Les matériaux magnétiques hyperfréquences : des ferrites aux métamatériaux

Les matériaux magnétiques doux et les métaux ferromagnétiques sont largement utilisés dans les applications hyperfréquences. Sans les supplanter, les métamatériaux, apparus plus récemment, peuvent se combiner avec eux pour en augmenter les potentialités. Deux autres systèmes, les couches minces et les microfils magnétiques, sont également remarquables pour leurs propriétés hyperfréquences.



Absorbants radar pyramidaux utilisés dans la chambre anéchoïque du Centre d'études scientifiques et techniques d'Aquitaine [CEA/Cesta] au Barp, près de Bordeaux. Des ferrites, qui absorbent le rayonnement électromagnétique dans certaines gammes de fréquences, peuvent être placés sous les absorbants pyramidaux en mousse pour en renforcer le caractère absorbant.

Les matériaux magnétiques sont depuis longtemps Lutilisés pour des applications **hyperfréquences**. Des inducteurs, des noyaux d'antennes et des filtres en **fer rite** sont couramment employés. Pour ces applications inductives, la **perméabilité** hyperfréquence $\mu(f)$ est une grandeur physique fondamentale qui permet d'apprécier les performances du matériau. La perméabilité décrit la réponse de l'induction *b* à un champ magnétique *h* oscillant à une fréquence *f* sous la forme: $b = \mu(f) \cdot \mu 0 \cdot h, \ \mu 0$ étant la perméabilité du vide. Ce sont donc des matériaux de perméabilité $\mu(f)$ élevée, permettant de générer une induction importante à

partir du champ créé par un courant, qui sont utilisés. Parmi les différentes classes de matériaux magnétiques, ce sont les matériaux **doux** qui présentent les perméabilités les plus élevées. Au contraire des **aimants permanents**, leur **aimantation** répond très bien à un petit champ magnétique extérieur.

Ces matériaux magnétiques sont aussi utilisés pour des applications **électromagnétiques**. Alors que pour des matériaux usuels, la propagation, la réflexion et la transmission à une interface dépendent d'un seul paramètre, le comportement des matériaux magnétiques dépend de deux paramètres indépendants, la **permittivité** et la perméabilité. Ce degré de liberté supplémentaire permet d'obtenir des propriétés inaccessibles avec un matériau diélectrique. À ce titre, les matériaux magnétiques sont utilisés comme substrats d'antennes, absorbants radars, filtres accordables, etc.

Enfin, lorsque ces matériaux magnétiques sont aimantés, ils deviennent non réciproques, c'est-à-dire que leurs caractéristiques dépendent du sens de propagation de l'onde qui les traverse. Cette non-réciprocité est mise à profit pour réaliser des circulateurs et des isolateurs employés dans les radars, les relais de téléphonie mobile, etc. Les ferrites et les grenats demeurent des matériaux de choix pour ces applications. Les premiers sont utilisés depuis fort longtemps comme matériaux hyperfréquences. Au CEA, Louis Néel a joué un rôle majeur dans la connaissance de ces matériaux. Plus récemment, les métaux ferromagnétiques ont connu un développement important pour ces applications. Enfin, depuis moins d'une décennie, les métamatériaux constituent une approche totalement nouvelle pour synthétiser des matériaux présentant des réponses magnétiques hyperfréquences originales.

Les matériaux ferromagnétiques à haute perméabilité

Dès la fin des années 1940, il est apparu qu'il existait un compromis entre le niveau de perméabilité hyperfréquence accessible et la fréquence maximale à laquelle on pouvait obtenir ce niveau. Selon la *loi de Snoek*, le



Louis Néel, prix Nobel de physique 1970, a joué un rôle majeur dans la connaissance des matériaux magnétiques. Acteur principal du développement de la science grenobloise dans la deuxième moitié du xx^e siècle, il a notamment été à l'origine de la création du CEA Grenoble.



Quelques éléments en ferrite pour applications hautes fréquences couramment utilisés dans des boîtiers électroniques ou radio : noyaux d'inducteurs (à gauche), filtre à ferrite (à droite) et noyau d'antenne (en bas).

produit de ces deux grandeurs est proportionnel à l'aimantation à saturation. Cette relation établit clairement l'intérêt de travailler avec des matériaux avant une aimantation à saturation supérieure à celle des ferrites: les métaux et alliages ferromagnétiques. Cependant, ces derniers sont très conducteurs. Les ondes hyperfréquences ne pénètrent dans les conducteurs que sur une épaisseur extrêmement réduite, appelée profondeur de peau. Pour utiliser ces matériaux à haute fréquence, il est donc nécessaire d'en disposer sous forme de couches minces, de fils ou de composites comportant des ferromagnétiques finement divisés. Des travaux menés au CEA en collaboration avec l'université Paris VII ont permis la synthèse de poudres de dimensions submicroniques aux propriétés remarquables (figure 1). De par leur taille inférieure à l'épaisseur de peau, ces poudres permettent d'interagir au maximum avec le champ électromagnétique hyperfréquence. Du fait de leur faible dispersion granulométrique, il a pu être observé sur ces poudres un comportement remarquable de la perméabilité, associée à une quantification des modes électromagnétiques excités dans chaque sphère. Les couches minces et les microfils magnétiques constituent deux autres systèmes remarquables par leurs propriétés hyperfréquences (voir respectivement Les couches minces magnétiques à haute perméabilité, p. 21 et Les microfils ferromagnétiques, p. 24).

Si le caractère conducteur des matériaux influence fortement leur réponse hyperfréquence, et ce de manière néfaste dans le cas des métaux ferromagnétiques, il est en revanche possible, en concevant habilement des motifs conducteurs, de créer une réponse magnétique à haute fréquence, même en l'absence de tout constituant magnétique. Il s'agit alors de *métamatériaux*.



Figure 1. Vue au microscope électronique à balayage d'une poudre de Fe_{0,13}[Co₈₀Ni₂₀]_{0,87} submicronique préparée par le procédé polyol.

