagnétique taillé avec ses direction de facile aimantation parallèle à sa surface on obtient des structures simples (figure II.13) constituées de domaines principaux séparés par des parois de Bloch à 180° et de domaines secondaires ou de fermeture qui mettent en jeu généralement des parois à 90° plus complexes [59]. Le caractère magnétique vient des atomes qui possèdent une couche électronique incomplète (couche 3d des métaux de transition (MT) et couche 4 f des métaux de terre rare (TR)). Ces moments magnétiques sont la superposition de différentes Contributions [6]:

- 1) La contribution orbitale de moment magnétique due à la rotation des électrons autour du noyau.
- 2) La contribution de spin du moment magnétique due à la rotation d'un électron autour de lui-même.

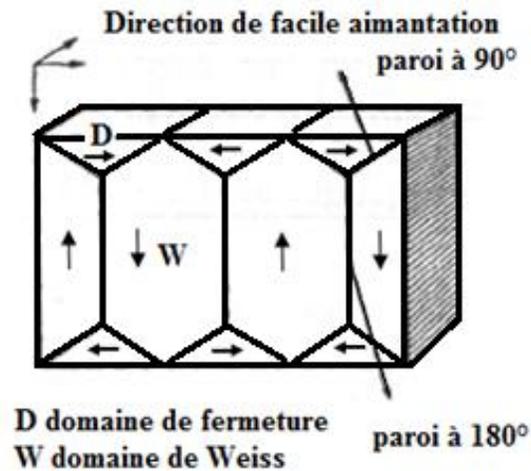


Figure (II.13) : Structure magnétique d'un monocristal cubique[58].

II. 3. 1. Matériaux magnétiques durs

Les matériaux magnétiquement durs s'aimantent et se désaimantent difficilement. Les principales caractéristiques de ces matériaux sont: une aimantation rémanente notable, une coercivité supérieure à 1250e [49], une forte énergie d'anisotropie magnétocristalline et de magnétostriction [48] et une température de Curie élevée [46]. Ces matériaux sont utilisés pour la fabrication d'aimants permanents et se répartissent en trois familles: les céramiques en ferrites durs, les métalliques Alnico et les intermétalliques à base de terres rares [60].

II. 3. 2. Matériaux pour la mémorisation de l'information

Une mémoire magnétique est constituée d'une couche magnétique déposée sur un substrat (bandes, disques, tambours...). La création des domaines de mémorisation (0 et 1 binaires) dans la couche magnétique s'effectue par le passage "sans contact" sur la couche d'une tête d'écriture qui envoie un champ magnétique au rythme rapide des impulsions qu'elle reçoit.

La lecture s'effectue de la même manière, sans aucun contact avec une tête de lecture qui est sensible aux champs magnétiques de fuite qui sortent de la couche

magnétique [61]. Ainsi, les matériaux magnétiques candidats pour la mémorisation (milieu magnétique) doivent présenter une aimantation rémanente suffisante, une inversion rapide de l'aimantation et aussi une coercivité suffisamment élevée pour résister aux effacements dus aux effets des champs démagnétisant mais limitée pour permettre ainsi d'autres enregistrements [48].

II. 3. 3. Matériaux magnétiques doux

Les matériaux magnétiquement doux s'aimantent et se désaimantent facilement. Ils sont caractérisés par une forte aimantation à saturation, une faible coercivité (inférieure à 12.5Oe), et une perméabilité importante. Le principal paramètre, souvent utilisé comme un facteur de mérite pour les matériaux magnétiques doux, est la perméabilité relative, qui n'est autre qu'une mesure de la façon dont le matériau répond facilement au champ magnétique (figure II. 14).

Ces matériaux magnétiques sont utilisés dans des applications variées (blindage, disjoncteurs différentiels, transformateurs d'impulsion et HF, filtres, amplificateurs magnétiques..).

II. 3. 4. Matériaux à usages spéciaux

Les alliages à usages spéciaux sont des alliages magnétiques qui sont utilisés quand les alliages FeSi classiques ne peuvent remplir la fonction dans le domaine de l'électrotechnique. On les utilise sous formes variées (massifs, tôles, rubans, fils...) car certains d'entre eux sont faciles à mettre en forme.

Ces alliages se répartissent principalement en quatre grandes familles: les alliages FeNi et FeCo, les amorphes métalliques et les nanocristallins [32].

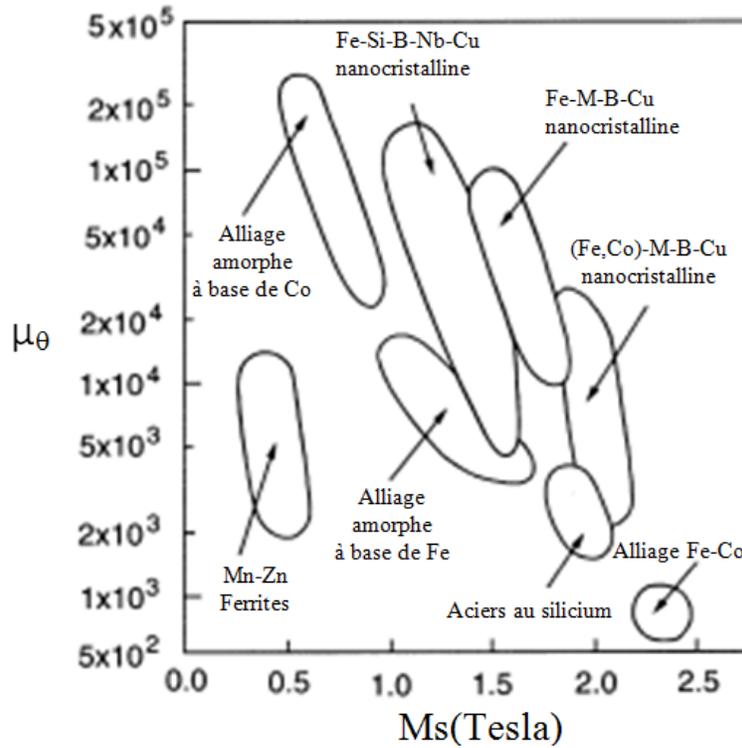
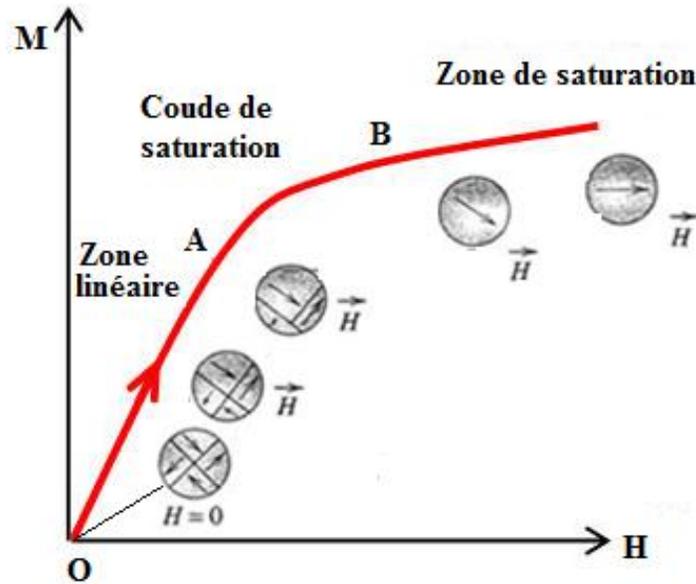


Figure (II. 14). Relation entre la perméabilité (à 1 kHz) et l'induction à saturation pour des alliages magnétiquement doux [47].

II.4. Processus d'aimantation

II.4.1 Courbe de première aimantation

Dans les matériaux magnétiques, les processus d'aimantations sont liés à la structure en domaines magnétiques, et aux déplacements des parois de Bloch. Considérons, un matériau magnétique soumis à l'action d'un champ magnétique H croissant de zéro à des valeurs correspondantes à la saturation magnétique et pour un état de référence correspondant à une aimantation nulle. La variation de l'aimantation (induction) en fonction du champ magnétique à la forme indiquée par la figure (II.15) et on distingue trois régions [6] :



Figure(II.15). Courbe de première aimantation [62].

- La région 1 (Zone linéaire) : Avec l'aimantation globale M (induction)
 - la première région correspond aux déplacements réversibles des parois de Bloch caractérisé par le champ magnétique appliqué H très faible, susceptibilité initiale (ou la perméabilité initiale μ_B et l'amplitude des déplacements est de l'ordre de l'épaisseur de la paroi.
 - La région 2 (Coude de saturation) : Correspond à la partie de plus grande pente où les parois opèrent des déplacements irréversibles et caractérisés par la perméabilité qui passe à valeur maximale B et de grande amplitude par des sauts discontinus nommés sauts de Barkhausen.
 - La région 3 (Zone du saturation): Pour laquelle l'aimantation tend vers une valeur à saturation proche de l'aimantation spontanée M_s , les déplacements des parois sont en grande partie terminés et le matériau tend à devenir mono domaine, les moments magnétiques sont orientés alors selon la direction de facile aimantation qui est la plus proche de celle du champ magnétique appliqué H puis dans la direction de ce champ.

II.4. 2. Le cycle d'hystérésis

Le cycle d'hystérésis ou courbe d'aimantation est une caractéristique du matériau ferromagnétique. C'est une courbe qui illustre la variation de l'aimantation M avec le champ magnétique appliqué, soit $M(H)$. Elle permet d'avoir les paramètres magnétiques relatifs à ce corps, à savoir le champ de saturation H_s , champ à partir duquel l'aimantation gardera sa valeur maximale atteinte, le champ coercitif H_c , champ qui annule l'aimantation globale M , l'aimantation rémanente M_r qui représente l'aimantation que garde le corps lorsque le champ appliqué est nul et l'aimantation à saturation M_s (la valeur maximale de M) qui est une propriété intrinsèque du matériau (figure II.16).

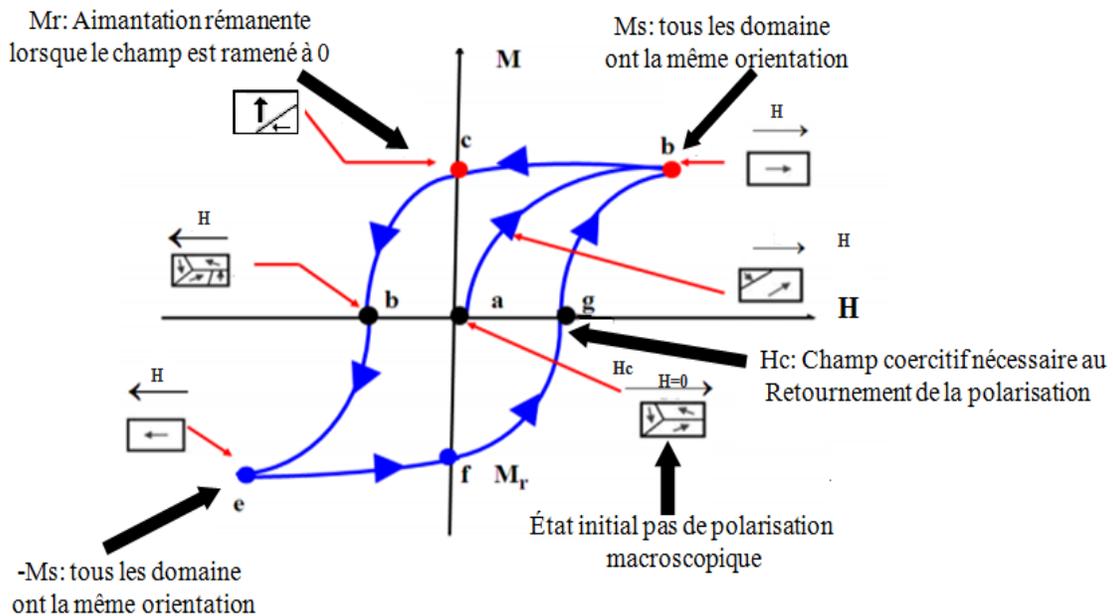


Figure (II. 16). Cycle d'hystérésis. [63]

Ces propriétés magnétiques "techniques" déterminent le champ d'application technologique des matériaux magnétiques. En réalité, la courbe d'aimantation donne le moment magnétique total du corps en unités électromagnétiques (e.m.u. en anglais), et connaissant le volume de celui-ci, on déduit l'aimantation M qui n'est autre que le moment magnétique par unité de volume (en e.m.u./cm³ ou emu/g, en unités cgs). Il faut bien rappeler que ces propriétés liées au cycle d'hystérésis dépendent de l'histoire

magnétique du matériau, des mécanismes d'aimantation, de la structure en domaines, des déplacements de parois, etc... [59]

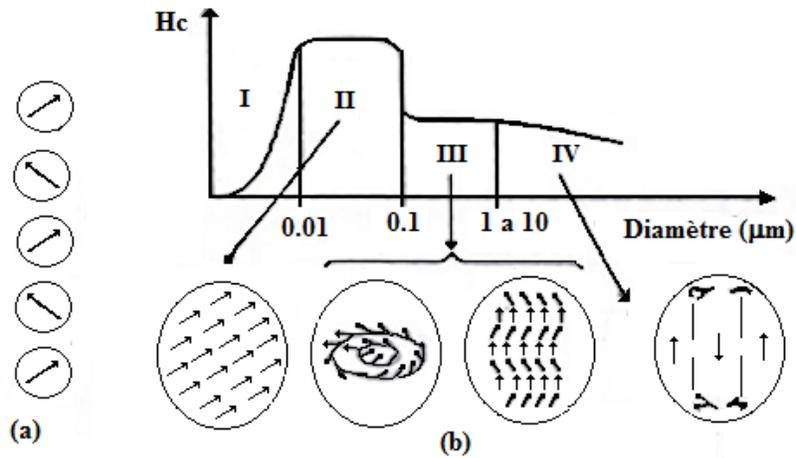
II. 5. Influence de la taille de grain sur les paramètres magnétiques

II.5.1. Influence de la taille de grains fins sur le champ coercitive

Si on diminue la taille d'une particule ferromagnétique sphérique et bi-domaine (figure II.17), on passe obligatoirement par un diamètre critique (D_c) au-dessous duquel l'énergie de la paroi de Bloch (proportionnelle à d^2) devient supérieure à l'énergie dipolaire [59MG]. La paroi ne peut plus se former : la particule est mono domaine. Le diamètre critique (D_c) vaut environ 4 nm, 30 nm et 280 nm respectivement pour une particule isolée de fer, cobalt, nickel et ferrite de baryum [64].

Dans un matériau formé d'un assemblage de grains mono domaines, on réduit ainsi fortement la possibilité de nucléation et de translation des parois, le matériau ne pouvant plus être aimanté ou désaimanté que par rotation des moments magnétiques. Tous les mécanismes qui peuvent stabiliser la direction des moments magnétiques des grains mono domaines deviennent ainsi source de coercitivité [46].

Dans les particules poly domaines correspond une coercitivité assez faible- très faible ($<80\text{Am}^{-1}$) dans le cas des magnétiques doux, une grande part de la perte de l'aimantation et de son inversion- se faisant par déplacement de paroi. Enfin si on diminue la taille des particules au-dessous de 10 nm environ, les forces d'échanges ne sont plus suffisantes face aux fluctuations thermiques et le retournement de l'aimantation s'effectue spontanément. Les particules qui ne présentent plus de coercitivité sont dites super paramagnétiques.



