

République Algérienne Démocratique et populaire

Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique

Université M'Hamed Bougara- BOUMERDES

Faculté des sciences

Département de physique



Ecole Doctorale : Sciences et Ingénierie des Matériaux et Environnement

Spécialité : Physique des Matériaux

Mémoire de Magister

Thème

Propriétés structurales et spectroscopie Mössbauer des nanomatériaux $Fe_{80}Ni_{20}$ élaborés par mécanosynthèse

Présenté par

M^{elle} LAMRANI Sabrina

Devant le jury composé de :

M ^{me} : Benbrahim Nassima	Professeur, Univ. de Tizi Ouzou	Présidente
M ^f : Guittoum Abderrahim	Maître de Recherche, CRNA- Alger	Rapporteur
M ^f : Bourzami Abdelkader	Professeur, Univ. de Sétif	Examineur
M ^f : Messaadi Saci	Professeur, Univ. de Batna	Examineur
M ^f : Laggoun Ali	Maître de Conférences /A, Univ. de Boumerdes	Examineur

Année universitaire : 2010/2011

Remerciements

Ce travail de mémoire a été réalisé au laboratoire de spectroscopie Mössbauer de la division des techniques nucléaires du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger.

Mes premiers remerciements s'adressent à mon encadreur M^r Guittoum Abderrahim Maître de Recherche au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, pour m'avoir proposé ce sujet, pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire, pour sa disponibilité, ses précieux conseils, sa gentillesse et sa patience lors des moments difficiles.

Je remercie M^{me} Benbrahim Nassima Professeur à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou, pour m'avoir fait l'honneur de présider ce jury.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à M^r Bourzami Abdelkader, Professeur à l'Université Farhat Abbas de Sétif, pour avoir accepté d'examiner ce travail.

J'adresse mes remerciements à M^r Messaadi Saci, Professeur à l'université de Batna, pour avoir accepté de faire parti de ce jury de mémoire.

Mes plus profonds remerciements s'adressent à M^r Laggoun Ali, Maître de conférences classe A à l'Université M'hemmed Bouggara de Boumerdes, pour son aide et pour avoir accepté d'examiner ce travail de mémoire.

J'adresse également ma sincère reconnaissance à la personne de M^r Souami Nassim, Chargé de Recherche au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, pour sa coopération dans la partie relative à l'étude microstructurale de ce travail de recherche.

J'exprime ma gratitude à M^{me} Melzi Zahida, Ingénieur d'état à la Division des Techniques Nucléaires, pour avoir effectué les expériences des rayons X.

Je tiens à remercier vivement mes collègues au laboratoire de spectroscopie Mössbauer : Boukherroub Nadia, Kaibi Amel, Khezrane Mohammed et Akkouche Kamel.

Je tiens à dire merci à mes fidèles amis, sans lesquels, je n'aurai sans doute pas eu le courage de finir ce travail.

Pour finir, je remercie ma famille pour leur amour, leur soutien, leur aide, leur confiance et leur compréhension. A ma maman, je dis qu'elle est une femme exceptionnelle et que je suis fière d'être sa fille.

Dédicace

« A la mémoire de mon père »

Sommaire

Introduction générale.....	1
Chapitre I: Généralités sur le magnétisme et les nanomatériaux	
I. A. Rappels sur le magnétisme.....	3
I. A. 1. Historique.....	3
I. A. 2. Notions de magnétisme.....	4
A. 2. 1. Matériaux diamagnétiques.....	4
A. 2. 2. Matériaux paramagnétiques, ferromagnétiques, antiferromagnétiques et ferrimagnétiques.....	5
I. A. 2. 2. 1. Le paramagnétisme	5
I. A. 2. 2. 2. Le ferromagnétisme	6
I. A. 2. 2. 3. L'antiferromagnétisme	8
I. A. 2. 2. 4. Le ferrimagnétisme	9
I. B. Généralité sur les nanomatériaux	10
I. B. 1. Définition	10
I. B. 2. Classification de matériaux magnétiques	10
I. B. 2. 1. Nanomatériaux magnétiques.....	11
I. B. 2. 1. 1. Les amorphes nanocristallins.....	11
I. B. 2. 1. 2. Alliages binaires nanocristallins obtenus par broyage mécanique.....	13
I. B.3. Quelques applications des nanomatériaux magnétiques.....	13
Chapitre II : Etat de l'art des nanomatériaux Fe₈₀Ni₂₀ élaborés par mécanosynthèse.	
II. A. La mécanosynthèse.....	14
II. A. 1. Définition	14
II. A. 2. Appareillage	15
II. A. 2. 1. Broyeur attriteur	15
II. A. 2. 2. Broyeur vibratoire.....	15