La souplesse des métamatériaux

Un tel matériau, dont la figure 2 montre un exemple gravé sur un support de circuit imprimé, présente un pic de perméabilité autour de 1,5 **gigahertz** (**GHz**), bien qu'il ne comporte aucun constituant magnétique! Les métamatériaux ont engendré un élan d'intérêt exceptionnel dans la communauté de l'électromagnétisme depuis leur apparition, il y a moins de dix ans. Ils autorisent une grande souplesse dans la conception et la réalisation de matériaux présentant deux paramètres électromagnétiques indépendants. Profitant de cette latitude de conception, différents types de lentilles non limitées par les aberrations de diffraction ont été proposés. Plus récemment, la réalisation de "capes d'invisibilité" a été présentée. Il est aussi possible de profiter de l'énorme potentiel

d'intégration entre l'électronique et ces motifs de cui-

10 nm

Figure 2.

Métamatériau, constitué

de motifs de cuivre

imprimé, adapté

en ligne coaxial.

périodique gravés sur un support de circuit

à un fonctionnement

vre pour réaliser des matériaux "commandables". Au centre CEA du Ripault (Indre-et-Loire), l'équipe du Département matériaux l'a

> démontré avec la première réalisation d'un matériau dont la perméabilité hyperfréquence est accordable par une tension.

> > Les métamatériaux permettent de synthétiser des propriétés inaccessibles aux matériaux magnétiques conventionnels. Des matériaux magnétiques artificiels fonctionnant dans le domaine des fréquences visibles ont été réalisés. Inversement, les chercheurs du CEA ont aussi montré que les métamatériaux ne permettent pas d'atteindre des performances **larges bandes** comparables à celle

des matériaux ferromagnétiques, dès lors que l'on se situe à des fréquences inférieures à une dizaine de gigahertz. En combinant des motifs de cuivre et des matériaux magnétiques conventionnels, il est possible de combiner les avantages associés aux deux approches : des niveaux de perméabilité élevés et une ingénierie relativement aisée.

Des perspectives remarquables

Les métaux ferromagnétiques présentent donc des avantages qui leur permettent de supplanter les ferrites dans un certain nombre d'applications. Apparus plus récemment, les métamatériaux constituent une approche originale pour obtenir des propriétés magnétiques hyperfréquences et ouvrent la voie à des perspectives remarquables. S'ils ne peuvent pas remplacer les matériaux magnétiques conventionnels, ils peuvent se combiner avec eux pour en augmenter les potentialités.

> > Olivier Acher Direction des applications militaires CEA Centre du Ripault

Les couches minces magnétiques à haute perméabilité

Les couches minces magnétiques illustrent parfaitement le rapprochement des disciplines propres aux matériaux, aux composants et aux systèmes en réduisant considérablement la distance entre physiciens et concepteurs d'applications.

es couches minces magnétiques entrent dans des applications hyperfréquences aussi diverses que les têtes pour l'enregistrement magnétique et la lecture de disques durs, les dispositifs à électronique de **spin** (voir Stockage de l'information: les acquis et les promesses du nanomagnétisme et de la spintronique, p. 62), les filtres d'ondes (1), les inductances planaires pour la téléphonie mobile ou des systèmes de marquage antivol. L'ingénierie des couches minces, par la mise au point de nouveaux matériaux homogènes ou hétérogènes permet d'adapter leurs propriétés aux applications, les principaux défis étant de réaliser des dispositifs "agiles en fréquence" et/ou ayant des fréquences de fonctionnement élevées. Le CEA se place aujourd'hui au meilleur niveau de l'état de l'art mondial du domaine avec une pluridisciplinarité forte: de la physique fondamentale à l'applicatif technologique, en passant par l'instrumentation hyperfréquence. Avec deux grands objectifs: surmonter les contraintes liées aux faibles dimensions des dispositifs et répondre aux nouvelles exigences des applications en termes de fréquences.

Surmonter les limitations dimensionnelles

Les couches ferromagnétiques réalisées ont vocation à s'insérer dans des dispositifs de petites dimensions où la matière à proximité des bords du film ne devient plus négligeable par rapport à celle présente au cœur du dispositif. Il convient alors de caractériser la réponse du film dans ces zones éventuellement perturbées dont les propriétés magnétiques s'écartent du comportement **gyromagnétique** d'une couche mince de dimensions supposées infinies. Ainsi, pour diminuer son énergie propre, des couches micrométriques adoptent des structures en **domaines** magnétiques qui, selon les conditions d'excitation, vont donner lieu à une

(1) Filtre d'ondes : dispositif permettant de ne laisser

traverser qu'une partie des ondes électromagnétiques, en fonction de leur longueur d'onde, qui l'atteignent.



baisse globale des niveaux avec la réduction de taille de l'échantillon et l'apparition de pics de résonance supplémentaires à des fréquences inférieures à celles du pic principal. Ceci a été observé dans des microstructures d'alliages polycristallins comme le NiFe pour les pièces polaires des têtes de lecture ou les noyaux de micro-inductances où les parois constituant les domaines de fermeture latéraux (à 90° de la direction principale d'aimantation) entrent en résonance bien avant le phénomène gyromagnétique principal. Les alliages amorphes de CoZr ou de CoFeSiB adoptent également une structure fortement inhomogène dite en aiguille, formée d'alternance de domaines à aimantation antiparallèle de forme triangulaire imbriqués les uns dans les autres (figure 1). Dans les deux cas, les travaux menés au CEA ont montré que le nombre et la position de ces "pics secondaires" sont fonction de l'épaisseur déposée et des principales caractéristiques magnétiques de la couche (aimantation, anisotropie et constante d'échange).



Antenne bi-filaire imprimée (2 GHz) adaptée à l'utilisation de couches minces ferromagnétiques radiofréquences.