- (a) une chaîne de particules sphériques
 I super paramagnétique, II rotation cohérentes de M ;
 III rotation incohérentes de M ;
 IV particule à plusieurs domaines séparés de Bloch
- (b) Évolution schématique de H_c en fonction du diamètre des particules
- } Particule monodomaines

Figure(II.17) : Influence de la taille des particules sur la coercitivité intrinsèque [46].

III. TECHNIQUES D'ÉLABORATION ET CARACTÉRISATIONS

III.1. Introduction

Ce chapitre illustre les méthodes expérimentales utilisées, il comporte deux parties : La première partie est consacrée aux études structurales des poudres élémentaires utilisées dans l'élaboration de notre alliage. La seconde partie traite les techniques de d'élaboration et caractérisation des propriétés morphologiques, structurales et magnétiques. La mécanosynthèse de l'alliage Fe₈₀Ni₂₀ a été réalisé pour des différent temps de broyage. La cinétique de formation d'alliage considérée et l'évolution des paramètres de maille au cours du broyage ont été étudiées à l'aide de la diffraction des rayons X. L'évolution des propriétés magnétique en fonction de temps de broyage a été étudiée à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM).

III.2. Généralités sur le Fer et le Nickel

Le fer et le nickel sont deux éléments chimiques situés très proches l'un de l'autre dans le tableau de Mendeleïev, cette situation fait que les propriétés physiques et chimiques sont similaires pour les deux éléments. Quelques propriétés physiques du nickel et du fer sont prés entées dans le tableau III.1 [8].

Tableau(III.1) : Propriétés physiques du fer et du nickel [34]

Propriétés physique	Fe	Ni
Structure électronique	[Ar] 3d ⁶ 4s ²	[Ar] 3d ⁸ 4s ²
Numéro atomique(Z)	26	28
Rayon métallique (Å)	1.27	1.24
Point de fusion (°C)	1535	1453
Dilatation thermique 20 °C (10 ⁻⁶ /°C)	12	13
Résistivité à 20 °C (10 ⁻⁸ Ωm)	10	7.8
État magnétique	Ferromagnétique	Ferromagnétique
Température de Curie (°C)	770	350
Moment magnétique (μ _B)/atome	2.274	0.6

La figure (III.1) montre le diagramme de phase des alliages Fe-Ni. Il présente deux régions avec des solutions solides, un eutectoïde et un composé intermétallique (Ni₃Fe) à température ambiante. Pour les alliages avec une teneur en nickel au-dessous de

27 % massique, la structure est cubique centré, pour des teneurs en nickel plus élevées, la structure est cubique face centrée. Les alliages avec des compositions entre 30 et 100 % de nickel présentent un ordre magnétique (ils sont ferromagnétiques).

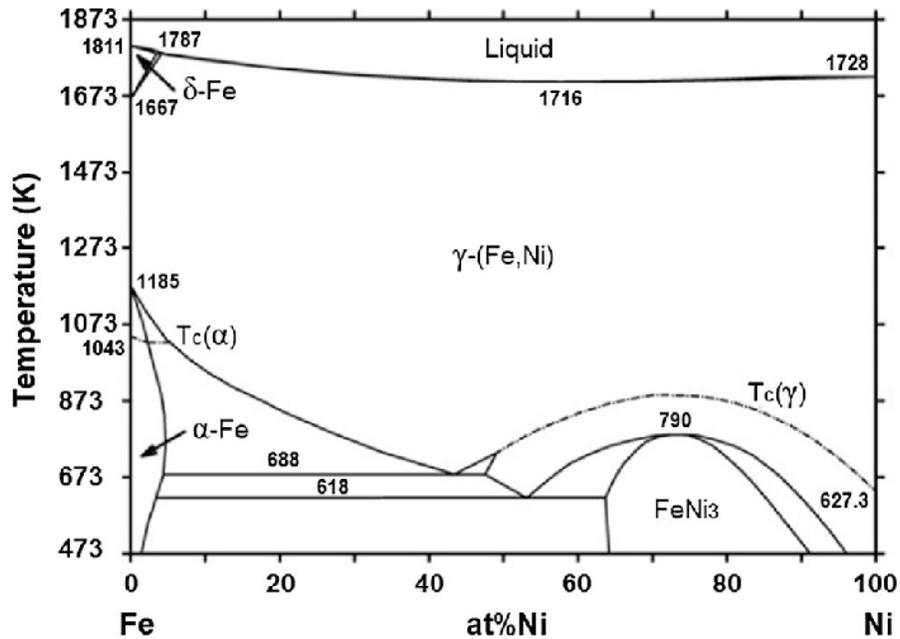


Figure (III.1): Diagramme de phase binaire des alliages Fe-Ni [66].

III. 2.1 Structure Cristallographiques

a. Cristallographie de Fer

- Dimensions de Cellules : $a = 2.874 \text{ \AA}$, $Z = 2$; $V = 23.74 \text{ Den (Calc) } = 7.81 \text{ kg/m}^3$
- Système de Cristal : Isométrique – Hexoctahedral du symbole de H-M ($4/m \bar{3} 2/m$), Groupe de l'espace: $I m\bar{3}m$
- Diffraction de rayon X: Par Intensité (I/I_0): 2.0268(1), 1.1702 (0.3), 1.4332 (0.2)

b. Cristallographie de Nickel

- Dimensions de Cellules : $a = 3.5238 \text{ \AA}$, $Z = 4$; $V = 43.76 \text{ Den (Calc) } = 8.91 \text{ kg/m}^3$
- Système de Cristal : Isométrique – Hexoctahedral du symbole de H-M ($4/m \bar{3} 2/m$), Groupe de l'espace: $F m\bar{3}m$

- Diffraction de rayon X: Par Intensité (I/I₀): 2.034(1), 1.762(0.42), 1.246(0.21),

III. 2. 2 Classification du Fer et du Nickel

Les phases du fer sont

- α (pour $T < 1223$ K) : cc (Im 3 m), $a = 2,8665$ Å à 293 K.
- γ (entre 1223 K et 1634 K) : cfc (Fm3 m), $a = 3,6660$ Å à 1440 K.
- δ (pour $T > 1634$ K) : cc (Im 3 m) $a = 2,9378$ Å à 1753 K.

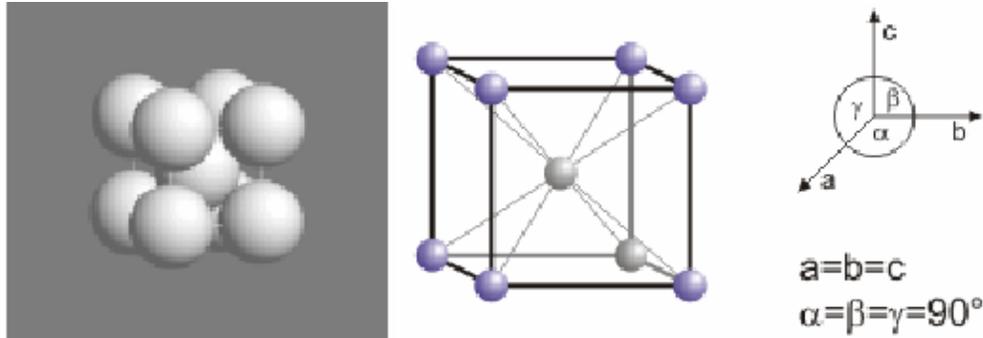


Figure (III. 2) : Structure du fer α [1]

Les phases du nickel sont :

Le nickel, de structure cubique à faces centrées (CFC) (figure III. 3), favorise la formation d'une solution solide austénitique (cubique à faces centrées), le nickel est dit gamma-gène. Le Fe et le Ni appartiennent au groupe des éléments de transition 3d, par conséquent ces éléments purs et leurs alliages présentent également des propriétés de ce groupe, qui se caractérise par l'incomplète couche électronique 3d et la complète couche électronique 4s.

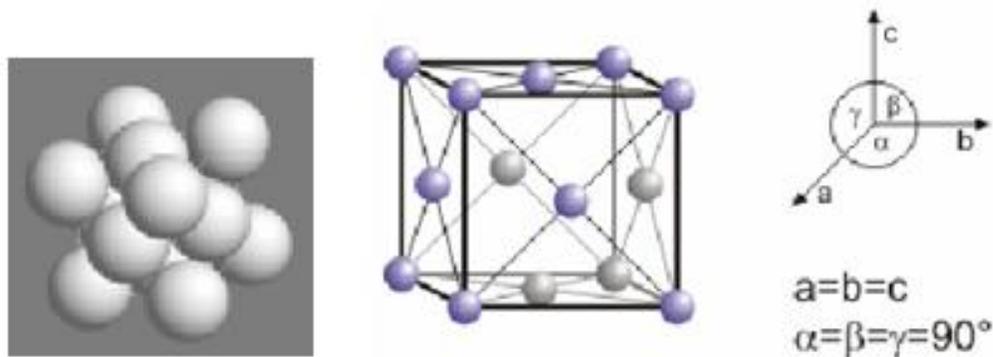


Figure (III. 3) : Structure du Ni [1]

III. 2. 3 Diagramme de Phase

Le diagramme de phase de Fe-Ni à partir de 400°C à 900°C a été déterminé par Owen et Liu et est montré sur la figure III. 4. L'alliage Fer-Nickel forme dans les sidérites essentiellement deux minéraux: la Kamacite, cubique centré pauvre en Nickel et la Taénite, cubique à face centrée riche en Nickel. À haute température (> 910°C), seule la Taénite est stable. Un mélange homogène de Fe-Ni en fusion va cristalliser complètement en Taénite en refroidissant lentement.

Si la température descend en dessous de 910°C, la stabilité dépend de la concentration de l'alliage en Nickel et de la température (figure III.4). Si la teneur en Ni est inférieure aux environs 6%, la Taénite se transformera entièrement en Kamacite à base température. Si la teneur en Ni est comprise entre 6% et environs 20% les deux phases seront présentes. Dans ce cas, des atomes de Ni et de Fe vont diffuser dans l'alliage. L'effet net sera la formation de cristaux de Kamacite à structure cubique centré et pauvre en Ni en même temps qu'un enrichissement en Ni des la phase Taénite. En effet, la teneur en Ni totale est constante tout au long du processus.

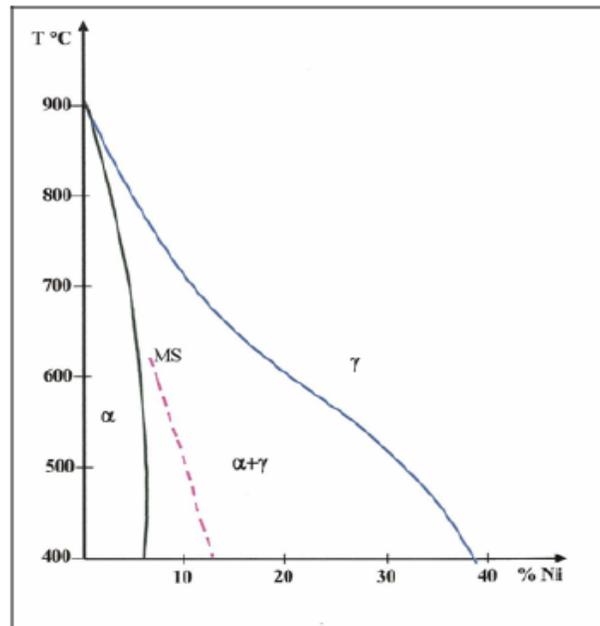


Figure (III. 4) : Diagramme de phase Fe-Ni (les % sont en masse) [67].

III.3. Technique d'élaboration

III.3.1 Condition d'élaboration

L'élaboration des poudres nanostructurés a été réalisée dans un broyeur planétaire PM 400 (figure III-5) au niveau de laboratoire de Traitement de Surface & Matériaux de Mécanique de Blida 1, équipé de deux jarres en carbure de tungstène (figure III.6). L'élaboration a été effectuée par cycle de 15 min de broyage à 400 tr/min, suivi de 15 min de repos afin d'éviter une élévation trop importante de la température à l'intérieur de jarres. L'alliage Fe₈₀Ni₂₀ a été synthétisé à partir d'un mélange de poudres d'éléments purs Fe, Ni. Pour chaque échantillon, 10 g d'un mélange de poudres élémentaires qui contient du Fe, Ni sont placées dans les jarres ainsi que 28 billes en carbure de tungstène d'un diamètre de 5 mm. La granulométrie moyenne et la pureté de la poudre pure utilisée dans cette étude sont de 80µm, 99,5% pour la poudre de fer, 80µm, 99,5% pour la poudre de Ni, respectivement. Nous avons utilisé un rapport masse / Bille (R.B.P), sachant que :

$$RBP = (\text{Masse des Billes}) / (\text{Masse des Matériaux}) \quad (\text{III. 1})$$

Dans notre cas RBP= 1:10. Les jarres sont ensuite fermées. Une fois toutes ces opérations terminées, les jarres sont solidement fixées sur le plateau du broyeur.



Figure (III. 5): Broyeur planétaire PM 400.



Figure (III. 6): Différentes jarres et billes.

III.3.2 Principe de fonctionnement

Le broyeur planétaire PM 400 est équipé d'une roue qui tourne avec une vitesse angulaire Ω sur laquelle deux récipients de broyage tournent autour de leurs axes symétriques, avec une vitesse ω dans la direction opposée. Les forces exercées sur la bille dans le récipient de broyage sont les suivantes:

- (1) Les forces centrifuges vers le centre de la roue et vers le centre du récipient de broyage.
- (2) Le frottement résultant des interactions entre la bille et le pourtour du récipient.
- (3) La gravité.

Chaque fois que deux billes de broyage entrent en collision, elles coincent des particules de poudre, et grâce aux phénomènes physiques décrits ci-dessus, la fragmentation de la poudre prend effet (Figure III. 7)

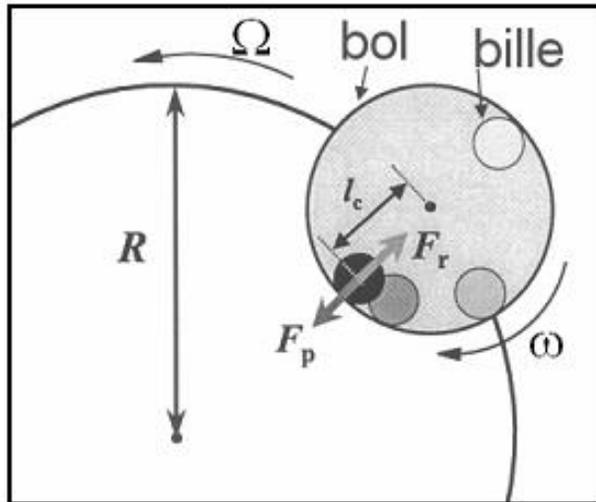


Figure (III. 7): Schéma représentant les forces exercées sur la jarre. [68]

Avec:

F_r : force centrifuge due à la rotation du plateau,

F_p : force centrifuge due à la rotation du bol,

Ω : La vitesse de rotation du plateau,

ω : vitesse de rotation des jarres.

R : Rayon de plateau.

l_c : Distance entre le centre de la jarre et le centre de la bille.

