

Intitulé du sujet de thèse :

Compréhension de l'évolution de la coercitivité dans les aimants NdFeB en fonction de la microstructure

CONTEXTE DE LA THESE

Depuis quelques années, les aimants permanents ont trouvé de nouveaux débouchés dans les technologies des énergies renouvelables, plus particulièrement dans les génératrices éoliennes et dans les moteurs de véhicules hybrides [1]. Les aimants utilisés dans ce type d'applications sont essentiellement des composés ternaires à base de terres rares, de type $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$; ils présentent des propriétés magnétiques remarquables : une induction magnétique rémanente de l'ordre de 1,4 T et une forte coercitivité (paramètre représentant la résistance au retournement de leur aimantation). Cette dernière propriété est caractérisée par la valeur du champ dit coercitif qui peut dépasser 1300 kA/m à 25 °C.

Ces applications requièrent des aimants fonctionnent à des températures élevées, typiquement 180 °C pour les moteurs de traction. A ces températures, la réduction de l'ensemble des propriétés magnétiques entraîne une réduction associée du champ coercitif, telle que les propriétés des matériaux deviennent inférieures à celles requises. La substitution au néodyme d'éléments de terre rare lourde très fortement anisotropes, tels que le Dy, permet de compenser la perte de coercitivité. Cependant, cette substitution présente plusieurs inconvénients importants. Le premier est d'ordre économique et stratégique car les ressources de Dy sont limitées au niveau mondial [2]. Le second provient de la baisse d'aimantation qu'entraîne la substitution du Nd.

L'origine fondamentale de la coercitivité du composé ternaire $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ se trouve dans la valeur de l'anisotropie magnétocristalline élevée ($K_1 = 4.3 \text{ MJ/m}^3$ à 20°C). Toutefois, les valeurs de coercitivité obtenues sur des aimants massifs sont environ 3-4 fois plus faibles que la valeur maximale attendue avec cette propriété d'anisotropie. Un meilleur contrôle de la microstructure des aimants élaborés (notamment la réduction de la taille des grains et l'obtention de structures cristallines constituées de phases secondaires réparties finement aux joints de grain) constitue un facteur important d'augmentation de la coercitivité, alternatif à la substitution par le Dy [3].

Une meilleure compréhension des processus de retournement de l'aimantation au sein de ces matériaux et de leurs liens avec les microstructures permettrait donc de proposer des évolutions des procédés actuels dans l'objectif de réduire les ajouts de terres rares lourdes.

OBJECTIFS DE LA THESE

Les travaux développés dans le cadre de la thèse devront contribuer à améliorer la connaissance des processus de retournement de l'aimantation dans les matériaux ferromagnétiques durs. Plus particulièrement, l'objectif sera d'affiner la description à une échelle microscopique des mécanismes d'aimantation [4].

La démarche proposée consistera dans un premier temps à caractériser les propriétés magnétiques « globales » de différentes microstructures de matériaux NdFeB. Il s'agit notamment de l'évolution de la coercitivité en fonction de la température et de l'orientation du champ appliqué qui sera étudiée sur ces microstructures [5]. Ces résultats seront interprétés à l'aide de différents modèles décrivant l'évolution de l'aimantation afin de tester leur capacité prédictive. Les microstructures analysées seront spécifiées puis réalisées (et/ou sélectionnées parmi des matériaux disponibles) de façon à exacerber l'impact d'un paramètre

microstructural (taille et forme des grains par exemple) et à étendre le domaine de validité du modèle.

Les procédés d'élaboration (et éventuellement les traitements à appliquer aux échantillons frittés) les plus adaptés à la réalisation de ces microstructures seront identifiés, en s'appuyant sur les moyens et compétences disponibles au CEA LITEN et à l'Institut NEEL. Par ailleurs, des outils de caractérisation spécifiques seront mis en œuvre (certains d'entre eux pour la première fois sur le NdFeB au CEA) afin d'apporter les éléments et les données d'entrées nécessaires à l'interprétation et à la modélisation de l'aimantation.

La thèse permettra d'implanter au CEA un nouvel outil de simulation micromagnétique qui sera utilisé pour consolider les interprétations de résultats expérimentaux. L'objectif sera de simuler le retournement de l'aimantation à l'échelle microscopique dans des configurations simplifiées et de comparer les résultats de tels calculs aux données expérimentales.