II. A. 2. 3. Broyeur planétaire	16
II. B. Etudes antérieurs sur l'alliage Fe ₈₀ Ni ₂₀	17
II. B. 1. Rappel et généralités.....	17
II. B. 1.1. Le fer	17
II. B. 1.2. Le nickel.....	17
II. B. 1. 3. Les alliages Fer-Nickel.....	18
II. B. 1. 4. La structure de l'alliage Fe ₈₀ Ni ₂₀ obtenue par mécanosynthèse	19
II. B. 1. 4. 1. L'influence du temps de broyage sur l'évolution de la structure	19
II. B. 1. 4. 2. L'influence de la puissance des chocs durant le broyage.....	22
II. B. 1. 4. 3. Influence de l'intensité de broyage sur la région biphasée	22
II. B. 1. 5. Propriétés magnétiques et hyperfines.....	23
II. B. 1. 5.1. Influence de la composition sur les propriétés magnétiques.....	23
II. B. 1. 5.2. Influence du temps de broyage sur les propriétés magnétiques.....	23
II. B. 1.5. 3. L'influence du temps de broyage sur les propriétés hyperfines.....	26
II. B. 1. 5. 4. Influence de l'intensité du broyage sur le champ hyperfin	27
Conclusion	29
Chapitre III : Elaboration, propriétés structurales et microstructurale des nanomatériaux Fe₈₀Ni₂₀	
III. 1. Elaboration des poudres	30
III. 1. 1. Vario-Broyeur Planétaire Pulverisette 4	30
III. 1. 2. Outils de broyage	32
III. 1. 3. Atmosphère de broyage	32
III. 1. 4. Préparation des échantillons.....	33
III. 1. 5. Mode de broyage.....	34
III . 2. Caractérisation des poudres par diffraction des rayons X.....	35

III. 2. 1. Principe.....	35
III. 2. 2. Dispositif expérimental.....	36
III. 2. 3. Résultats de la DRX et discussions	37
III. 2. 3. 1. Traitement des résultats	38
III. 2. 3. 2. Evolution du paramètre de maille	40
III.2. 3. 3. Evolutions de la taille des grains et des microdistorsions	41
III. 3. Caractérisation des poudres par microscopie électronique à balayage	44
III. 3. 1. Principe de fonctionnement du microscope.....	44
III.3. 2. Dispositif expérimental.....	45
III. 3. 3. Résultats et discussions.....	46
III. 3. 3. 1. Morphologie et analyse EDX.....	46
III. 3. 3. 2. Cartographies par EDX	53
III. 3. 3. 2. 1. Mise en forme des poudres par compaction.....	52
III. 3. 3. 2. 2. Résultats des cartographies	52
Conclusion.....	54
 Chapitre IV: Spectroscopie Mössbauer des nanomatériaux Fe₈₀Ni₂₀	
IV. A. Aspect théorique de la spectroscopie Mössbauer.....	55
IV. A. 1. Phénomène de résonance.....	55
IV. A. 2. L'influence de l'environnement sur les niveaux nucléaires.....	57
IV. A. 2. 1. Interaction monopolaire électrique (effet de taille)	58
IV. A. 2. 2. Interaction quadripolaire électrique.....	59
IV. A. 2. 3. L'interaction magnétique Zeeman.....	60
IV. B. Aspect expérimental de la spectroscopie Mössbauer.....	61
IV. B. 1. Montage expérimentale	63
IV. B. 2. L'acquisition des spectres Mössbauer	64