III.4. Technique de caractérisation

III.4.1. Caractérisation par microscope électronique à balayage (MEB)

a) **Principe**

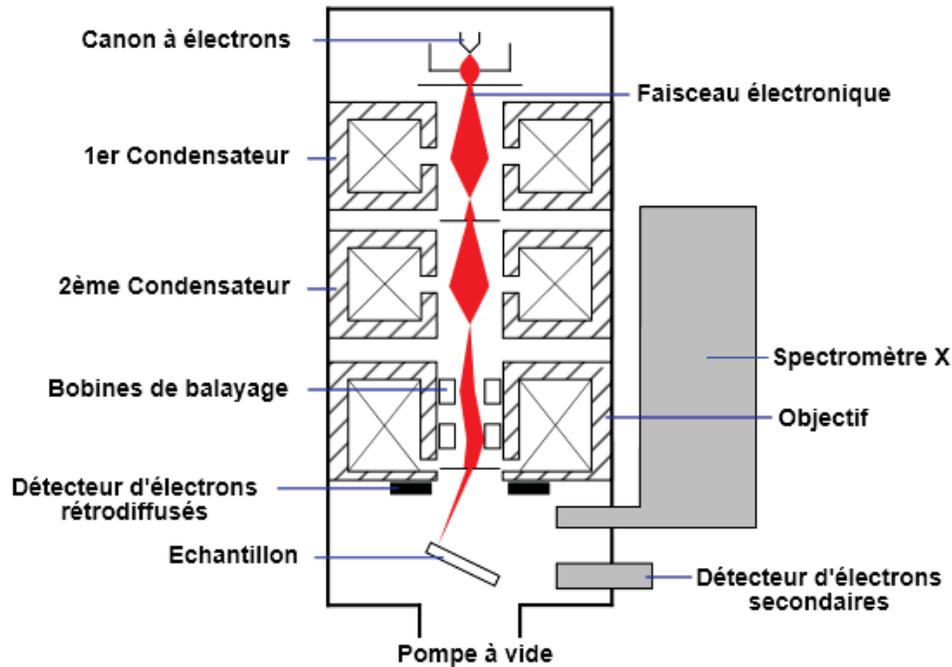
La Microscopie Électronique à Balayage MEB (ou Scanning Electron Microscopy SEM) est une technique d'observation de la topographie des surfaces. Elle apporte des informations sur la structure et la texture d'un échantillon mais aussi sur la taille et la forme des grains élémentaires ou agglomérats selon le grossissement choisi. Elle est fondée sur la détection des électrons secondaires émergents de la surface sous l'impact d'un faisceau très fin d'électrons primaires monocinétique qui balaye la surface d'un échantillon où se produisent des interactions électrons-matière dans une zone appelée poire d'interaction détectées par un capteur qui contrôle la brillance d'un d'électrons. On distingue plusieurs types d'électrons réémis :

Les électrons secondaires : sont des électrons initialement sont liés à l'atome et éjectés par absorption d'une partie de l'énergie d'un électron incident. Ces électrons servent en imagerie, pour donner des informations topographiques de la surface de l'échantillon d'une profondeur moins de 10 nm. Ce mode d'électrons permet d'obtenir des images rendant compte du relief de la surface et de renseigner sur la taille des grains et des agglomérats. C'est aussi une très bonne technique pour repérer les défauts présents tels que les porosités ou les fissures même si l'information acquise ne rend pas compte de l'étendue volumique des défauts sous la surface étudiée.

Les électrons rétrodiffusés : sont des électrons produits par l'interaction entre les électrons primaires et les noyaux des atomes. Ils ont une énergie élevée et sont réémis dans une zone pouvant atteindre le micromètre de profondeur. Ce mode d'électrons permet d'obtenir des images en « contraste chimique ». Les éléments les plus lourds apparaissent plus clairs et les plus légers, plus sombres. Cela permet de repérer la répartition des différentes phases dans les matériaux composites mais on perd l'information sur le relief de la surface. Sauf indication contraire, les micrographes présentés dans ce rapport sont des clichés obtenus en mode électrons rétrodiffusés. Les photons X : émis par dés excitation du cortège électronique des atomes dont un électron de cœur a été attaché sous l'impact électronique. Ce type de rayonnement X, donne des informations chimiques qualitatives et quantitatives de l'atome cible (analyse EDS : Energy Dispersive Spectroscopy). Donc L'analyse par EDS permet de déterminer la composition et de la distribution des éléments chimiques dans l'échantillon analysé. Selon le mode choisi, il est possible d'effectuer une analyse élémentaire en un point précis (sur un volume de 1a 3µm environ) ou en moyenne sur une surface, de constituer un profil de concentration sur une distance donnée ou de réaliser la cartographie élémentaire d'une surface. Toutefois, l'analyse quantitative en EDS n'est fiable que pour les éléments lourds, typiquement à partir du sodium Na, et elle peut manquer de fiabilité pour les éléments plus légers (limite de détection au niveau du bore B).

La Figure (III.8) illustre le schéma du principe d'un MEB équipé d'un détecteur EDS, une sonde électronique fine (faisceau d'électrons) est projetée sur l'échantillon à

analyser. L'interaction entre la sonde électronique et l'échantillon génère des électrons secondaires, de basse énergie qui sont accélérés vers un détecteur d'électrons secondaires qui amplifie le signal. À chaque point d'impact correspond un signal électrique. L'intensité de ce signal électrique dépend à la fois de la nature de l'échantillon au point d'impact qui détermine le rendement en électrons secondaires et de la topographie de l'échantillon au point considéré. Il est ainsi possible, en balayant le faisceau sur l'échantillon, d'obtenir une image de la zone balayée.



Figure(III.8) : Schéma d'un MEB équipé d'un détecteur EDS [69].

g) III.4.1.2. Appareillage

La figure (III.9) présente une vue d'ensemble de l'appareillage utilisé. Le microscope est un Gemini SEM 300 avec tension d'accélération de 30 kV) à une distance de travail de 15 mm équipé d'un spectromètre à énergie dispersive des rayons X (EDS, CRTI). Les échantillons analysés (poudres) ont été déposés sur des supports en aluminium.



Figure (III.9) : Photographie de l'appareil MEB équipé d'un détecteur EDS.

III.4.2. caractérisation par diffraction X (DRX)

h) III.4.2.1. Principe

Cette méthode de caractérisation permet de mettre en évidence des informations sur la structure cristalline des matériaux [54]. Le phénomène de diffraction résulte de l'interaction d'une onde électromagnétique, telle que les Rayons X, avec le milieu périodique de la matière cristallisée. La diffraction des Rayons X d'échantillons pulvérulents (dite "diffraction X sur poudre") est utilisée couramment pour la caractérisation des solides. Le terme poudre signifie simplement que le faisceau X incident est envoyé sur un ensemble de cristallites, orientés aléatoirement, suffisamment nombreux pour que toutes les orientations soient réalisées. Lorsqu'un faisceau parallèle de rayon X monochromatique de longueur d'onde λ (comprise entre 0.1 \AA (rayons X durs) et 50 \AA (rayons X mous)) est rayonné sur un matériau cristallin avec un angle d'incidence θ , les plans atomiques réticulaires (hkl) du cristal, équidistants de d_{hkl} (distances inter-réticulaire), vont se comporter comme des miroirs parallèles et réfléchir l'onde électromagnétique, induisant un phénomène de diffraction.

L'intensité diffractée sera non nulle seulement si les contributions des plans successifs sont en phase (interférences constructives), c'est-à-dire si la loi de Bragg est respectée:

$$2d_{hkl} \cdot \sin\theta_{hkl} = n\lambda \quad (\text{III-2})$$

Avec λ : La longueur d'onde du faisceau de rayons X

d_{hkl} : La distance inter-réticulaire

θ_{hkl} : L'angle d'incidence des rayons X

n : L'ordre de diffraction.

La figure (III.10) illustre le principe de la Loi de Bragg. Lorsque l'angle d'incidence θ correspond à un angle de Bragg pour la longueur d'onde fixée, on enregistre un pic de diffraction dont on mesure l'intensité.

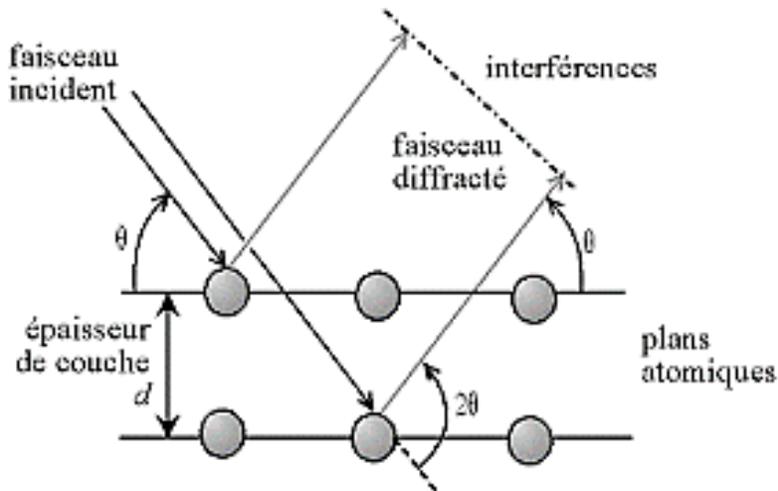


Figure (III.10) : illustre le principe de la Loi de Bragg [70]

La méthode des poudres fournit une liste des couples (θ, I) et, la longueur d'onde étant connue, on peut convertir directement l'angle θ en distance inter-réticulaire:

$$d_{hkl} = n\lambda / \sin\theta_{hkl} \quad (\text{III-3})$$

La Figure (III.11) présente le schéma du principe le plus courant, qui est un montage en réflexion dit de Bragg-Brentano. Le rayonnement incident est

monochromatique. La source S est linéaire et perpendiculaire au plan d'incidence. Elle est placée sur le cercle(C) du diffractomètre. L'échantillon (E) est tel que son plan de référence passe par l'axe du diffractomètre C et tourne autour de cet axe avec une vitesse ω réglable. La fenêtre F du compteur se déplace également sur le cercle (C), à une vitesse angulaire double, 2ω . Pour un angle d'incidences nulles, S, F et C sont alignés. On réalise ainsi un balayage (θ , 2θ).

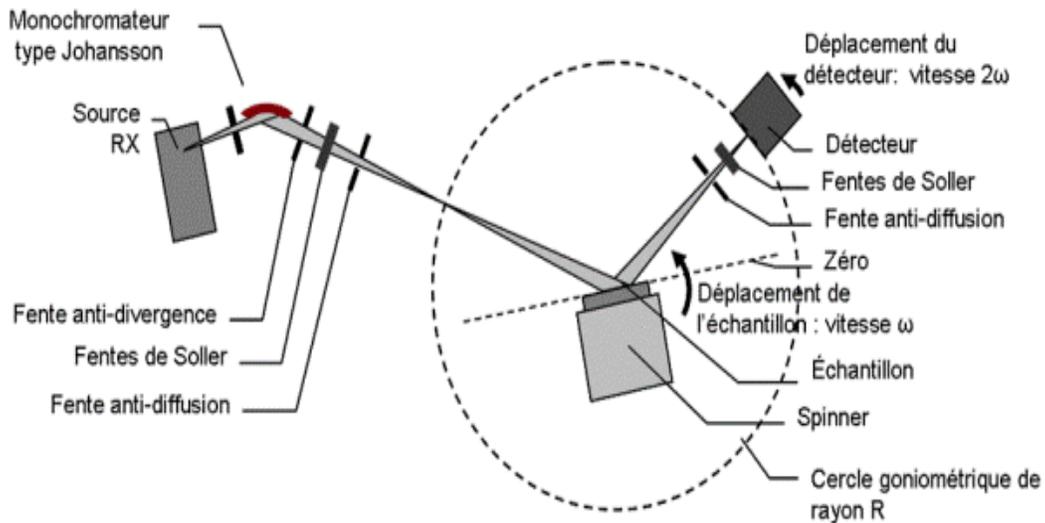


Figure (III.11) : Principe du diffractomètre dans la géométrie de Bragg-Brentano [71].

Le diffractogramme de rayons X (diagramme de diffraction) est obtenu à partir des données collectées par un détecteur. Pour chaque échantillon cristallin, les interférences constructives sont observées sous forme de « pics de diffraction ». Une phase cristalline donnée génère des pics de diffraction toujours dans les mêmes directions, constituant une véritable signature qui permet son identification. Les pics de diffraction peuvent ensuite être identifiés en comparant avec les fiches des composés référencés dans la base de données, sous forme de PDF - Powder Diffraction File (anciennement JCPDS). Ces fiches listent, pour chaque phase, la distance inter réticulaire (calculée à partir de la position 2θ par la loi de Bragg) et l'intensité relative de chaque pic par rapport au pic le plus intense.

i) III.4.2.2. Appareillage

Les analyses par diffraction des rayons X ont été réalisées sur un diffractomètre XPERT PRO (Figure (III.12)). Toutes les mesures sont faites avec une anticathode de cobalt Co k ($\lambda = 1.78901 \text{ \AA}$; 40 kV, 30 mA). L'acquisition des données du diffractogramme se fait entre $10^\circ < 2\theta < 110^\circ$, avec un pas de mesure de $0,02^\circ$ et un temps d'acquisition de 15 s/pas. Les poudres ont été dispersées sur des porte-échantillons en aluminium.



Figure(III.12) : Photographie de l'appareil utilisé pour réaliser DRX.

III.4.3. Mesures par magnétomètre à échantillon vibrant

Le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) est basé sur la mesure de la variation d'induction magnétique d'un solénoïde due à la présence de l'échantillon. Cela implique la mesure de la tension induite dans une bobine de détection par le changement du flux magnétique, lorsque l'on fait varier le champ magnétique extérieur ou la position de l'échantillon (figure III.13).

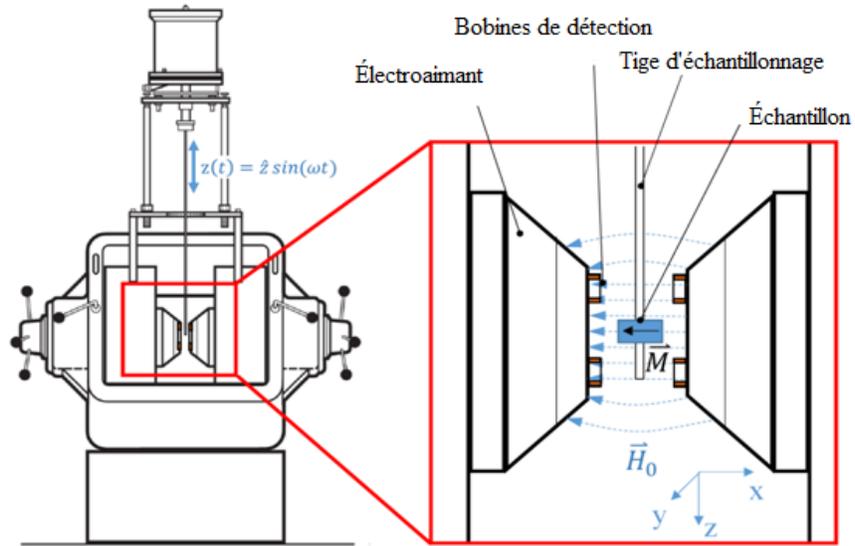


Figure (III.13): Représentation schématique de VSM. [72]

Le VSM est basé sur la loi de Faraday qui dit qu'une force électromagnétique est générée dans une bobine quand il y a un changement à travers la bobine. Dans l'installation de mesure, un échantillon magnétique se déplace dans la proximité de deux bobines détectrices comme est indiqué dans la figure (III.14).



Figure (III.14): Magnétomètre à échantillon vibrant(VSM) du CRTI.