Figure 1. Images en microscopie Kerr de domaines en aiguilles et spectres de perméabilité associés pour des couches de CoZr d'épaisseurs croissantes de 0,2 µm à 1,9 µm. Figure 2. Configuration magnétique statique d'une couche en domaines en bande (a), modes de susceptibilité (b) et pics de résonance associés (c). δh_{rf} correspond au "champ magnétique d'excitation hyperfréquence" (h symbole du champ magnétique, δ pour "faible" et rf pour "alternatif").



Une autre limitation dimensionnelle est l'épaisseur déposée. En deçà de l'épaisseur de peau, des modifications de la structure magnétique de la couche peuvent faire disparaître le mode uniforme gyromagnétique recherché. En effet au cours du dépôt, de par des effets de contraintes ou de gradients de porosité, une anisotropie perpendiculaire à la couche se développe pour conduire la couche à adopter une structure magnétique dite en "domaines en bande" avec une composante de l'aimantation de la couche hors plan. La réponse hyperfréquence de cette structure est très chaotique et constituée de quelques pics très étroits. Ce phénomène a été étudié dans le cadre d'une collaboration avec Dassault Aviation. Une approche numérique a permis de rendre compte de ces spectres avec un excellent accord entre résultats théoriques et expérimentaux (figure 2).

Application aux inductances planaires

Une des contraintes fortes en vue de la miniaturisation des circuits RF (**CMOS** ou **BiCMOS**) est l'intégration des inductances qui comptent parmi les composants passifs les plus consommateurs en termes de surface des puces. L'intégration de films magnétiques à haute perméabilité sur silicium est une voie prometteuse. Les films de CoZr et de FeCoSiB amorphes déposés au Ripault ont été intégrés par le CEA-Léti dans une filière d'inductance RF à haut facteur de qualité. Ces travaux ont pour la toute première fois démontré un potentiel de réduction effectif de l'ordre de 10 à 15 % de la surface des *selfs*, à caractéristiques électriques équivalentes. Ce travail pionnier en la matière a ouvert les voies à un développement plus spécifique de films magnétiques pour la RF utilisant

Figure 3. Illustrations d'un empilement AF/F/AF (antiferromagnétique/ ferromagnétique), réplicable en itérations multiples, et spectres de perméabilité expérimentaux et théoriques associés.



des techniques de dépôt plus conventionnelles pour la microélectronique (figure 3), en partenariat avec **STMicroelectronics** à Crolles.

Les matériaux pour applications hautes fréquences

Les films nanocristallins à base de FeN et FeCoN

Pour répondre à un besoin croissant de matériaux à forte perméabilité à des fréquences de fonctionnement de plus en plus élevées, de nouveaux matériaux en structure laminée garantissant une utilisation à très haute fréquence sans limitation majeure due à l'effet de peau ont été étudiés. La motivation première du développement de films ferromagnétiques doux à base de Fe et de FeCo est liée à leur aimantation à saturation environ 20 % à 40 % plus grande, qui peut conduire à une perméabilité intrinsèque plus élevée à plus haute fréquence. Il a été montré que les films de FeXN et plus récemment de FeCoXN (où X est de préférence le tantale ou le hafnium) peuvent présenter des propriétés dynamiques remarquables avec des constantes d'amortissement exceptionnellement faibles à plusieurs gigahertz. Grâce à une microstructure cristalline très particulière composée de grains (< 5 nm) très finement dispersés dans une matrice amorphe, ces matériaux allient des résistivités élevées (typiquement 100 $\mu\Omega \cdot cm$) avec des aimantations à saturation fortes au-delà de 1 tesla. Cette combinaison remarquable permet notamment une intégration technologique du matériau magnétique au plus près de l'élément inductif en minimisant le risque de capacités parasites nuisibles au fonctionnement à haute fréquence des inductances spirales. L'évaluation numérique du gain en densité d'inductance surfacique indique des valeurs record dans ces conditions, supérieures à 100 %.

Les multicouches

ferromagnétiques/antiferromagnétiques Le couplage d'échange interfacial avec un matériau antiferromagnétique se traduit par le décalage du cycle d'hystérésis du matériau ferromagnétique vers une valeur de champ qui peut être très élevée. Cette propriété est à la base des dispositifs magnétorésistifs modernes (vannes de spin, jonctions tunnel...). Le

CEA a pu montrer que de tels matériaux, constitués d'une succession de films de NiMn ou IrMn et de FeCo, présentaient un comportement dynamique inégalé jusqu'à des fréquences pouvant dépasser plusieurs dizaines de gigahertz. Ils apparaissent donc comme une alternative aux matériaux précédemment décrits. Ils offrent des perspectives d'applications radiofréquences inégalées dans une gamme considérée comme inaccessible aux matériaux ferromagnétiques, au-delà de la dizaine de gigahertz. Ces matériaux ont permis la réalisation d'inductances radiofréquences avec des topologies simplifiées par rapport aux spirales, affichant des valeurs exceptionnelles de densité linéique d'inductance⁽²⁾ et des fréquences de fonctionnement record. Le couplage entre le brin conducteur et le matériau magnétique est maximisé dans ces structures. Cette topologie est aujourd'hui explorée pour la réalisation de brins résonants ou rayonnants miniatures pour les filtres et les antennes intégrées.