IV. B. 2. 1. Sélection de la raie Mössbauer	64
IV. B. 2. 2. Calibration du spectromètre	65
IV. B. 3. Préparation des échantillons.....	62
IV. B. 4. Traitement des résultats	63
IV. B. 5. Résultats et discussions	63
IV. B. 6. Modèle de l'environnement local.....	67
Conclusion	72
Conclusion générale.....	71
Références bibliographiques.....	73

Introduction générale

Introduction générale

Les matériaux nanostructurés appelés communément « nanomatériaux » sont des matériaux possédant une taille des grains inférieure à 100 nm. Ces matériaux, variant sur une échelle de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres, sont caractérisés par la présence d'une fraction d'atomes associés à une zone interfaciale avec un arrangement désordonné appelée communément joint de grain dans le cas des poudres nanostructurées. Cette fraction située aux joints de grains peut offrir aux nanomatériaux des propriétés intéressantes qui n'existent pas à l'état massif

Les nanomatériaux ont fait l'objet d'études intensives ces dernières années en raison de leurs applications potentielles et qui couvre plusieurs domaines de recherche, tels que le magnétisme, l'électronique, l'optique, etc.. Récemment, les matériaux magnétiques nanocristallins ont été intensivement étudiés en raison de leurs propriétés remarquables à savoir l'aimantation à saturation, le champ coercitif, la température d'ordre magnétique et le champ magnétique hyperfin, qui diffèrent sensiblement de celles des matériaux microcristallins et sont intimement liées à la structure et la microstructure. De plus, la réduction de la taille des grains vers l'échelle du domaine magnétique ouvre le champ de recherche pour de nouveaux nanomatériaux magnétiquement doux.

Les composés nanostructurés FeNi font l'objet de nombreuses études tant fondamentales qu'appliquées en raison de leurs propriétés physiques singulières. Cependant, dans la pratique, un alliage magnétique ne peut jouir de toutes ces propriétés à la fois. En effet, les propriétés magnétiques de ces matériaux dépendent des proportions des matériaux composants et de la texture cristalline qui est étroitement liée à la méthode ainsi qu'aux conditions d'élaboration.

Plusieurs méthodes ont été utilisées pour l'élaboration des nanomatériaux FeNi. Parmi ces méthodes, nous pouvons citer, entre autre, la méthode sol gel, la pyrolyse laser et la mécanosynthèse. Cette dernière est un processus de synthèse hors équilibre qui permet l'obtention de poudres nanostructurées métastables à partir d'un mélange de poudres élémentaires.

Dans ce travail de mémoire, nous nous sommes intéressés à l'élaboration, par mécanosynthèse, des poudres nanostructurées Fe₈₀Ni₂₀. L'objectif principal de cette étude est de voir la possibilité d'élaborer des nanomatériaux Fe₈₀Ni₂₀ possédant des propriétés magnétiques douces. Afin de mieux suivre l'évolution de la formation, en fonction de la durée

de broyage, du composé $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$, nous avons utilisé différentes méthodes de caractérisation à savoir: la diffraction des rayons X (DRX), la microscopie électronique à balayage (MEB) couplé à l'EDX et la spectroscopie Mössbauer en mode transmission.