DEROULEMENT DE LA THESE

La thèse est articulée autour des 3 volets suivants :

1) La réalisation d'aimants de microstructures différentes

Les paramètres qui pourront varier seront la taille et la forme des grains, la présence et répartition de phase intergranulaire non-magnétiques (NdCu par exemple), l'anisotropie à la surface des grains (par diffusion de Dy).

Plusieurs approches seront utilisées. Des poudres de taille variable pourront être élaborées et mises en forme par frittage conventionnel ou SPS (Spark Plasma Sintering). L'ajout d'éléments d'addition dans l'alliage de départ pourra permettre de modifier les répartitions de phases intergranulaires. Enfin, certains traitements pourront être réalisés après frittage (diffusion du Dy, déformation mécanique) avec les équipements et procédures maîtrisés par le CEA et l'Institut NEEL.

2) La caractérisation des aimants

Plusieurs moyens de caractérisation seront mis en œuvre pour fournir des représentations de la microstructure nécessaires à l'interprétation et la mise en données des modèles numériques (la taille, répartition et forme des grains, l'identification des phases aux joints de grains, la distribution de certains éléments, Dy par exemple). Le doctorant s'appuiera sur les procédures de préparation des échantillons que le CEA et l'Institut NEEL développent conjointement pour l'observation et la caractérisation par TEM (Transmission Electronic Microscopy). D'autres outils de caractérisation fine, spécifiques aux processus magnétiques, tels que l'imagerie par MFM (Magnetic Force Microscopy) et par MOKE (Magneto Optic Kerr Effect) seront également accessibles au CNRS.

Les mesures magnétiques globales comprendront la mesure du champ coercitif en fonction de la température et de l'orientation du champ démagnétisant sur les équipements du CNRS.

3) La modélisation micro magnétique de l'aimantation

Une modélisation des processus d'aimantation au sein de matériaux ferromagnétiques « durs » sera réalisée à l'aide d'un logiciel de simulation micromagnétique disponible (GPMagnet). Cet outil de modélisation permet de résoudre les équations décrivant l'évolution dynamique de l'aimantation (équations LLG) par un schéma de résolution aux différences finies, en tenant compte de l'anisotropie, de l'échange, du champ externe et du champ démagnétisant. Ce code utilise les capacités de calcul parallèle de cartes graphiques actuelles afin de réduire considérablement les temps de calculs sur des machines standard [6]. Ces simulations seront réalisées sur des volumes limités de matériau (typiquement quelques

grains) et permettront de décrire les conditions de nucléation puis de propagation du retournement de l'aimantation. Notons que ces approches de simulation se développent actuellement dans plusieurs équipes de recherche et les premiers résultats publiés sur le NdFeB montrent leur pertinence pour l'étude de la coercivité en fonction des paramètres de microstructure les plus significatifs [7].

- [1] O. Gutfleisch, M. A. Willard, E. Brück, C. H. Chen, S. G. Sankar, and J. P. Liu, "Magnetic Materials and Devices for the 21st Century: Stronger, Lighter, and More Energy Efficient," *Adv. Mater.*, vol. 23, no. 7, pp. 821–842, Feb. 2011.
- [2] G. Rieger, "The use of permanent magnets in industrial and energy application at Siemens" *Proceedings of REPM 2014 Conference*, 2014.
- [3] Togo Fukada1, Masashi Matsuura, Ryota Goto, Nobuki Tezuka,, Satoshi Sugimoto, Yasuhiro Une and Masato Sagawa, "Evaluation of the Microstructural Contribution to the Coercivity of Fine-Grained NdFeB Sintered Magnets, *Materials Transactions*, vol. 53, no. 11, 1967-71, 2012.
- [4] D. Givord, M. Rossignol, and V. M. Barthem, "The physics of coercivity," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 258, pp. 1–5, 2003.
- [5] D. Givord, P. Tenaud, and T. Viadieu, "Angular dependence of coercivity in sintered magnets," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 72, no. 3, pp. 247–252, 1988.
- [6] L. Lopez-Diaz et al. "Micromagnetic simulations using Graphics Processing Units ", *J. Phys. D : Appl. Phys.* 45, 323001, 2012.
- [7] S. Bance, J. Fischbacher, and T. Schrefl, "Thermally-activated coercivity in core-shell permanent magnets" accepted in *J. Magn. Magn. Mater.* (2014).