L'ouverture aux multicouches multiferroïques

Cette approche multicouche (ferromagnétiques / antiferromagnétiques) pouvant être qualifiée d'hétérogène ouvre une brèche encore peu explorée vers d'autres matériaux en couches minces pour les hyperfréquences dont on cherche à combiner artificiellement des propriétés de natures différentes (matériaux ferroélectriques, piézo-électriques...). On parle alors de matériaux multiferroïques hétérogènes en couches minces ou plus largement de matériaux fonctionnalisables pour les hyperfréquences. De plus, la tendance au rapprochement des disciplines propres aux matériaux, aux composants et aux systèmes réduit aujourd'hui considérablement la distance entre physiciens et concepteurs, si bien que les modèles physiques dynamiques des matériaux peuvent être pris en compte très tôt dans les flots de conception d'architectures RF complexes. Le domaine de la radio opportuniste⁽³⁾ est illustratif de ce tournant, domaine où la difficulté des enjeux en termes de multifonctionnalités des blocs d'émission - réception et de traitement du signal oblige à une telle rupture culturelle. Il s'ensuit aujourd'hui une extension très importante du champ d'application des couches magnétiques hyperfréquences depuis les inductances RF vers des solutions agiles en fréquence, au travers du couplage entre magnétisme et piézo-électricité des couches minces, par exemple. Un autre exemple concerne la réduction de taille des antennes après celles des inductances pour lesquelles le couplage entre ferromagnétisme et ferroélectricité aux niveaux de couches minces a entrouvert la voie à des solutions très novatrices.

Application aux dispositifs accordables en fréquence

Les nombreuses applications utilisant la technologie sans fil fonctionnent avec leurs propres standards de

- (2) Densité linéique d'inductance : valeur de la self
- $(exprimée en nanohenry nH) ramenée par unité de longueur de l'élément inductif (en mm), soit ici nH \cdot mm^{-1}.$
- (3) Radio opportuniste: système de transmission radio dans lequel l'équipement de radiocommunication matériellement le plus simple possible est capable de se configurer dynamiquement de façon logicielle pour traiter n'importe quel type de signal.

Les trois familles de matériaux

Les couches minces ferromagnétiques hyperfréquences sont généralement des alliages métalliques utilisant principalement le nickel, le cobalt et le fer. Le caractère "magnétique doux" nécessaire à l'obtention de perméabilités élevées est obtenu ici en "annulant" l'effet de la constante d'anisotropie magnétocristalline⁽¹⁾ qui est forte pour ces éléments massifs. Trois catégories de couches minces **ferromagnétiques** hyperfréquences existent actuellement.

La première regroupe les alliages **polycristallins** tels que le **permalloy** (FeNi) où la douceur de l'alliage est obtenue en ajustant la proportion entre les deux **métaux de transition**. La performance globale d'une couche étant liée à sa *perméance* (produit de la perméabilité et de l'épaisseur du film), les couches cristallisées faiblement résistives présentent de faibles épaisseurs de peau qui limitent les performances de ses matériaux.

La deuxième catégorie est celle des alliages **amorphes** où sont associés aux métaux de transition ferromagnétiques des métaux de transition non magnétiques (Zr, Pt, Nb, Ta...) ou des métalloïdes (B, Si...)^[2] qui garantissent la structure amorphe de la couche lors de sa fabrication par pulvérisation cathodique^[3].

La troisième regroupe les alliages nanocristallisés souvent obtenus par recuit et croissance de grains d'un alliage amorphe ou par dépôt réactif afin de réaliser des composés azotés ou carbonés FeN (Ta, Hf...) ou FeC.

Ces matériaux sont élaborés par un procédé de dépôt sous vide, la pulvérisation magnétron⁽⁴⁾. Cette technique permet de déposer une large gamme de compositions ferromagnétiques polycristallines, amorphes ou nanocristallisées. Le choix des conditions de dépôt permet d'en ajuster les propriétés magnétiques hyperfréquences. Les couches magnétiques peuvent être déposées sur **silicium**, mais aussi sur du verre ou des substrats plastiques.

(1) Constante d'anisotropie magnétocristalline: terme intervenant dans l'expression de l'énergie volumique de l'énergie magnétocristalline. Il quantifie la tendance qu'a l'aimantation à s'aligner selon des axes cristallographiques préférentiels.

(2) Métalloïdes: éléments dont les propriétés sont intermédiaires entre celles des *métaux* et celles des *non-métaux*. La plupart sont semi-conducteurs (bore, silicium, germanium, arsenic, antimoine, tellure et polonium).

(3) Pulvérisation cathodique: formation de couches minces par éjection d'atomes d'un matériau cible lors d'un bombardement par des ions de gaz rares accélérés sous haute tension.

(4) Pulvérisation (cathodique) magnétron : pulvérisation cathodique équipée d'un magnétron (un jeu d'aimants permanents situé sous la cible) afin d'augmenter la densité ionique au voisinage de cette cible. L'effet magnétron permet d'entretenir la décharge avec une plus faible pression, améliorant d'autant la qualité de la pulvérisation.

fréquence de communication. La recherche de réduction de coût tend à limiter le nombre de composants et s'oriente vers des systèmes accordables en fréquence. Une voie nouvelle utilisant un composite formé de films ferromagnétiques sur polymère empilés intégrés à une ligne de transmission a été proposée (figure 4). Dans un premier temps, l'accord en fréquence par application d'un champ magnétique statique décalant la fréquence de résonance de la couche magnétique a permis de valider le concept. Néanmoins l'intégration d'une bobine pour créer ce champ de commande était incompatible avec une intégration dans des circuits miniaturisés. Il a donc été envisagé d'utiliser la propriété dite de magnétostriction, c'està-dire de la sensibilité des propriétés magnétiques du matériau à la déformation. Des dépôts de matière ferromagnétique présentant un niveau de magnétostriction élevé sur des substrats piézo-électriques dont la déformation est ajustable à partir d'une simple tension électrique ont été réalisés. Le premier dispositif, qui donne des résultats encourageants, verra sa conception optimisée afin d'accroître ses performances. Les technologies MEMS sont également explorées pour mettre en œuvre ce principe à l'échelle des micro-

Figure 4. Illustrations d'inductances ferromagnétiques RF à géométrie spirale compatibles CMOS, fonctionnant de 0, 9 à 2,4 GHz (a), d'un brin conducteur en topologie coplanaire RF entièrement encapsulé par un matériau de type AF/F/AF (b) d'une inductance méandre fonctionnant à 5 GHz utilisant ce principe (c).