L'oscillateur fournit un signal sinusoïdal qui est traduit par l'assemblage du transducteur dans une vibration verticale. L'échantillon qui est fixé à la tige vibrant avec une fréquence donnée et une amplitude de 60 à 80 Hz et 1 mm, respectivement. Il est centré entre les deux éléments polaires d'un électro-aimant qui génère un champ magnétique $H_0 \vec{}$ de haute homogénéité.

Les intensités de champ de l'ordre de 10^6 A/m sont fréquemment possible. Les bobines de détection stationnaires sont montées sur les pôles des électroaimants. Leur centre de symétrie coïncide avec le centre magnétique de l'échantillon statique.

Le changement du flux magnétique provenant du mouvement vertical de l'échantillon magnétisé qui incite une tension de U_{ind} dans les bobines. $H_0 \vec{}$ étant constante, n'a pas d'effet sur la tension mais est nécessaire que pour magnétiser l'échantillon. Selon Faraday, la tension dans un seul enroulement de la bobine exploratrice peut être écrite sous la forme suivante:

$$U_{ind} = - \frac{\partial \Phi}{\partial t} \quad (III-4)$$

$$U_{ind} = \sum n_c \sum n_w \int_A \frac{\partial B}{\partial t} dA \quad (III-5)$$

Où Φ est le flux magnétique,

n_c : Bobine de détection à surface plate (A),

n_w : Enroulements.

B : champ d'induction à l'intérieur de la matière

IV. RÉSULTATS ET DISCUSSION

IV.1.Introduction

Ce chapitre est consacré à l'interprétation des résultats des caractérisations morphologiques, microstructurales et magnétiques obtenues par les techniques : diffraction aux rayons-X (DRX), microscopie électronique à balayage (MEB) et magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) respectivement de la poudre $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ à différents temps de broyage.

La poudre préliminaire Fe (99,8%) et Ni (99,6%), avec des particules de taille de 60 μm et de 20 μm respectivement, a été broyé pour élaborer un alliage de type $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ par un broyeur planétaire à billes (PM400) à 400 tr/min en utilisant des billes en carbure de tungstène avec un rapport masse bille/ mass poudre est 10:1. Les échantillons ont été broyés durant 600 min. La morphologie, la taille et la distribution des particules des poudres broyées ont été observées avec microscopie électronique à balayage (Gemini SEM 300) attachée à l'unité EDS, avec une tension d'accélération de 30 kV. La structure cristalline, la taille de la cristallite et la déformation du réseau ont été déterminées par diffraction des rayons X (XPERTPRO) à l'aide du rayonnement Co Ka. Les propriétés magnétiques ont été déterminées par des cycles d'hystérésis à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant avec un champ maximal appliqué de 22 KOe.

IV.2.Résultats et discussion

IV.2.1. Caractérisation structurale du $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$

La figure (IV.1) présente les diffractogrammes du rayons-X d'une poudre de $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ obtenue après un broyage jusqu'à 600 min. Le diffractogramme relative à la poudre initiale est parfaitement indexé en considérant une structure cubique centrée de Fe et cubique a face centrée de Ni. Cette technique est efficace pour l'identification, l'analyse et permet aussi de suivre l'évolution des phases cristallines dans le temps. Elle est aussi applicable à des matériaux composés d'un nombre important de cristaux. L'indexation des différent pics obtenus a été réalisé en utilisant le logiciel X'Pert High score plus en faisant référence aux fiches JCPDS (International Center for Diffraction Data). Le spectre relatif à l'échantillon non broyé (0 min) révèle la présence de tous les

pics caractéristiques du fer de structure cubique centré (c.c) et du nickel de structure cubique à faces centrées (c.f.c.). A partir de 20 min de broyage, nous avons remarqué que les pics de diffraction s'élargissent de façon progressive indiquant ainsi une diminution continue de la taille des particules et une introduction des contraintes internes cela montre que le mélange passe à une nouvelle structure différente de la structure précédente. Cet élargissement dans les pics de diffraction est attribué au second ordre de contraintes internes, qui agit à un niveau macroscopique dans les cristallites [73]. Après 600 min de broyage, nous avons observé que les pics de diffraction correspondants au Ni disparaissent complètement alors que les pics de Fer sont décalés légèrement vers les petits angles. Ceci prouve que les atomes de Ni se sont dissous dans la maille de Fe donnant lieu à la formation de la solution solide Fe(Ni). Le petit décalage angulaire des pics de diffraction est associé au premier ordre de contraintes internes induit par le broyage et qui modifie le paramètre de maille [62].

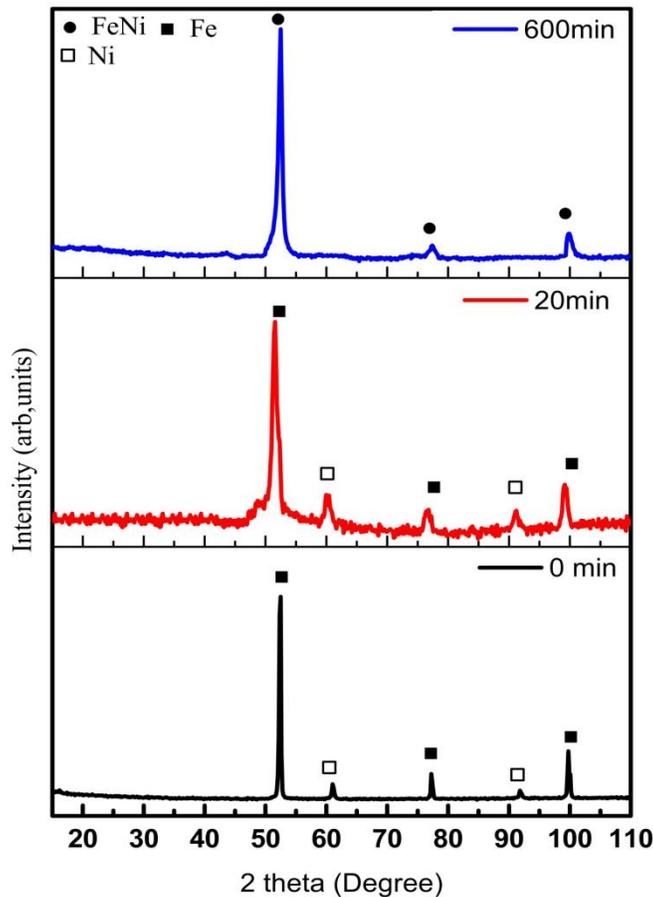


Figure (IV. 1): Diffractogrammes aux rayons-X du Fe₈₀Ni₂₀ durant le broyage.

Le déplacement d'un pic provient de deux phénomènes :

- La formation d'un composé Fe₈₀Ni₂₀ par broyage mécanique.
- L'introduction, pendant le broyage, des contraintes internes qui modifient le paramètre de maille du matériau [74]

Le paramètre de mailles des phases obtenues a été calculé pour le plan le plus intense hkl (110) selon l'équation suivante [75] :

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2 + k^2 + l^2}{a^2} \quad (\text{IV.1})$$

La taille de cristallite (D) a été déterminée à partir de l'élargissement à mi-hauteur (β) pour le plan de diffraction (110) en utilisant l'équation de Scherrer [76,77]:

$$D = \frac{0.9\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (\text{IV.2})$$

La contrainte de la maille (ε) a été calculée pour les mêmes lignes de diffraction en utilisation l'équation suivante [78,76]:

$$\varepsilon = \frac{\beta}{4 \tan \theta} \quad (\text{IV.3})$$

Où $\lambda = 1.780 \text{ \AA}$ (Co $k\alpha$),
 β : est la largeur à mi-hauteur,
 θ : est l'angle en radians.

La figure (IV.2) montre l'évolution de la taille de cristallite et de la microdéformation de la poudre Fe₈₀Ni₂₀ broyée à différents temps de broyage. Nous avons remarqué que la taille moyenne des cristallites diminue avec l'augmentation du

temps de broyage. Cette diminution est accompagnée d'une augmentation du taux de microdéformation avec le temps de broyage. En effet, la taille moyenne des cristallites diminue de 45 nm (0 min) jusqu'à 13 nm après 600 min alors que le taux de microdéformation augmente de 0.125 % (0 min) jusqu'à 0.5 % à 600 min.

La valeur finale de la taille des cristallites obtenue (13 nm) est comparable à celle trouvée du R. Hamzaoui et al. [79] (10 nm) après 36 h de broyage à l'aide d'un vario-broyeur P4, D. Martínez-Blanco et al. [80] (11 nm) après 30 h de broyage à l'aide d'un broyeur planétaire RETSCH PM400, A. Guittoum et al. [81] (11 nm) après 48 h à l'aide du PM400. Aussi, R. Rong et al. [82] ont obtenu une taille des grains de 10 nm après 102 h de broyage en utilisant un broyeur horizontal à haute énergie et Yu. Pustov et al. [83] ont atteint une valeur de 12 nm après 1 h de broyage à l'aide d'un broyeur de type AGO-2UL.

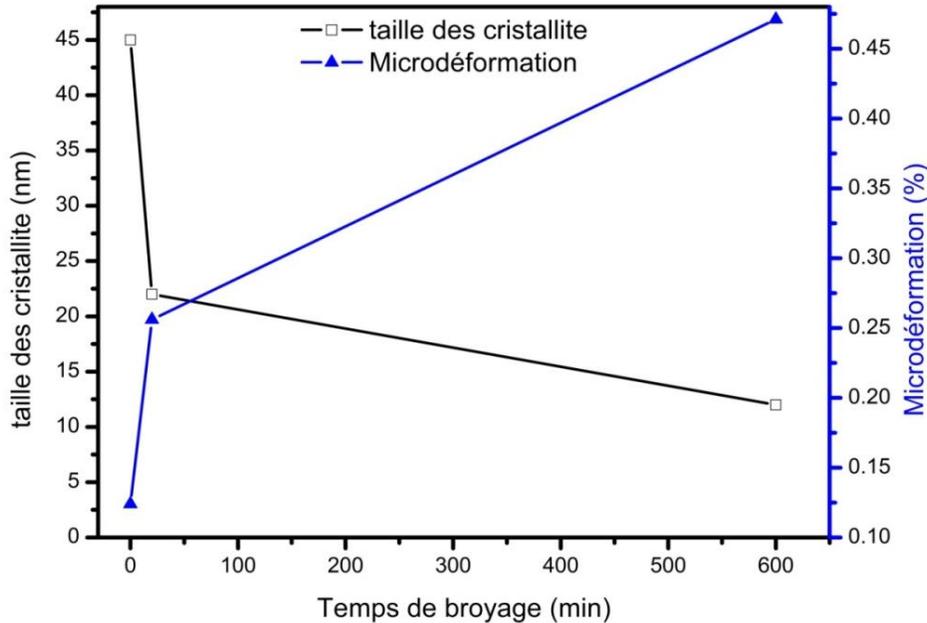


Figure (IV.2) : Évolution de la taille des grains et micro-distorsions en fonction du temps de broyage pour la poudre Fe₈₀Ni₂₀ broyée.

La figure (IV.3) montre l'évolution du paramètre de maille, a (nm), en fonction du temps de broyage. La valeur moyenne de paramètre de maille augmente légèrement de 0.279 nm à 0.283 nm à cause de la puissance de choc pour une durée de broyage de 600 min. Un tel changement mineur du paramètre de maille était dû à la petite différence de taille atomique entre les atomes de Ni et de Fe [81,83].

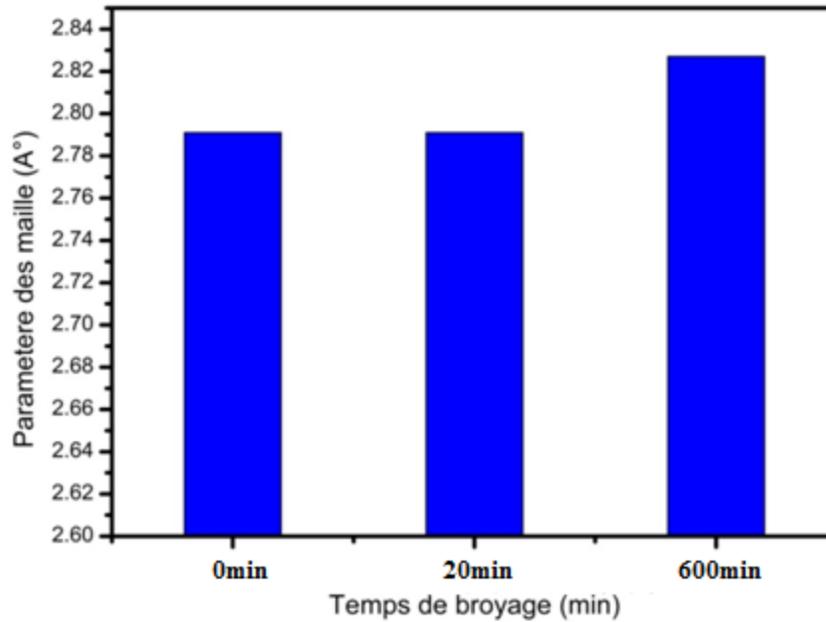


Figure (IV.3) : Évolution du paramètre de maille, a (Å), en fonction du temps de broyage pour la poudre $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ broyée.

Généralement, l'augmentation du paramètre de maille avec le temps de broyage est attribuée à la formation de la solution solide qui précède la formation de la phase amorphe [23]. Pour la plus longue durée de broyage, la valeur du paramètre de maille est très proche de celle du massif qui égale à 0.283 nm.