Ce mémoire de magister est structuré en quatre chapitres:

- ❖ Le chapitre I comporte des généralités sur le magnétisme et les nanomatériaux magnétiques.
- ❖ Le chapitre II présente une définition détaillée de la méthode d'élaboration « mécanosynthèse ». Il comporte aussi un résumé de l'ensemble des travaux de recherches publiés sur les propriétés physiques des nanomatériaux $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ élaborés par broyage mécanique à haute énergie.
- ❖ Le chapitre III est consacré aux dispositifs d'élaboration et de caractérisations des poudres $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ élaborés dans ce travail de recherche. Il traite également les résultats obtenus par la diffraction X et la microscopie à balayage couplé à l'EDX.
- ❖ Le chapitre IV est dédié à l'étude par spectroscopie Mössbauer des poudres $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ Spectroscopie Mössbauer. Il comporte, en plus des fondements théoriques de cette technique, une description détaillée du montage expérimental utilisé. Il contient également les résultats relatifs à l'évolution de la structure hyperfine de l'alliage en fonction de la durée de broyage.
- ❖ Enfin, une conclusion générale qui résume les principaux résultats obtenus dans ce travail de recherche et donne des perspectives sur le travail future qui pourra être effectué.

Chapitre I :
Généralités sur le magnétisme et les nanomatériaux
magnétiques

I. A. Rappels sur le magnétisme

A. 1. Historique

Le plus ancien manuscrit mentionnant l'existence des pierres d'aimant est l'œuvre d'un écrivain chinois, Guanzhong (mort en 645 avant Jésus Christ.), ce terme désigne des minéraux magnétiques à base de fer : $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$, $\text{FeO-TiO}_2\text{-Fe}_2\text{O}_3$; parfois aussi FeS_{1+X} , et surtout la magnétite Fe_3O_4 .

Les égyptiens lui ont donné le nom de pierre vivante, les chinois les pierres tendres, les grecques magnètes, qui a évolué en magnitis, d'où est dérivé le terme moderne de magnétite. L'intérêt porté à ces pierres est dû à leur capacité à attirer le fer. Il a également été prouvé que le caractère de directivité vers les pôles géographiques terrestres des pierres d'aimant naturelles était également connu depuis longtemps par les chinois qui ont fabriqué les premières boussoles d'abord sous forme de cuillère puis sous forme de poisson directifs (figure.I. 1.).

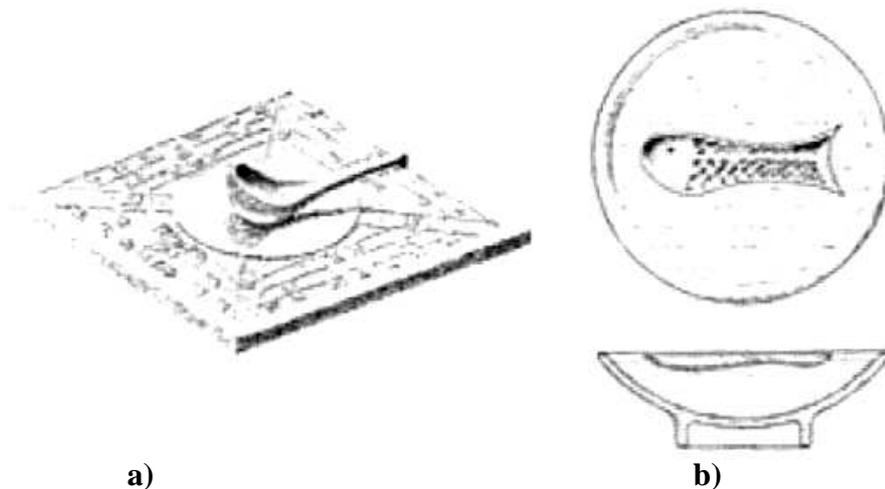


Figure I. 1. Schémas représentant les premières boussoles: a) Une «cuillère directive», b) Un «poisson directif ».