systèmes. L'utilisation d'un micro-actuateur piézoélectrique spécialement conçu permet un meilleur contrôle des contraintes (uniaxialité et amplitude élevées). Ceci rend possible l'ajustement des propriétés dynamiques de couches magnétiques très douces (donc modérément **magnétostrictives**) avec une plage d'accordabilité étendue et des tensions d'actuation faibles (plusieurs **GHz** pour quelques volts). Plus avantageuses que les varactors ⁽⁴⁾ (**CMOS** ou **MEMS**), les **inductances** variables MEMS⁽⁵⁾ offrent aujourd'hui de nouvelles perspectives aux concepteurs de filtres "passe bande" agiles et de VCO ⁽⁶⁾ accordables. Le CEA collabore sur ces thématiques principalement avec l'Université de Bretagne Occidentale (LEST, Laboratoire d'électronique et systèmes de télécommunications), l'université de Limoges (XLIM, qui fédère les recherches en mathématiques, optique, électromagnétisme et électronique) et l'Université de Rennes (IETR, institut d'électronique et de télécommunications de Rennes).

(4) Varactors CMOS: capacités variables utilisant

- des circuits actifs.
- (5) Inductances variables MEMS: inductances variables
- utilisant un actuateur mécanique.
- (6) VCO: oscillateurs contrôlés en tension utilisant
- des inductances et des capacités.

> Sébastien Dubourg
Direction des applications militaires
CEA Centre du Ripault
> Bernard Viala
Institut Léti
Direction de la recherche technologique
CEA Centre de Grenoble

Les microfils ferromagnétiques

Les fils métalliques ferromagnétiques ont des propriétés qui leur ouvrent des applications originales, notamment dans la détection. Le "code-barre" magnétique en est une.

Dans le domaine des fibres ou fils de diamètre micronique, les fibres de silice (ou fibres optiques) ont révolutionné notre vie quotidienne grâce à la rapidité de la transmission des informations qu'elles sont capables de véhiculer. Leurs homologues métalliques sont beaucoup moins connus, mais leurs propriétés, en particulier magnétiques, leur ouvrent des applications originales, notamment dans la détection, avec notamment le "code-barre" magnétique. Le CEA, pour sa part, avec le laboratoire Matériaux Magnétiques et Optiques (MMO) installé au Ripault (Indre-et-Loire), utilise depuis 1997 un procédé original (encadré 1) qui permet de réaliser des fils métalliques gainés de verre d'un diamètre micronique.

Des fils "trempés" pour obtenir un matériau amorphe

Le principe du procédé est le tirage d'un fil à partir de l'état liquide dans une gaine de verre. Sont ainsi élaborés des fils métalliques de diamètre compris entre 1 et 15 **micromètres** (μ m), entourés d'une gaine de verre d'épaisseur comprise entre 1 et 5 μ m. La longueur du fil obtenu sur une bobine peut atteindre la vingtaine de kilomètres! Dans les applications, la gaine de verre est en général conservée, souvent parce qu'elle apporte une fonction supplémentaire (isolation électrique, solidité mécanique...), mais elle peut



Image obtenue au microscope électronique à balayage (MEB) montrant la d'une coupe transversale d'un fil ferromagnétique dans sa gaine de verre.

également être retirée si besoin est, par attaque chimique par exemple.

De nombreux types d'**alliages** peuvent être transformés par ce procédé. Dans les applications phares du laboratoire, ce sont les alliages **ferromagnétiques** qui sont étudiés. Ils sont élaborés sous forme de lingot par un procédé mis en œuvre dans le laboratoire, la fusion par creuset froid (encadré 1). Les fils étant tirés à des vitesses de l'ordre de 10 m/s, l'alliage subit une **trempe** relativement rapide, de l'ordre de 10⁵ K/s. Pour certaines compositions de base cobalt ou fer, alliées avec un

Du procédé Taylor Ulitovsky au procédé de fusion en creuset froid

| 1



Tirage de fils par le procédé Taylor Uiltovsky. Le tube de verre, l'inducteur et le fil chaud (le petit trait rouge vertical au centre de l'image) sont visibles.

Loin des prouesses technologiques habituellement nécessaires pour élaborer des matériaux à l'échelle du micron, le centre du Ripault utilise depuis 1997 un procédé métallurgique simple et original pour réaliser des fils métalliques microniques, le procédé Taylor-Ulitovsky. Inventé par Taylor en 1925, il a été fortement perfectionné par Ulitovsky dans les années 60, notamment par l'introduction du chauffage par induction. En raison de sa tension de surface élevée, le métal ne peut pas être (comme pour un polymère ou un verre) étiré en fil d'un diamètre très fin à partir d'un bain de métal liquide. Afin de contourner cet obstacle, le bain de métal en fusion est placé dans un tube de verre qui se ramollit, et c'est l'ensemble verre-métal qui est étiré pour donner un fil de métal parfaitement cylindrique entouré d'une gaine de verre solidaire, sur plusieurs kilomètres. La viscosité du verre, qui varie fortement suivant la température du métal en fusion, est un paramètre déterminant pour contrôler le diamètre du fil métallique. L'autre paramètre déterminant du procédé est la vitesse à laquelle le fil est tiré, ce qui détermine le diamètre total du fil (métal et gaine de verre). L'épaisseur de la gaine de verre est comprise entre 1 et 10 µm. Ce procédé, longtemps utilisé en ex-URSS pour produire des fils de cuivre très fins utilisés pour faire des microbobines, a disparu dans cette application, car non compétitif face aux technologies de la microélectronique développées à l'Ouest.