IV.2.2. Morphologie de la poudre

La figure (IV.4) montre la morphologie et la taille des particules de la poudre $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ broyée à différent temps de broyage, pour le mélange non broyé (1^{ème} rangée de la Figure(IV.4)), les particules de la poudre sont uniformes et distribués de façon non homogène, aucune déformation vue sur les particules, Après 20 min de broyage (2^{ème} rangée de la Figure(IV.4)), un changement considérable de la morphologie des particules, certaines particules sont aplatées et déformées car le mélange est ductule, d'autres sont fracturées par la collision des billes avec la poudre, Après 600min (3^{ème} rangée de la Figure(IV.4)),

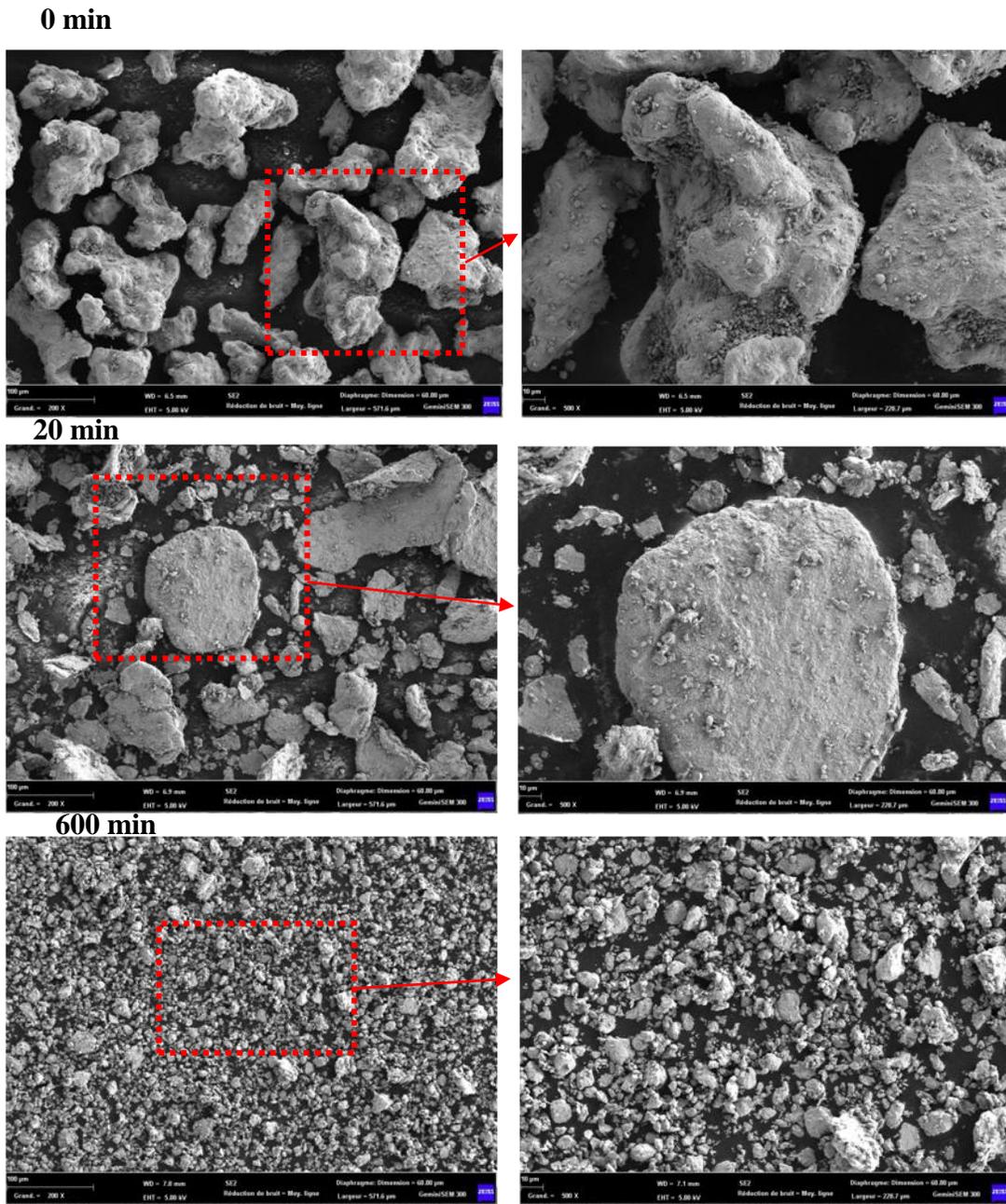


Figure (IV.4) Morphologie de la poudre $Fe_{80}Ni_{20}$ broyée à différent temps de broyage.

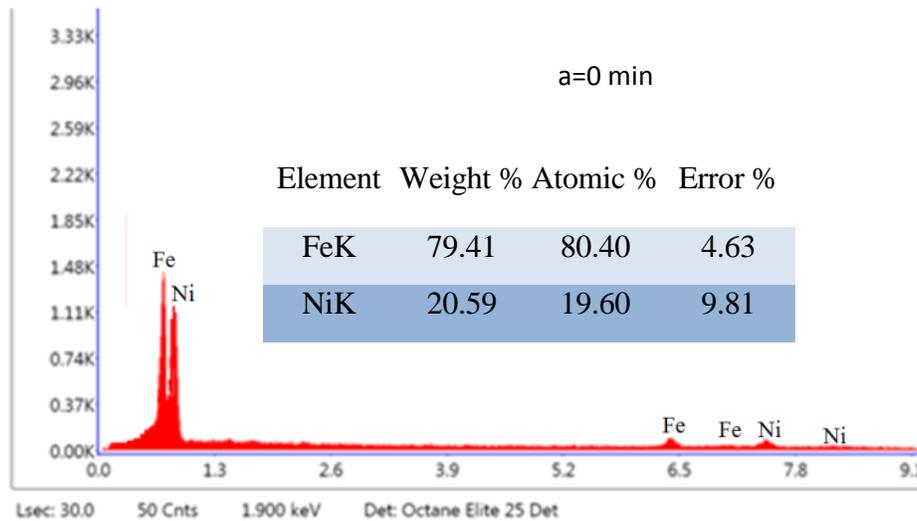
Un affinement considérable et une diminution de la taille des particules sont évidents. La microstructure paraît plus homogène à l'échelle macroscopique que celles des stades précédents. Ce dernier à une composition identique et dont la taille des grains est inférieure à celle du mélange initial. Ce stade est caractérisé par un équilibre entre les deux processus de fracture et de soudage. Sachant que les forces de liaison des particules de poudre sont plus fortes lorsque la taille des grains est petite, les déformations ne sont

plus possibles car elles nécessitent une grande force pour fracturer les particules on remarque que la taille des grains diminue avec le temps de broyage, cette diminution est due au processus de fracture et de soudage à cause de la collision entre la poudre, les billes et la paroi interne de la jarre.

a). Analyse par EDS

La figure (IV.5) montre l'évolution du pourcentage en poids du Fer et du Nickel dans le système $Fe_{80}Ni_{20}$ après plusieurs temps de broyage. On remarque qu'il n'y a pas d'autres pics autres que ceux des éléments présents dans les poudres, les résultats de la quantification des spectres montrent que la composition chimique des poudres FeNi (80%Fe, 20%Ni) est très proche de celle du composé de départ, ceci indique qu'il n'y a pas d'impuretés et pas de contamination éventuellement introduites lors de l'opération de broyage (les billes et la paroi interne des jarres).

La composition finale après 600 min de broyage est donc représentative des quantités introduites au départ dans le broyeur.



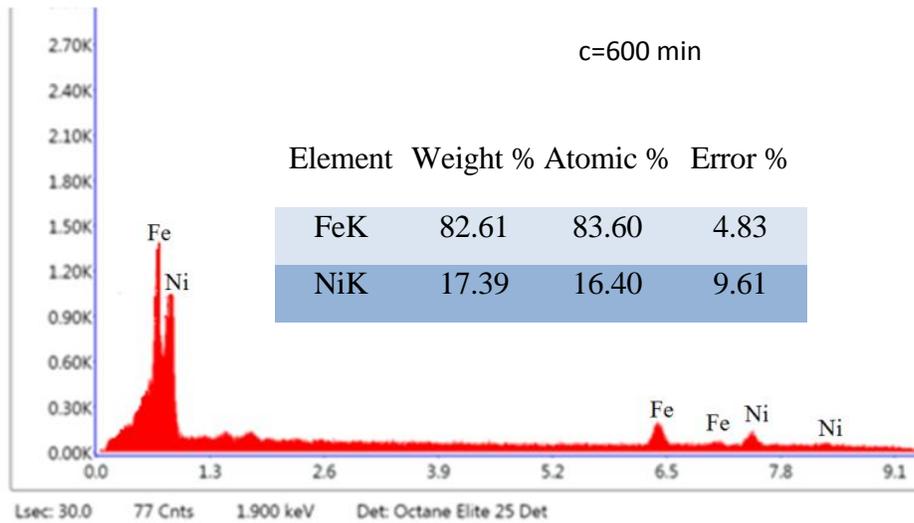
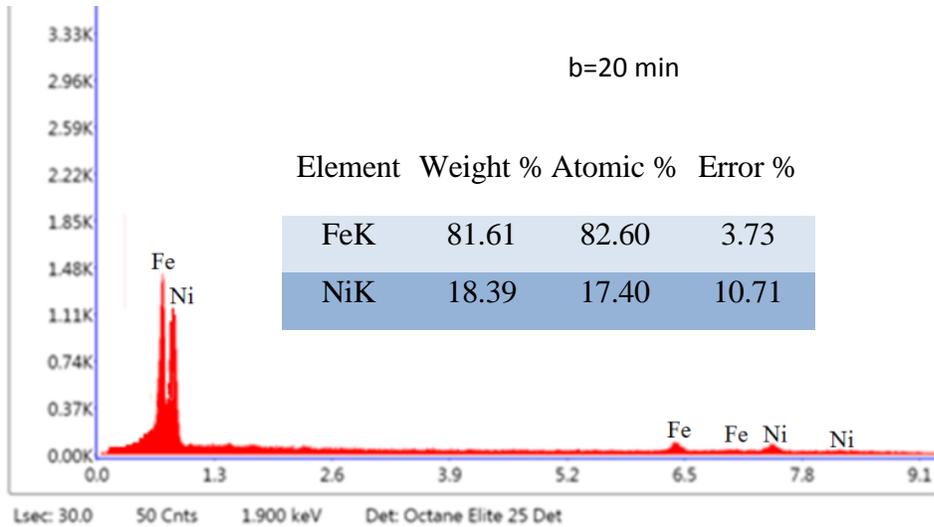


Figure (IV.5) : Analyse quantitative du $Fe_{80}Ni_{20}$ en fonction du temps de broyage.

b) Cartographie de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$

Une étude par EDS a été menée sur l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$, broyé à 600 min, afin de voir la distribution des différents éléments chimiques. La figure (IV.6) montre la présence de tous les éléments chimiques présents dans l'alliage FeNi.

Une cartographie élémentaire a été effectuée sur les particules de mélange de la poudre broyée durant 600 min montrant que ces éléments sont distribués de manière homogène.

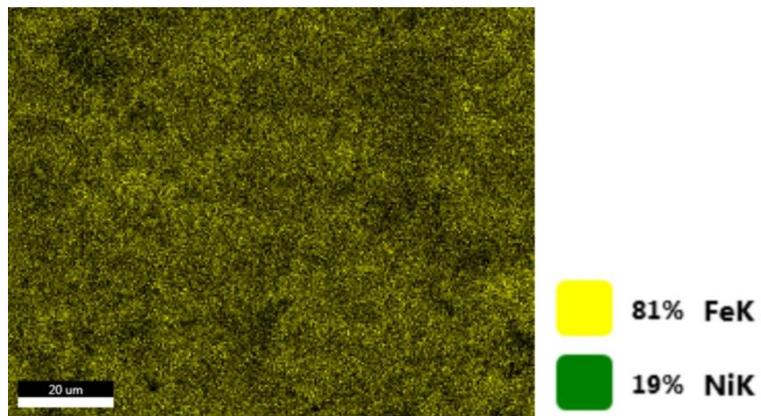
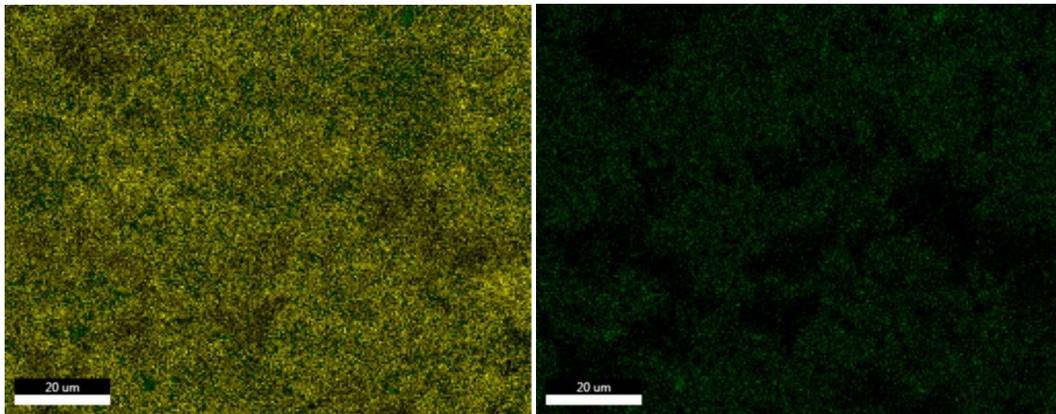
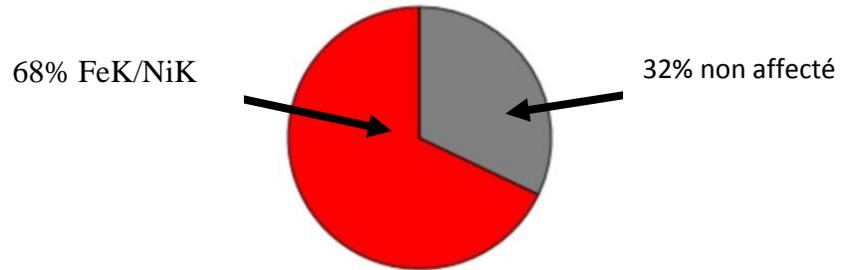
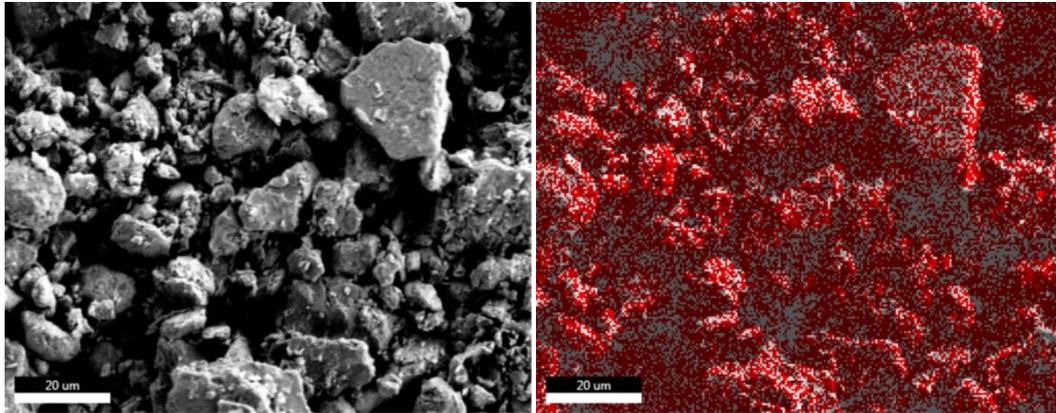


Figure (IV. 6): Cartographie de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$ broyé durant 600min.

IV.2.3. Caractérisation magnétique

Pour étudier l'effet de la durée de broyage sur les paramètres magnétiques tels que l'aimantation à saturation (M_s) et le champ coercitif (H_c) des poudres $Fe_{80}Ni_{20}$ broyées, nous avons effectué des mesures de cycles d'hystérésis à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) (voir chapitre III). Les cycles d'hystérésis obtenus pour les différents temps de broyage ont été enregistrés pour un champ magnétique appliqué variant de -20 kOe à 20 kOe.

Les poudres $Fe_{80}Ni_{20}$ destinées pour les mesures des cycles ont été pesées à l'aide d'une microbalance à quartz. La masse des poudres varie de 20 à 40 mg pour les durées de broyage allant de 0 min jusqu'à 600 min. A partir de ces courbes figure (IV.7), nous avons déduit les valeurs de l'aimantation à saturation (M_s), du champ coercitif (H_c), la rémanence (M_r) et M_r/M_s (Squareness ratio) correspondants aux différents temps de broyage.