La fabrication des premières vraies boussoles a été décrite en 1086 par Shen Kuo. En 1269, Pierre Pelerin de Maricourt ont introduit la notion de pôle magnétique et en 1600 l'anglais William Gilbert conclut que la terre elle-même est un aimant géant. En 1820, le physicien danois Hans Oersted a montré qu'un champ magnétique pouvait être créé par la circulation d'un courant électrique dans un fil conducteur. Dans les semaines qui suivirent, André-Marie Ampère renouvela cette expérience et montra qu'une boucle circulaire de courant engendrait un champ magnétique identique à celui créé par un dipôle magnétique, et suggéra que le magnétisme de

la matière pourrait bien être créée par de petites boucles de courant électrique à l'échelle moléculaire. En 1821, le physicien anglais Michael Faraday a découvert le phénomène d'induction et inventa le premier dynamo. En 1864 le physicien écossais James Clark Maxwell a introduit les fameuses équations de l'électromagnétisme qui portent son nom. Puis, Pierre Curie (1859 - 1906) a introduit les notions de paramagnétisme, diamagnétisme et ferromagnétisme sur les quels nous reviendrons plus en détails dans ce qui suit. D'autres scientifiques ont contribué à la compréhension des phénomènes magnétiques, tel que Paul Langevin (1872 - 1946) en étudiant le magnétisme induit et permanent, Pierre Weiss (1865 - 1940) par son hypothèse du champ moléculaire, Louis Néel, qui reçut en 1970 le prix Nobel de physique pour ses théories sur l'antiferromagnétisme et le ferrimagnétisme. Le développement de la mécanique quantique a également joué un rôle important dans l'étude des phénomènes magnétiques, notamment par la découverte du spin et l'explication des interactions magnétiques par Heisenberg en étant un couplage de deux spins voisins.

Grâce aux nouvelles techniques de micro et nano fabrication, permettant la réduction en tailles, l'étude des matériaux magnétique a subi un nouvel essor depuis le milieu des années 1990. Ces matériaux offrent des perspectives d'applications immenses [1].

I. A. 2. Notions de magnétisme

Lorsqu'on applique un champ magnétique H à un matériau, celui-ci agit sur les moments magnétiques des atomes. Les origines principales de ces moments dans un atome libre sont le spin des électrons, leur moment cinétique orbital et la variation du moment orbital créée par l'application du champ magnétique. Selon le type d'atomes, et le type d'interaction existant entre leurs moments, il peut y avoir plusieurs types de comportement magnétique. Le paramètre permettant la classification des matériaux suivant leur comportement magnétique est la susceptibilité magnétique χ_m , définie par :

$$\vec{M} = \chi_m \cdot \vec{H} \quad (\text{I. 1})$$

Où H désigne le champ magnétique appliqué, et M l'aimantation. Ainsi la classification des matériaux magnétiques se fait comme suit :

I. A. 2. 1. Matériaux diamagnétiques ($\chi_m < 0$):

Lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur à un matériau diamagnétique, les charges électriques tendent à protéger l'intérieur du matériau. En effet, sous l'influence de

ce champ, les charges se déplacent pour produire un courant qui à son tour va produire un champ magnétique opposé à celui qui lui a donné naissance. La susceptibilité est pratiquement indépendante du champ et de la température et est de l'ordre de 10^{-5} (figure I.2) [1].