Depuis 2001, le CEA/Le Ripault s'est équipé d'une installation d'élaboration d'alliages métalliques par fusion en creuset froid. Le principe consiste à fondre les proportions voulues d'éléments purs pour obtenir, sous forme liquide, un alliage à la



Alliage en cours d'élaboration dans le creuset froid.

composition souhaitée. Le métal liquide est ensuite coulé dans un moule refroidi, le tout sous atmosphère résiduelle d'argon. Le creuset froid est une sorte de bol formé par 17 secteurs indépendants en cuivre refroidi. Au fond, un orifice est obstrué par une tige amovible, le "doigt froid". Le creuset est placé à l'intérieur d'un **inducteur solénoïde** alimenté par un générateur apériodique HF.

Une fois les éléments (Co, Fe, Si, B...) placés dans le creuset, les métaux ferromagnétiques fondent sous l'effet de l'induction et les métalloïdes par contact avec les premiers. Lorsque tout est fondu, une boule d'alliage liquide, d'un volume maximum de 30 cm³, est brassée à l'intérieur du creuset. La sustentation magnétique la maintient en lévitation, sans contact avec les parois qui sont, dans les procédés classiques, une source importante de pollution. En retirant le doigt froid, les **lignes de champ** sont coupées et le métal liquide chute dans une lingotière refroidie qui peut avoir différentes formes. Ce procédé, à la fois simple, rapide et garantissant une bonne pureté, a permis l'étude des propriétés magnétiques de toute une gamme de compositions pour les microfils ferromagnétiques.

pourcentage de **métalloïdes** (bore, silicium...) entre 15 et 25 %, la trempe est suffisamment violente pour inhiber cinétiquement la cristallisation de l'alliage. Le métal se trouve alors à l'état **amorphe**, un état **métastable** caractérisé par une absence de **grains cristallins**, ce qui purifie le comportement magnétique des artefacts lié à la maîtrise de la structure (**joints de grains**, dispersion de la taille des grains, orientation...). Le **cycle d'hystérésis** observé peut alors être très proche des cycles théoriques.

Un "code-barre" magnétique

Dans ce cadre idéal, les propriétés magnétiques sont contrôlées par une source extérieure, les caractéristiques géométriques des fils. En effet, la gaine de verre joue ici un rôle essentiel et très particulier. Sous l'effet des contraintes mécaniques qu'elle exerce dans le métal, qui dépendent du ratio surfacique métal/verre, une anisotropie magnétique apparaît. Autrement dit, l'énergie magnétique qui doit être fournie pour aimanter le fil dans une direction (par exemple: parallèlement à son axe) dépend de l'intensité du coefficient de couplage magnéto-élastique (souvent appelé coefficient de magnétostriction) et du niveau de contraintes dans le métal. La figure montre le cycle d'hystérésis observé pour un coefficient de magnétostriction positif ou négatif lorsqu'un champ magnétique est appliqué parallèlement à l'axe du fil. Dans le premier cas, le cycle est rectangulaire, c'est-à-dire que le fil est naturellement aimanté dans son axe. Cette propriété est extrê-

Les alliages nanocristallisés

Traditionnellement, les alliages ferromagnétiques amorphes sont élaborés sous forme de ruban par une méthode dite de trempe sur roue qui permet de produire un ruban en continu, d'épaisseur 20 µm et de largeur 20 mm. Cependant, leurs applications (par exemple, pour les transformateurs de puissance) sont limitées parce que leurs propriétés se détériorent fortement sous l'effet de la température, du fait de la cristallisation de l'alliage. À la fin des années 80, Yoshizawa et al. (Journal of Applied Physics, 1988, 64, 6044) ont donné une nouvelle impulsion en présentant la famille Finemet à base Fe, soit un alliage métallique nanocristallisé de composition Fe_{73.5}Cu1Nb₃Si_{13.5}B₉. L'obtention de l'état nanocristallisé nécessite un traitement thermique à 600 °C pendant 1 heure du ruban amorphe, au cours duquel se forme la phase cristallisée α -(Fe-Si). À l'issue du recuit, la microstructure de du matériau présente deux phases : une phase composée de grains cristallisés Fe-Si cubique centrée, immergée dans une phase "matrice" amorphe ferromagnétique, riche en Fe, Nb et B. Le caractère novateur de la composition réside en l'ajout de cuivre et de niobium. Ces éléments vont restreindre le diamètre des grains à 15-20 nm en favorisant la nucléation⁽¹⁾ et en freinant la croissance de la phase cristallisée. Une

taille de grains de l'ordre du nanomètre est le

paramètre indispensable pour l'obtention des propriétés magnétiques recherchées. De par son caractère nanocristalllisé, la stabilité thermique des propriétés magnétiques en est accrue tout en conservant les caractéristiques des alliages conventionnels. En s'appuyant sur le concept développé par Yoshizawa, de nouvelles familles d'alliages nanocristallins ont vu le jour, toujours dans un souci de proposer une aimantation à saturation plus élevée associée à une tenue en température des propriétés magnétiques. Un exemple est la famille du type FeMBCu avec M = Zr, Nb ou Hf dont l'alliage le plus connu est Nanoperm, de composition Fe₈₈Zr₇B₄Cu₁. Le choix des métaux de transition M repose sur leur capacité à limiter la croissance des grains. La famille Hitperm est dérivée de la précédente par substitution du fer par du cobalt dont l'ajout a pour effet d'augmenter l'aimantation à saturation et la température de Curie de la phase amorphe. Au cours des dernières années, les familles d'al-

2

liages nanocristallisés se sont totalement intégrées dans le paysage industriel (Hitachi, Imphy, Magnetec...) où ces matériaux sont employés dans la fabrication de transformateurs, de capteurs magnétiques ou bien encore dans le codage magnétique.

(1) nucléation : étape d'agrégation dans l'arrangement correct d'objets en train de croître.



Figure.

Cycles d'hystérésis (aimantation en fonction du champ magnétique appliqué) typiques des fils. En haut, cycle d'un fil à magnétostriction positive et structure en domaine associé, en bas cycle d'un fil à magnétostriction négative et structure en domaine associé.

mement intéressante pour réaliser des applications de détection, par exemple pour identifier des produits. En effet, il est ainsi possible de créer un "code barre" magnétique. Cette application a d'ailleurs été brevetée par le CEA qui a licencié une *startup*, la société Cryptic, pour développer ce type d'application.