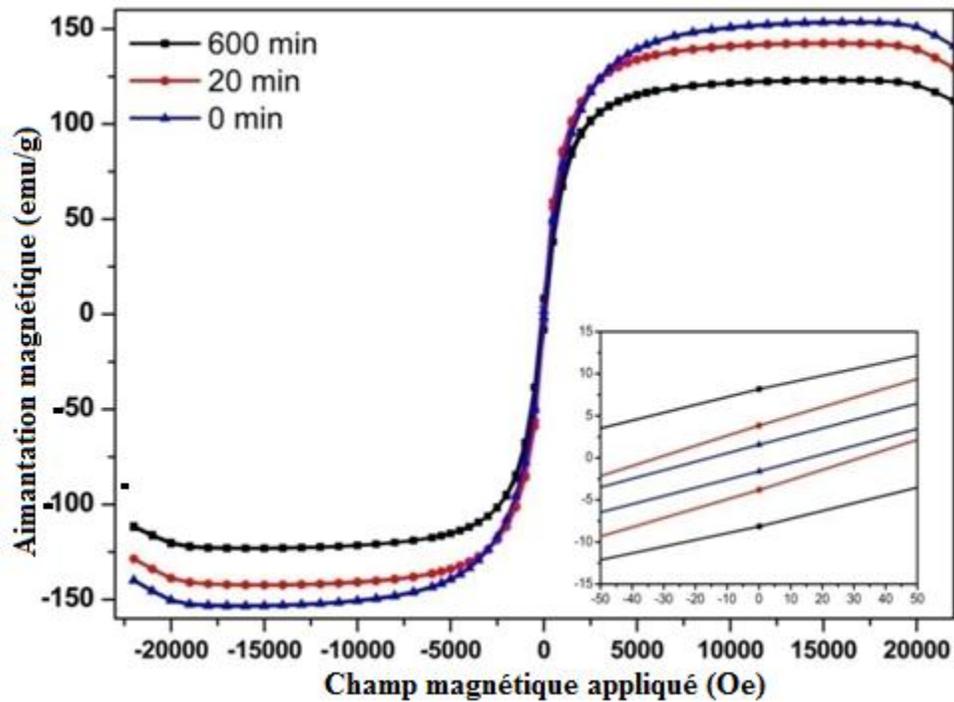


Figure (IV.7) : les courbe d'hystérésis du mélange de poudre $Fe_{80}Ni_{20}$ broyées de différent temps

La variation de H_c et M_s de la poudre $Fe_{80}Ni_{20}$ broyée en fonction du temps de broyage présenté sur la figure (IV.8). On remarque qu'il y a un changement du champ coercitif (H_c) des poudres broyées. Le champ coercitif (H_c) augmente progressivement avec le temps de broyage passant d'une valeur de 15,68 à 87,9 Oe. L'augmentation du H_c est due à l'introduction des défauts anti-site et des contraintes, qui font augmenter le champ coercitif, rappelons que cette région correspond à la formation progressive de l'alliage (la formation complète du composé $Fe_{80}Ni_{20}$ débute à un temps de broyage égal à 600 min).

Nous pensons que l'augmentation de H_c est due à l'introduction des contraintes internes dans le matériau, comme cela a été fait remarquer par plusieurs auteurs [81]. En effet, les contraintes à travers la magnétostriction inverse (effets magnétoélastiques) peuvent induire une anisotropie, qui contribue aux valeurs de la coercivité. Une augmentation similaire du champ coercitif, pour de longs temps de broyage, est trouvée aussi dans la référence [84].

Dans la figure (IV.8) nous avons représenté la variation de M_s en fonction de la durée de broyage. Nous remarquons que l'aimantation à saturation diminue de 154 emu/g à 123 emu/g lorsque le temps de broyage augmente de 0 à 600min. La diminution de l'aimantation à saturation (M_s) est généralement attribuée aux atomes localisés aux joints de grains, M. Pekala et al. [85], en effet, les atomes situés dans les joints de grains sont caractérisés par une densité relativement faible, conduisant dans notre cas à une réduction de l'aimantation. Les valeurs de M_s obtenues dans notre travail pour l'alliage FeNi sont comparables à celles trouvés par C. Kuhrt et al. [86, 87] dans le cas de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$ élaboré par mécanosynthèse pour différentes temps de broyage jusqu'à 60 h.

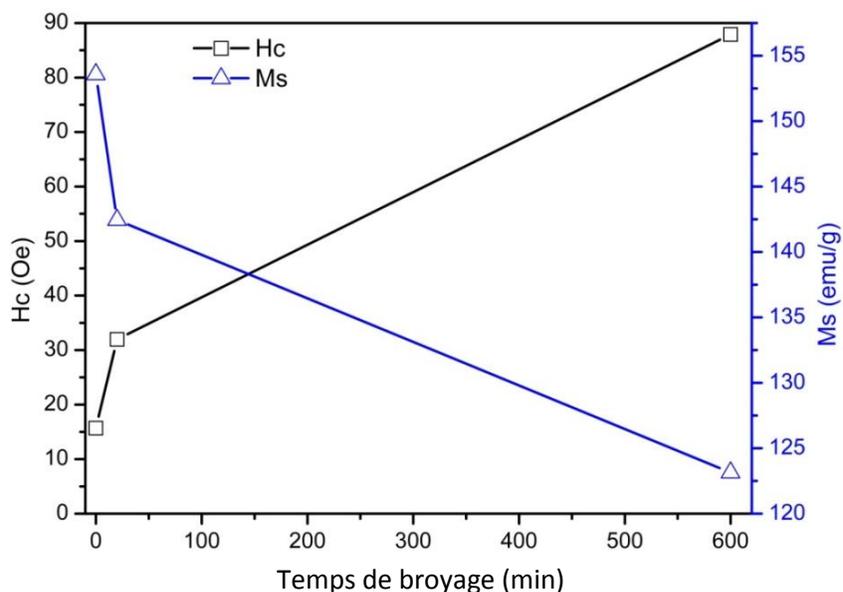


Figure (IV.8) : Évolution de Ms et Hc du $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ broyées pour différents temps.

Les évolutions de Mr et Mr/Ms en fonction du temps de broyage présentent pratiquement la même allure. Les augmentations de Mr et Mr/Ms sont causées par l'anisotropie magnétique induite, qui est attribuée à la formation de la solution solide $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ au cours du broyage prouvé par les spectres de diffraction aux rayons-X (figure (IV.9)).

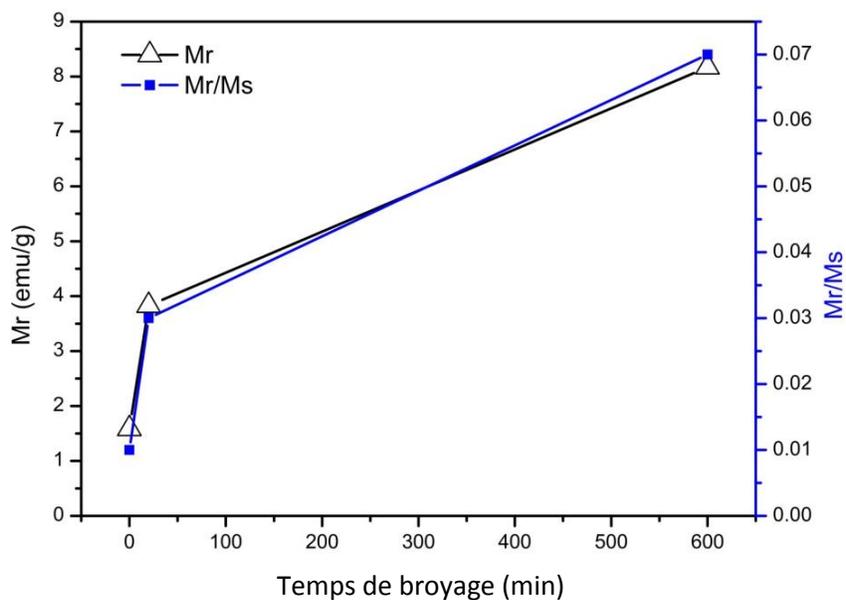


Figure (IV.9): Évolution de Mr et Mr/Ms du $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ broyées pour différents temps.

CONCLUSION

L'élaboration des matériaux par mécanosynthèse est une alternative intéressante par rapport aux méthodes classiques d'une part son moindre coût et d'autre part sa rapidité de mise en œuvre. C'est une technique de broyage à haute énergie utilisée pour obtenir des poudres alliées à travers des réactions à l'état solide. Elle consiste fondamentalement en des chocs répétés qui produisent des fractures et des soudures à froid des particules de poudre capturées entre les billes de broyage.

L'effet de confinement de la taille des cristallites permet d'améliorer les propriétés magnétiques et physiques des matériaux. L'élaboration des poudres nanostructurées $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ a été réalisée avec succès, à l'aide d'un broyeur planétaire PM400, pour différents temps de broyage allant de 0 à 600 min.

Le broyage des poudres a permis de mettre en évidence, les différentes étapes du mécanisme de formation des alliages Fe-Ni. Premièrement, une substitution de Nickel dans la maille du fer. Dans une deuxième étape, la structure s'affine par un phénomène de fractures et soudures alors que la diffusion des éléments est favorisée Jusqu'à l'obtention des alliages. La répartition des inclusions de Nickel est homogène.

Les poudres obtenues ont été caractérisées par la diffraction des rayons X (DRX). A partir des spectres DRX, nous avons montré que la solution solide Fe(Ni) se forme après 600 min de broyage. Le paramètre de maille augmente au cours du broyage pour atteindre la valeur de 0.283 nm après 600 min de broyage. La taille des grains diminue pour atteindre une valeur minimale de 13 nm après 600 min de broyage. Parallèlement à cela, le taux de microdéformation augmente jusqu'à la valeur de saturation de 0.5 % après 600 min.

La caractérisation par VSM nous a permis de déterminer les propriétés magnétiques. Ces propriétés, fournissent des informations sur l'état structural des échantillons contrôlés et qui sont confirmés par les méthodes classiques (MEB et DRX). En outre, l'analyse de H_c , M_r , et M_s obtenus à partir des cycles d'hystérésis, nous a renseignés sur l'aspect magnétique des structures obtenues après broyage.

L'augmentation de H_c de la poudre $Fe_{80}Ni_{20}$ durant le broyage, est due à l'introduction des défauts anti-site et l'augmentation de contraintes et la présence de différents types de défauts et la forme non sphérique des particules, qui font augmenter le champ coercitif, rappelons que cette région correspond à la formation progressive de l'alliage. Par contre la diminution du moment de saturation (M_s) est généralement attribuée aux atomes localisés aux joints de grains qui sont caractérisés par une densité relativement faible, conduisant dans notre cas à une réduction de l'aimantation.

En perspectives, nous espérons développer la mécanosynthèse du système Fe-Ni en jouant sur le temps de broyage, et en faisant varier ses conditions (la vitesse et le rapport massique bille/poudre, la composition de l'alliage, ...) et approfondir l'étude concernant l'aspect contrainte dans la formation de la structure.

Nous espérons aussi utiliser d'autres techniques pour mieux comprendre le mécanisme de formation de l'alliages Fe-Ni telles que le MET (Microscopie Électronique à Transmission), appareil de cycle d'hystérésis à haute performance, étude par Mössbauer.

LISTE DES SYMBOLES ET DES ABREVIATIONS

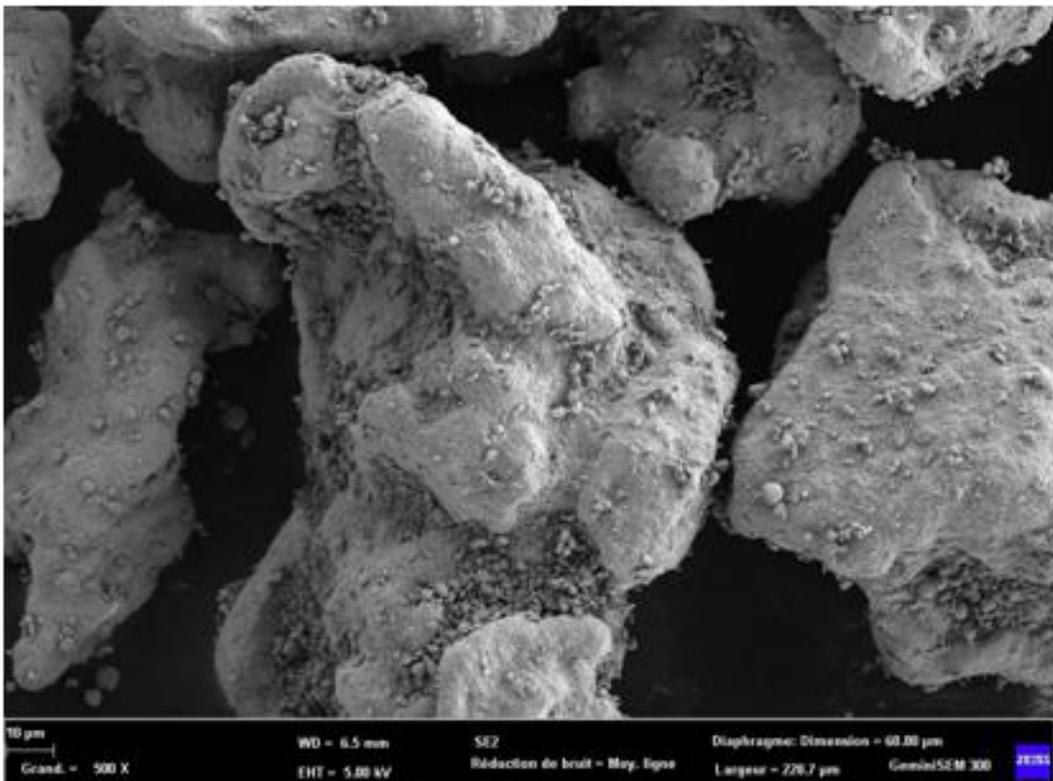
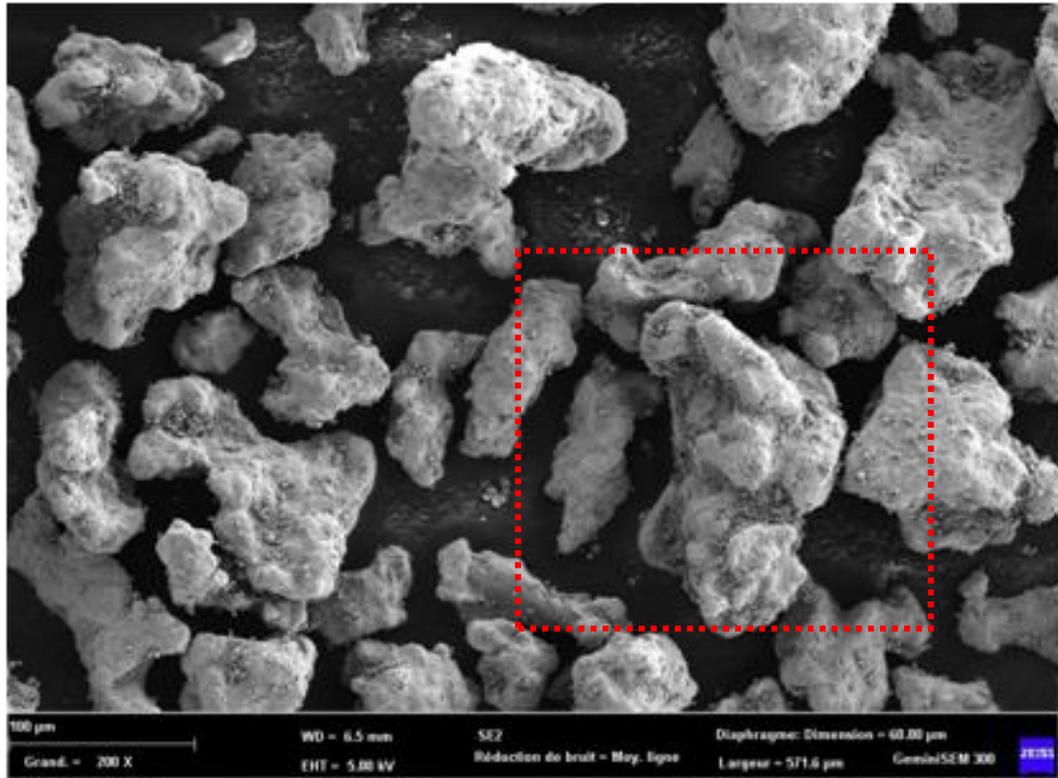
σ :	Contrainte minimale nécessaire pour déformer plastiquement un matériau.
σ_0 :	Contrainte initiale.
K :	Constantes dépendant du matériau.
D :	Taille moyenne des grains.
Ω :	Vitesse du plateau et des jarres.
CC :	Cubique centrée.
CFC :	Cubique à face centrée.
hc :	Hexagonal compacte.
D.R.X :	Diffraction aux rayons-X.
M.E.B :	Microscope électronique à balayage.
EDS :	Analyse dispersive en énergie.
CVD :	Dépôt chimique en phase vapeur.
a :	Paramètre de la maille.
c :	Paramètre de la maille.
λ_x :	La longueur d'onde des rayons-X
d_{hkl} :	La distance inter réticulaire d'une famille de plan.
d_0 :	La distance inter réticulaire.
θ :	L'angle d'incidence.
$\Delta 2\theta$:	La variation de position du pic.
$\Delta 2\theta_0$:	La variation de position du pic de référence.
ϵ_x :	La déformation de la maille.
M.A :	Mécanosynthèse (Mechanical alloying).
Ω_1 :	vitesse angulaire du jarre.
Ω_2 :	vitesse angulaire du plateau.
Fr :	Force centrifuge due à la rotation du plateau.
Fp :	Force centrifuge due à la rotation du bol.
R.M.B :	Rapport masse billes sur masses poudres.
bottom-up :	Ascendante.
top-down :	Descendante.
M :	L'aimantation magnétique.
H :	Le champ d'excitation magnétique.
W_{mt} :	Énergie magnétostrictive.
χ :	La susceptibilité magnétique.
χ_r :	La susceptibilité magnétique relative.
μ_0 :	La perméabilité à vide.
μ_r :	La perméabilité relative.
μ_i :	perméabilité initiale.
ρ :	La résistivité.
Hc :	Champ coercitif.
Hd :	Champ démagnétisant.
Mr :	Aimantation rémanente.
Ms :	Moment de saturation.
H_m :	Le champ correspondant au maximum du pic.