Le second type de cycle d'hystérésis est associé à une configuration spatiale de l'aimantation plus com-

plexe, avec des domaines magnétiques circonférentiels. Cette situation est favorable à l'excitation d'une **perméabilité magnétique** parallèle aux fils. Les applications liées sont alors variées, notamment dans des composants **radiofréquences**.

Des propriétés magnétiques hautes fréquences en température

La perméabilité dans le régime des hyperfréquences (autour du GHz) est une des forces du laboratoire MMO. Les chercheurs visent donc à maîtriser cette perméabilité du mieux possible et à améliorer les performances obtenues. L'utilisation des alliages CoFeSiB pose par exemple un problème : la tenue en température de la perméabilité n'est pas très bonne (évolution de l'état métastable, température de Curie faible...). Actuellement, ces alliages sont concurrencés par un nouveau type d'alliages, dits "nanocristallisés" (encadré 2). L'application de cette famille d'alliage aux fils à perméabilité hyperfréquence élevée a été effectuée très récemment par l'équipe du CEA. La baisse de perméabilité entre la température ambiante et 350 °C n'est que de 30 % pour ces compositions, alors que la perméabilité des fils amorphes comparables a chuté de plus de 80 %. Ces récents développements étendent donc les domaines d'application potentiels de ces fils.

> > Anne-Lise Adenot-Engelvin, Frédéric Bertin et Vincent Dubuget Direction des applications militaires CEA Centre du Ripault

MÉMO A

Les différentes formes de magnétisme

e magnétisme trouve essentiellement son origine dans les propriétés des électrons telles qu'elles sont expliquées par la physique quantique. Leur état quantique de spin est responsable d'une première partie du magnétisme (magnétisme de spin). Une deuxième partie est imputable au mouvement orbital des électrons autour du noyau de l'atome (magnétisme orbital) et également au magnétisme du noyau lui-même (magnétisme nucléaire), notamment mis à profit dans les techniques d'imagerie médicale par résonance magnétique nucléaire. Le magnétisme est donc produit par des charges électriques en mouvement. La force agissant sur ces charges, dite force de Lorentz, traduit la présence d'un champ magnétique.

L'électron possède un moment magnétique élémentaire (le quantum magnétique étant le magnéton imaginé par Bohr) qui peut être associé à l'image de son mouvement de rotation du spin sur lui-même dans un sens ou dans l'autre, orienté vers le haut ou vers le bas. Le nombre quantique de spin (un des quatre nombres qui "quantifient" les propriétés de l'électron) est égal à 1/2 (+ 1/2 ou - 1/2). Une paire d'électrons ne peut occuper la même orbitale que si l'un et l'autre sont de moments magnétiques opposés.

Chaque atome peut être assimilé à un petit aimant porteur d'un moment magnétique élémentaire. Le spin du noyau (**neutron** et **proton** ont eux-mêmes un spin demi-entier) est demi-entier si le **nombre de masse** est impair; nul si le nombre de masse et la charge sont pairs, et entier si le nombre de masse est pair et la charge impaire.

De nombreux moments magnétiques peuvent, à une échelle plus importante, constituer des domaines magnétiques dans lesquels tous ces moments sont orientés dans la même direction. Ces régions de l'espace sont séparées entre elles par des parois. Rassemblés, ces domaines peuvent eux-mêmes constituer un aimant à l'échelle macroscopique (figure E1). De l'organisation de ces constituants élémentaires dépend la manifestation de différents types de magnétisme, associés tra-

ditionnellement à trois grandes familles de matériaux : *ferromagnétiques*, *paramagnétiques* et *diamagnétiques*. Tous les matériaux qui ne sont pas dia-

magnétiques sont par définition paramagnétiques, dans la mesure où leur susceptibilité magnétique est positive, mais cette susceptibilité est particulièrement élevée dans les ferromagnétiques, qui constituent donc en eux-mêmes une famille. 1. Les matériaux ferromagnétiques sont constitués de petits domaines à l'intérieur desquels les atomes, présentant une aimantation parallèle, tendent à s'aligner comme autant de **dipôles** élémentaires dans la direction d'un champ magnétique extérieur. Les moments magnétiques de chaque atome peuvent s'aligner spontanément dans ces domaines, même en l'absence de champ extérieur. En présence d'un tel champ, les parois se déplacent et tendent à renforcer le champ appliqué. Si celui-ci dépasse une certaine valeur, le principal domaine orienté dans la direction du champ tendra à occuper tout le volume du matériau. Si le champ diminue, les parois se déplacent, mais pas de façon symétrique, une partie du mouvement "aller" des parois étant irréversible : il subsiste donc une magnétisation rémanente, importante dans les aimants proprement dits ou la magnétite naturelle.

L'ensemble du processus constitue un cycle d'hystérésis, la relation du champ induit au champ extérieur dessinant une *boucle*



Figure E1.

Les moments magnétiques élémentaires sont de même sens dans les substances ferromagnétiques (a), de sens opposés mais de somme nulle dans les antiferromagnétiques (b) et de sens opposé et de grandeur différente dans les ferrimagnétiques (c).



Figure E2.

L'induction B d'un matériau magnétique par une bobine n'est pas proportionnelle à l'excitation magnétique (champ H). Si la première aimantation dessine une courbe de type 0SS en bleu sur la figure, elle manifeste à partir de s une saturation. L'induction n'est conservée qu'en partie si le champ tend vers zéro ; cette induction rémanente ne peut être annulée que par une inversion du champ magnétique jusqu'à une valeur de champ "coercitif". Le cycle d'hystérésis traduit des pertes "par frottement" entre les domaines magnétiques. Ces pertes sont représentées par la surface que délimitent les courbes d'aimantation et de désaimantation.

ou *courbe d'hystérésis* dont la surface représente l'énergie perdue dans la partie irréversible de ce processus (figure E2). Pour annuler le champ induit, il faut appliquer un champ coercitif: les matériaux avec lesquels les aimants permanents artificiels sont réalisés présentent une valeur élevée de champ coercitif.

En général, le moment magnétique total des matériaux ferromagnétiques est nul, les différents domaines ayant des orientations différentes. Le ferromagnétisme disparaît si on dépasse une certaine température appelée **point de Curie**.

Le couplage collectif des spins entre centres métalliques du matériau ou d'un complexe de métaux de transition explique les propriétés magnétiques du matériau, les moments de tous les spins se trouvant tous orientés de manière identique.

Les matériaux dont les atomes sont éloignés les uns des autres dans leur structure **cristalline** favorisent un alignement de ces aimants élémentaires par couplage. Le fer, mais aussi le cobalt, le nickel et leurs **alliages**, en particulier les aciers, et certains de leurs composés appartiennent à cette catégorie caractérisée par une susceptibilité magnétique positive et très élevée, ainsi que,



Arrivée à la gare routière de Long Yang, à Shanghai (Chine), d'un train à sustentation magnétique du type Transrapid, d'origine allemande, mis en service en 2004 pour relier la ville à l'aéroport international de Pudong.

plus faiblement, certains métaux de la famille des terres rares, quelques alliages dont les mailles sont grandes et certaines combinaisons d'éléments n'appartenant pas euxmêmes à cette famille.

Dans les matériaux ferrimagnétiques, les domaines magnétiques constituent des ensembles pouvant être alignés dans des sens opposés (anti-parallèles), mais leur moment magnétique résultant diffère de zéro alors que le champ extérieur est nul (exemples de la magnétite, de l'ilménite ou des oxydes de fer). Le ferrimagnétisme s'observe dans des matériaux comportant deux types d'atomes se comportant comme des aimants de force différente et orientés en sens contraire. Si la somme des moments parallèles et anti-parallèles est nulle, il s'agit d'anti-ferromagnétisme (exemple du chrome ou de l'hématite). En effet, si les atomes sont plus rapprochés, la disposition la plus stable est celle d'aimants antiparallèles, chacun compensant en quelque sorte son voisin (figure E1).

2. Les matériaux paramagnétiques présentent un comportement de même nature que les ferromagnétiques, bien que beaucoup moins intense (leur susceptibilité magnétique est positive mais très faible, de l'ordre de 10-3). Chaque atome d'un tel matériau a un moment magnétique non-nul. Sous l'action d'un champ extérieur, les moments magnétiques s'orientent et augmentent ce champ, qui décroît cependant avec la température, l'agitation thermique désorientant les dipôles élémentaires. Les matériaux paramagnétiques perdent leur aimantation dès qu'ils ne sont plus soumis au champ magnétique. La plupart des métaux, y compris des alliages d'éléments ferromagnétiques, font partie de cette famille, ainsi que des minéraux comme la pegmatite.

3. Les matériaux diamagnétiques présen-

tent une susceptibilité magnétique négative et extrêmement faible (de l'ordre de 10⁻⁵). La magnétisation induite par un champ magnétique s'opère dans la direction opposée à ce dernier : ils ont donc tendance à s'éloigner le long de ses lignes de champ vers les zones de faible champ. Un diamagnétique parfait offrirait une résistance maximale au passage du champ magnétique et présenterait une perméabilité nulle. Les métaux comme l'argent, l'or, le cuivre, le mercure ou le plomb, le quartz, le graphite, les gaz rares ainsi qu'une grande majorité des composés organiques se rangent dans cette catégorie.

En fait, tous les corps présentent peu ou prou ce phénomène de diamagnétisme, imputable à la déformation des orbitales électroniques des atomes sous l'action d'un champ extérieur, phénomène réversible avec la disparation du champ extérieur. Comme Michael Faraday l'a montré en son temps, toute substance est donc plus ou moins "magnétisable" pour autant qu'elle soit placée dans un champ magnétique suffisamment intense.

L'électromagnétisme

C'est le Danois Hans Christian Ørsted, professeur à l'Université de Copenhague qui, le premier, a fait autour de1820 le lien entre les deux domaines jusqu'alors complètement séparés de l'électricité et du magnétisme. Il a mis en évidence la déviation de l'aiguille d'une boussole à proximité d'un fil parcouru par un courant électrique, avant que Faraday n'énonce la loi qui porte son nom : le champ magnétique produit est d'autant plus fort que l'intensité du courant est importante. La discipline qui étudie les champs magnétiques statiques (ne dépendant pas du temps) est la magnétostatique. Le champ magnétique forme, avec le champ



Vue de détail des aimants pour le quidage et la propulsion du train.

électrique, les deux composantes de l'électromagnétisme. Des ondes peuvent se propager librement dans l'espace, et dans la plupart des matériaux, dans tous les domaines de longueur d'onde (ondes radio, micro-ondes, infrarouge, visible, ultraviolet, rayons X et rayons gamma). Les champs électromagnétiques sont donc une combinaison de champs de force électriques et magnétiques naturelle (le champ magnétique terrestre) ou non (de basses fréquences comme les lignes et les câblages électriques, ou de plus haute fréquence comme les ondes radio (téléphone cellulaire compris) ou de télévision.

Mathématiquement, les lois de base de l'électromagnétisme sont résumées dans les quatre équations de Maxwell (ou de Maxwell-Lorentz) qui permettent de décrire l'ensemble des phénomènes électromagnétiques de manière cohérente, de l'électrostatique et la magnétostatique à la propagation des ondes. James Clerk Maxwell les a formulées en 1873. trentedeux ans avant qu'Albert Einstein ne place la théorie de l'électromagnétisme dans le cadre de la relativité restreinte, qui expliquait ses incompatibilités avec les lois de la physique classique.