H_s :	Le champ de saturation.
δ :	L'intensité des courants de Foucault.
ω :	La profondeur de pénétration standard.
β :	La pulsation.
λ_s :	Le Déphasage des courants de Foucault
H_σ :	Amplitude du pic.
T_c :	Coefficient de magnétostriction à saturation.
T_N :	Température de Curie.
Z :	Température de Néel.
f :	Impédance.
i :	Fréquence.
v :	Courant.
ε :	Tension.
ε_ρ :	Permittivité du milieu.
φ :	Permittivité relative.
λ₀ :	Déphasage
θ_{hkl} :	Longueur d'onde dans l'air
n :	L'angle d'incidence des rayons: X
Co :	L'ordre de diffraction.
PVD :	Cobalt
He :	Dépôt chimique en phases vapeurs
N₂ :	Helium
H₂ :	Azote
SPEX :	hydrogène
R :	Sample Prep Accessoires pour agitateur / broyeur Mill
Fe :	rayon du plateau
Ni :	Fer
H :	Nikel
e :	constante de Planck ($6,63 \cdot 10^{-34}$ Js)
m :	charge de l'électron ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C),
Mn :	masse de l'électron ($9,11 \cdot 10^{-31}$ kg)
C :	manganèse
T :	la constante de Curie
Cu :	la température
TR :	cuivre
MT :	métaux de terre rare
Bs :	métaux de transition
RBP :	l'induction à saturation pour des alliages magnétiquement doux
φ :	(Masse des Billes) / (Masse des Matériaux)
η_c :	Le flux magnétique,
η_w :	la bobine de détection à surface plate (A),
MET :	Enroulements.
	La microscopie électronique en transmission

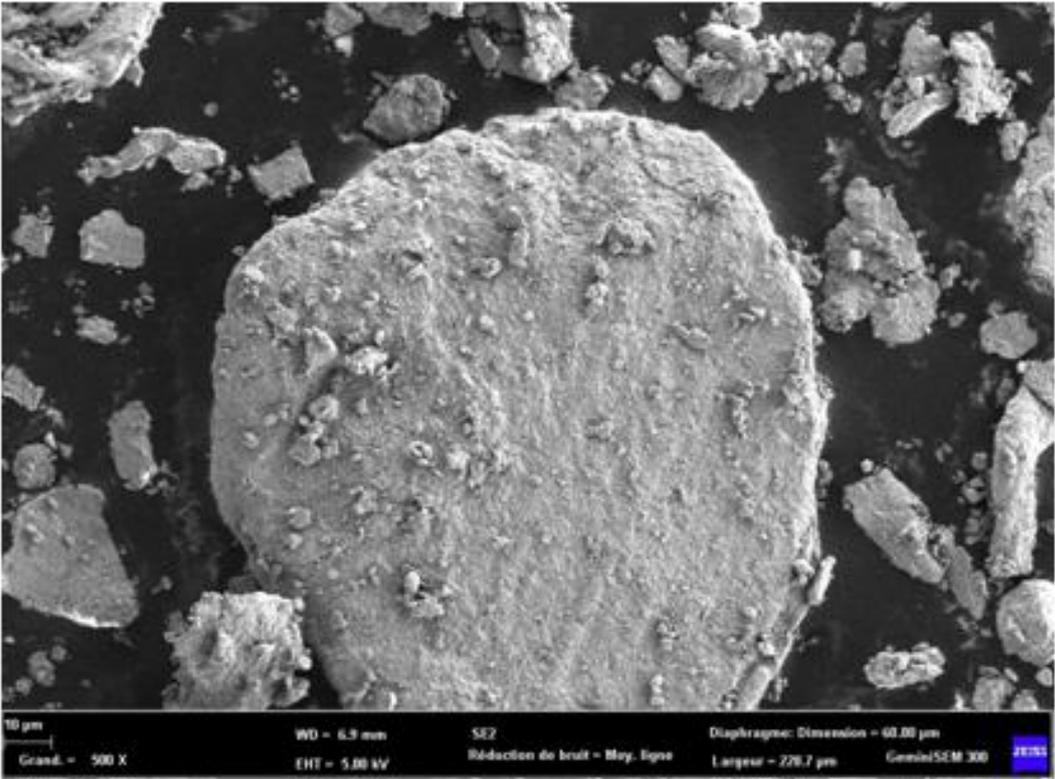
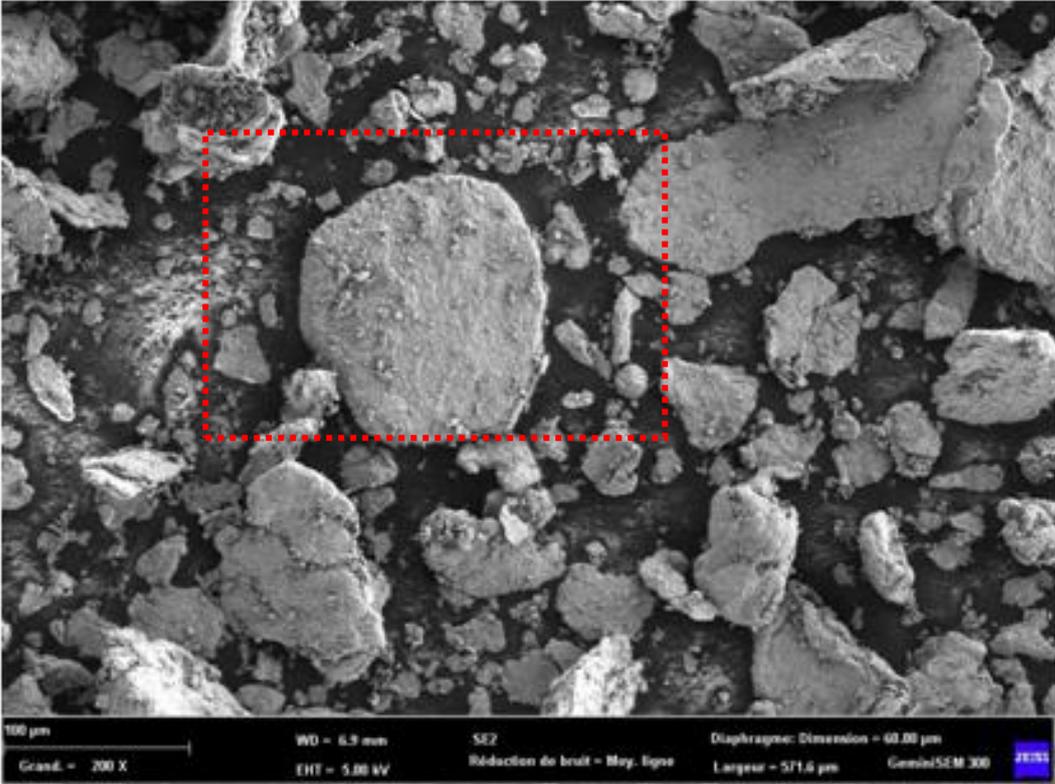
APPENDICE B

Agrandissement de la morphologie de la poudre $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ broyée

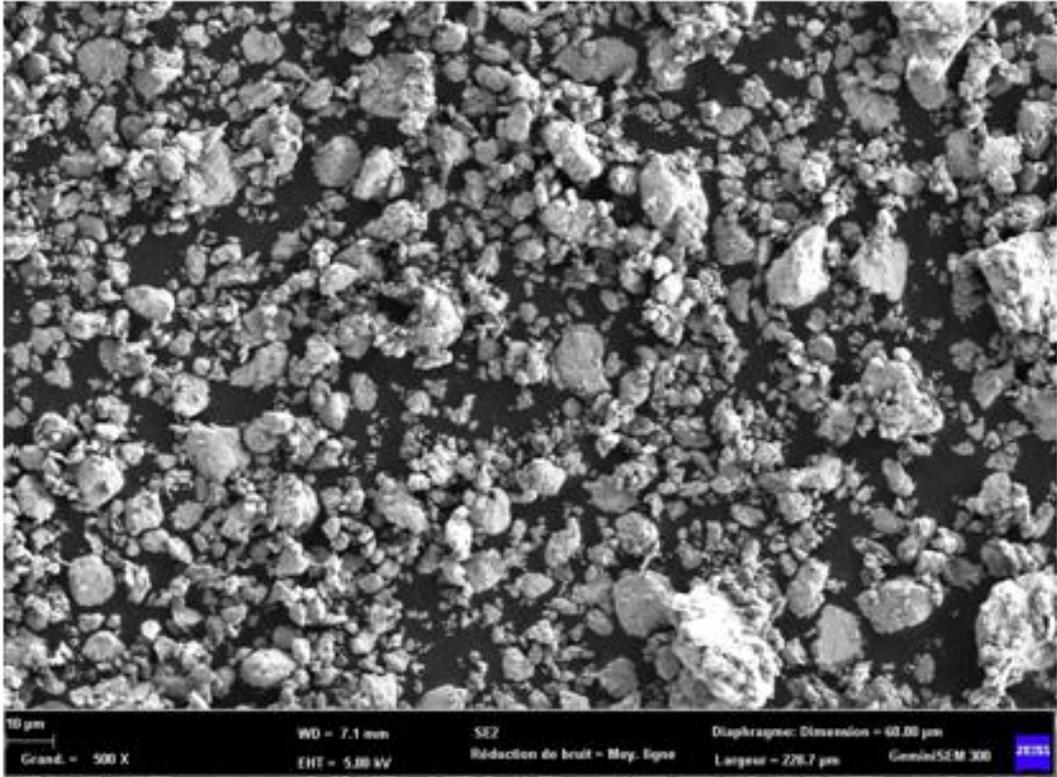
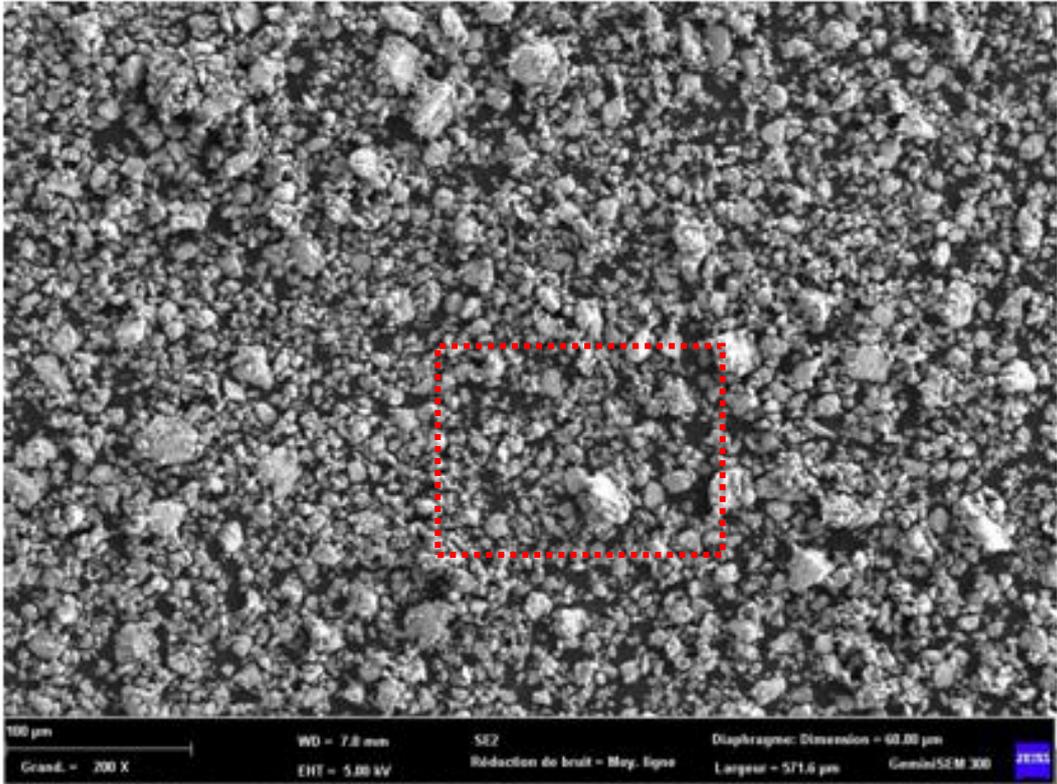
0 min



20 min



600 min



REFERENCES

- [1] Naouam Boudinar, “élaboration et études structurales et microstructurales des poudres nanostructurées à base de fer ” Thèse De Doctorat. Université Badji Mokhtar Annaba (2011)
- [2] C. Suryanarayana, “Nanocrystalline materials”, International Mater. Reviews, vol. 40, 41-64 (1995)
- [3] S. C. Tjong, H. Chen, “Nanocrystalline materials and coatings”, Mater. Sci. Eng. R 45, 1-88 (2004)
- [4] K. Lu, “Nanocrystalline metals crystallized from amorphous solids: nanocrystallization, structure, and properties”, Mater. Sci. Eng. R 16, 161-221 (1996)
- [5] L. Darozczi, D. L. Beke, G. Posgay, G. F. Zhou and H. Bakker, Nanostructured Materials, 2, 515 (1993).
- [6] H. Gleiter, “Nanocrystalline materials”, Progress Mater. Sci. Vol. 33, 223-315 (1989).
- [7] Abdellaoui.M, Thèse de doctorat Paris VI 1994.
- [8] C. Suryanarayana, E. Ivanov, V.V. Boldyrev, “The science and technology of mechanical alloying”, Materials Science and Engineering A304–306 (2001) 151–158
- [9] Siegel, R.W., “Nanostructured materials -mind over matter-“, Nanostructured Mater., Vol. 3, No. 1–6, (Jan. 1993), Pp. 1–18.
- [10] Younes Abderrahmane. “Titre” Mémoire De Magistère. Université De Blida1(2009)
- [11] Grafoute M. “Étude Des Propriétés Structurales et Modélisations de poudres Nanostructurées de Fer obtenues par broyage mécanique”, thèse De doctorat, Université Du Maine, (2004).
- [12] Marc Depuis, serieaugo, « nanomatériaux » paris 2001.
- [13] J. M. D. Coey, ” Whither magnetic materials? ”J. Mag. Magn. Mater. 196-197 (1999) 1-7.
- [14] C. Suryanarayana, Recent Developments in Mechanical Alloying, Reviews on advanced materials science 18(3), (2008), Pp 203-211

- [15] Baviera,P, Harel.S, Garem.H et Grosbras.M, laboratoire de Métallurgie physique UMR6630 (1999).
- [16] S. C. Tjong, H. Chen, ‘‘Nanocrystalline materials and coatings’’, Mater. Sci. Eng. R 45 (2004) 1-88
- [17] C. Suryanarayana, ‘‘Nanocrystalline materials’’, International Mater. Reviews, vol. 40 (1995) 41-64
- [18] H. Gleiter, ‘‘Nanocrystalline materials’’, Progress Mater. Sci. Vol. 33 (1989) 223 315
- [19] M. Sherif El-Eskandarany, Nanotechnology, Materials Science and Powder Metallurgy, Mechanical Alloying, 2nd Edition, Editor William Andrew, (2015)
- [20] S. Begin-Colin, F.Wolf et G. Le Caër, "Mécanosynthèse d'oxydes nanocristallins"Journal de Physique III 7(3), (1997),473-482
- [21] Friedman.H, Chrzon.D.C, physical review lett, volume 81 N°13(2001)
- [22] C. C. Koch, J. D. Whittenberger, ‘‘Review Mechanical milling/alloying of intermetallics Intermetallics 4 (1996) 339-355
- [23] C. Suryanarayana, ‘‘Mechanical alloying and milling’’, Progress Mater. Sci. 46 (2001) 1-184
- [24] C. Suryanarayana, ‘‘Mechanical alloying and milling’’, Marcel Dekker, USA, 2004
- [25] E. Gaffet, G. Le Caër, ‘‘Mechanical processing for nanomaterials’’, Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology, Edited by H. S. Nalwa, Vol. X, 2004, p. 1-39
- [26] Z. Sparchez, I. Chicinas, Proceedings of European Congress on Powder Metallurgy,.EuroPM2005, 2-5 Oct. 2005, Prague, vol. 2, 99-104...
- [27] H. Kimura, ‘‘ Process Design for Solid State Amorphization in High-Energy Ball Milling’’ Sol. State Phen. 8-9 (1989), 47-60
- [28] Abderrahim Guittoum, ‘‘Etude des propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des nanoparticules FeNi’’, thèse de Doctorat, université de Sétif (2008)

- [29] C. C. Koch, "Materials synthesis by mechanical alloying", "Annu. Rev. Mater. Sci. 19 (1989), 121-143.
- [30] Y. Chen, "Contribution à la physique du procédé de mécanosynthèse", Thèse de l'Université d'Orsay: rapport CEA R-5620 (1992).
- [31] M. Abdellaoui and E. Gaffet, "A mathematical and experimental dynamical phase diagram for ball-milled Ni₁₀Zr₇", J. Alloys. Comp. 209 (1994), 351-361.
- [32] J. Eckert, L. Schultz and K. Urban, "Formation of quasicrystals by mechanical alloying" Appl. Phys. Lett. 55 (1989), 117-119.
- [33] Mosbah DAAMOUCHE. "Étude magnétique et structurale des alliages électrolytiques de type Ni_{1-x}Fe_x", Thèse De Doctorat. Université Elhadj Lakhdar .Batna1(2017).
- [34] G. Béranger, F. Duffault, J. Morlet, J. F. Tiers, "Les alliages de Fer et de Nickel. Cent ans après le découverte de l'Invar...", Edition, Paris, 1996
- [35] Hadaoui, A., "Effets de taille et de concentration sur les propriétés thermique et rhéologiques des nanofluides", thèse de doctorat, Université d'Orléans, (2010)
- [36] Oualid Messal. "Caractérisation et modélisation du comportement thermomagnétique d'alliages FeNi pour le prototypage virtuel". Énergie électrique. Université Claude Bernard - Lyon I, 2013.
- [37] S. Lamrani, A. Guittoum, N. Souami, N. Boukherroub, "élaboration et le structurales des nanomatériaux Fe₈₀Ni₂₀ élaborés par mécanosynthèse". 3^{ème} conférence international sur le soudage le CND l'industrie des matériaux et alliages. Oran novembre 2012
- [38] Florin Popa, "Élaboration et étude de poudres magnétiques douces (Ni-Fe, Ni Fe-X, Ni-Fe-X-Y) à l'état nanocristallin par broyage mécanique de haute énergie", thèse de Doctorat, université du Joseph-Fourier - Grenoble I, 2008.
- [39] R. Hamzaoui, O. Elkedim, E. Gaffeta, J.M. Greneche, "Structure, magnetic and Mossbauer studies of mechanically alloyed Fe-20 wt.% Ni powders", journal of alloys compounds 417 (2006) 32-38
- [40] H. Schönrrath, M. Spasova, S.O. Kilian, R. Meckenstock, G. Witt, J.T. Seht, M.Farle, "Additive Manufacturing of Soft Magnetic Permalloy from Fe and Ni

powders:Control of Magnetic Anisotropy”, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2018

- [41] Bünyamin Alım, İbrahim Han, Lütfü Demir, “Effect of external magnetic field on valence-electron structures of Fe and Ni in Invar, Permalloy and the other Fe–Ni alloys by using $K\beta$ -to- $K\alpha$ X-ray intensity ratios”, Vocational School, Department of Electricity and Energy, Bayburt University, Turkey. (2016)
- [42] Michael W.R. Volk, Michael. Wack, Bernd J. Maier, “Monitoring the alloying process of mechanic ally synthesized $Fe_{80}Ni_{20}$ through changes in magnetic properties”, Journal of Alloys and Compounds 732 (2018) 336e342
- [43] K. H. J. Buschow, F. R. de Boer, “Physics of magnetism and magnetic materials”, Editeur, Kluwer Academic Publishers, 2004,
- [44] S. Chikazumi, Physics of ferromagnetism, Oxford Science publications, 2005
- [45] E. du Trémolet de Lacheisserie, “Magnétisme I – *Fondements*”, Editeur, Presses Universitaires de Grenoble, (1999),
- [46] D. Givord, “Matériaux à propriétés spécifiques : les Matériaux magnétiques”, Rapport du laboratoire Louis Néel, CNRS de Grenoble (2000)
- [47] M. E. McHenry and D. E. Laughlin, ” Nano-scale materials development for future magnetic applications”, Acta materialia 48 (2000) 223-238.
- [48] D.C., Jiles and D.L. Atherton, "Theory of ferromagnetic hysteresis", Journal of magnetism and magnetic materials, (1986).
- [49] J. M. D. Coey, ”Magnetic materials ” J. Alloys. Comp 326 (2001) 2–6.
- [50] C. Kittel, “Introduction to the solid state physics”, Fourth edition, Editeur, John Wiley & Sons, Inc, (1971)
- [51] BENMOUSSA Smail “Étude de l’aimantation et de l’hystérésis des matériaux ferromagnétiques doux (Fe,FeSi), Mémoire Master, université Ouargla, (2017)
- [52] Bruce M. Moskowitz, “Hitchhiker’s Guide to Magnetism Environmental” Magnetism Workshop,(1991).
- [53] I. Chicinaş, V. Pop, O. Isnard, J.M. Le Breton, "Synthesis and magnetic properties of Ni_3Fe intermetallic compound obtained by mechanical alloying, Journal of alloys and compunds, (2003)

- [54] H.GIE, J.P. SARMANT : "Electromagnétisme" vol. 2 Technique et documentation Lavoisier, Paris, (1985).
- [55] E. DURAN : Magnétostatique, Masson et Cie, Paris, 1968.
- [56] Kittel, C., "Physique de L'état Solide", Paris Dunod cop., (1983).
- [57] Degauque.J, Mémoires et étude scientifiques Rev de Metall 1,5-23, (1985).
- [58] Gourdon, C, Jeudy, V., Cēbers, A., Doulat, A., Khazen, K. and Lemaître, A., "Unusual domain-wall motion in ferromagnetic semiconductor films with tetragonal anisotropy", Phys. Rev. B, Vol. 80, No. 16, (Oct.2009), Pp. 161202
- [59] Couderchou.G," technique de l'ingénieur" MAGNII, M350, 1-24(1995).
- [60] J. Degauque, A. Lebouc, D. Givord et P. Tenaud, «Matériaux magnétiques durs», laboratoire Louis Néel, CNRS de Grenoble 2000.
- [61] H. Le Gal, "Mémoire magnétique", laboratoire Louis Néel, CNRS de Grenoble 2000.
- [62] Baicheng Zhang, N.E. Fenineche, Hanlin Liao and Christian Coddet, "Microstructure and Magnetic Properties of Fe–Ni Alloy Fabricated by Selective Laser Melting Fe/Ni Mixed Powders", Journal of Materials Science and Technology, 29(8), (2013), 757-760
- [63] Ammouchi, N., "Etude morphologique, microstructurale et magnétique d'un alliage nanostructuré Fe 65 Si 20 Cr 15" thèse de doctorat, Université 20 Août 1955-Skikda, (2015)
- [64] Degauque. J" Magnétisme et matériaux magnétiques ", journal de physique IV, Colloque C3 Sup de physique III vol 2 1-13(1992).
- [65] Degauque, J., Astie, B., Porteseil, J.L. and Vergne, R., "Influence of the grain size on the magnetic and magnetomechanical properties of high-purity iron", J. Magn. Mater., Vol. 26, No. 1, (1982), Pp. 261-263
- [66] L.J. Swartzendruber, V.P. Itkin, and C.B. Alcock, "Binary alloy phase diagrams" / 2.199.(1992)
- [67] E. A. Owen and Y. H. Liu: J. Iron and Steel Inst. " Autres études aux rayons X du diagramme d'équilibre du système fer-nickel", vol. 163, p. 132(1949)
- [68]. Gaffet, E. et Le Caër, G., "Mechanical Milling", (2008), Pp. 455-471

- [69] Professeur Marie-Paule BASSEZ Julien Bortoluzzi, Benjamin Malatrait, Ludovic Ribstein, "Les microscopes électroniques", projet tutoré 2ème année DUT Chimie France" (2011-2012)
- [70] Hamdaoui Karim-Ahmed, "Travail de recherche documentaire – MI Rayons X Haute", "Ecole spécialisée de Suisse occidentale" (2009)
- [71] N. Gascoin, P. Gillard, G. Baudry, "Characterisation of Oxidised Aluminium Powder: Validation of a new Anodic Oxidation Bench", *J. Hazard. Mater.*, vol. 171, pp. 348–357, 2009.
- [72] Arai, K. I., Ohoka, Y., Ishiyama, K. and Kang, H.W., "Magnetic properties of alumite magnetic films", *Le J. Phys. Colloq.*, Vol. 49, No. C8, (Dec.1988), Pp. C8-1977-C8-1978
- [73] L. Castex, J.L. Lebrun, G. Maeder et al., "Détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X" *Publ. Scient. Tech. ENSAM, Paris.* 22, p 51, 1981
- [74] Gravereau, P., "La diffraction des rayons X par les poudres", Université Bordeaux 1 F, ed., Université Bordeaux 1, France, (2012).
- [75]. Forouzanmehr, N., Karimzadeh, F. and Enayati, M.H., "Synthesis and characterization of TiAl/ α -Al₂O₃ nanocomposite by mechanical alloying", *J. Alloys Compd.*, Vol. 478, No. 1–2, (Jun. 2009), Pp. 257–259.
- [76] .Rehani, B.R., Joshi, P.B., Lad, K.N., and Pratap, A., "Crystallite size estimation of elemental and composite silver nano-powder using XRD principles", *Indian journal of pure and applied physics.* Vol. 44, (Feb. 2006), Pp. 157-161.
- [77] Yoshimura, M., Oh, S-T., Sando, M. and Niihara, K., "Crystallization and microstructural characterization of ZrO₂ (3 mol% Y₂O₃) nano-sized powders with various Al₂O₃ contents", *J. Alloys Compd.*, Vol. 290, No. 1, (1999), Pp. 284-289.
- [78]. Wagih, A., "Mechanical properties of Al–Mg/Al₂O₃ nanocomposite powder produced by mechanical alloying", *Adv Powder Technol.*, Vol. 26, No. 1, (Jan.2015), Pp. 253–258.
- [79] R. Hamzaoui, S. Guessasma, and O. ElKedim, "Analysis of structure and magnetic properties of nanocrystalline milled alloys", *J. Alloys Compd.* 462, p 29, 2008.

- [80] D. Martínez-Blanco, P. Gorria, M. J. Pérez, J. A. Blanco, R. I. Smith, "Martensite–austenite transformation in Fe₈₀Ni₂₀ ball-milled powder", *J. Magn. Mater.* 316, p 328, 2007.
- [81] A. Guittoum, A. Layadi, H. Tafat, A. Bourzami, N. Souami, O. Lenoble, "Structure, Mössbauer and magnetic studies of nanostructured Fe₈₀Ni₂₀ alloy elaborated by mechanical milling" *Philos. Mag.* 88, p 1085, 2008.
- [82] Y. Rong, Q. Meng, Y. Zhang, T. Y. Hsu, Xu. Zuyao, "Phase stability and its intrinsic conditions in nanocrystalline materials", *Mater. Sci. Eng.* 438, p 414, 2006.
- [83] L.Yu. Pustov , V. V. Tcherdyntsev , S. D. Kaloshkin , E. I. Estrin ,E. V. Shelekhov , A. I. Laptev , D. V. Gunderov, "Face centered cubic phase stability and martensitic transformation under deformation in Fe-Ni and Fe-Mn alloys nanostructured by mechanical alloying and high pressure torsion", *Mater Sci and Eng.* 481, p 732, 2008.
- [84] C. N. Chinnasamy, A. Narayanasamy, K. Chattopadhyay, N. Ponpandian, "Magnetic properties of mechanically alloyed nanocrystalline Ni₃Fe", *NanoStruct. Mater.* 12 (1999) 951-954
- [85] M Schneider, J Liszkowski, M Rahm, W Wegscheider, D Weiss, H Hoffmann and J Zweck, "Configurations d'aimantation et boucles d'hystérésis de petites ellipses de permalloy" *J. Phys D: Applied Physics* 36 (2003) 2239-2243
- [86] A. Guittoum, A. Layadi, T. Kerdja, S. Lafane, S. Boutarfaia, "Pulsed excimer laser deposition of Permalloy thin films: structural and electrical properties" *Eur. Phys. J. AP* (in press) 2008
- [87] C. Stangl, P. Aigner, H. Hauser, J. Hochreiter, K. Riedling, *Third International Euro Conference on Advanced Semiconductor Devices and Microsystems ASDAM* (2000), p.57