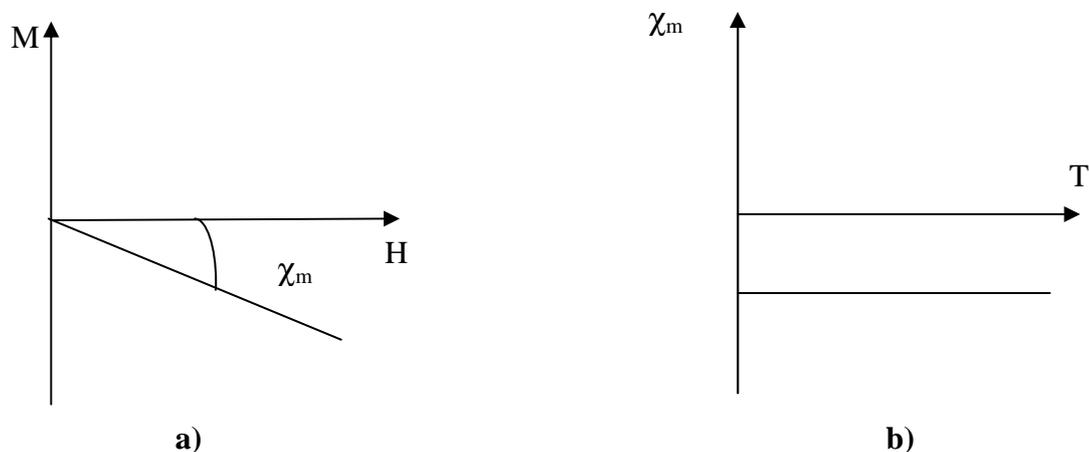


Figure. I. 2. Variation des grandeurs magnétiques d'une substance diamagnétique: a) variations sous champ magnétique de l'aimantation, b) variation thermique de la susceptibilité magnétique.

I. A. 2. 2. Matériaux paramagnétiques, ferromagnétiques, antiferromagnétiques et ferrimagnétiques ($\chi_m > 0$) :

I. A. 2. 2. 1. Le paramagnétisme

Le paramagnétisme se rencontre dans les substances ayant un moment magnétique permanent. Ces moments n'interagissent pas entre eux. Sous l'action d'un champ magnétique extérieur, la valeur moyenne de l'orientation des moments est modifiée et une aimantation induite parallèle au champ apparaît. Toutefois, cette aimantation possède une valeur très faible car sous l'effet de l'agitation thermique les moments magnétiques sont orientés de manière aléatoire. La susceptibilité diminue en fonction de la température et sa valeur est comprise entre 10^{-3} et 10^{-5} à température ambiante (figures I.3, I.4) [1].



Figure. I. 3. Orientation des moments magnétiques dans un matériau paramagnétique: a) en absence de champ magnétique, b) en présence de champ magnétique.

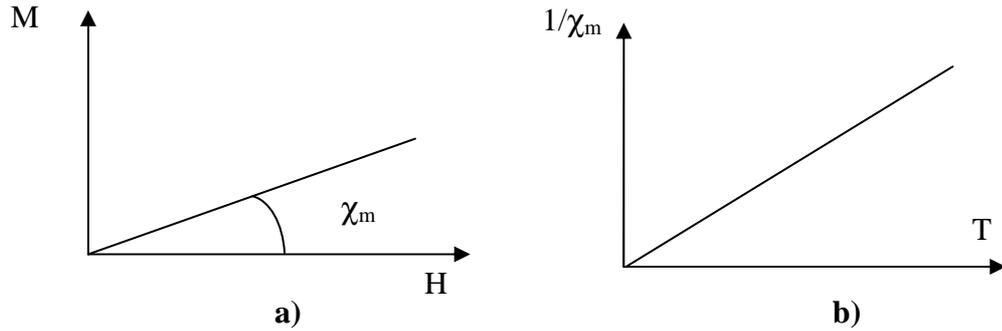


Figure. I. 4. Variation des grandeurs magnétiques d'un matériau paramagnétique: a) évolution de l'aimantation, b) variation de l'inverse de la susceptibilité en fonction de la température.

I. A. 2. 2. 2. Le ferromagnétisme :

Un corps ferromagnétique possède un moment magnétique spontané (même en absence de champ extérieur) [2]. Sous l'effet du champ magnétique, ces matériaux s'aimantent fortement et peuvent garder une certaine aimantation même en champ nul. L'existence de cette aimantation, peut s'expliquer par la mise en ordre des moments magnétiques permanents d'atomes voisins qui interagissent entre eux.

Au-delà d'une certaine température appelé température de Curie T_c , le matériau devient paramagnétique (l'agitation thermique brise l'ordre magnétique). En dessous de cette température, il existe donc une aimantation spontanée, le maximum M_0 correspond à l'alignement de tous les moments magnétiques dans la même direction (figure. I. 5) [1]. La susceptibilité χ_m d'un ferromagnétique s'écrit :

$$\chi_m = \frac{C}{(T - T_c)} \quad (\text{I.2})$$

Où C est la constante de Curie [2]

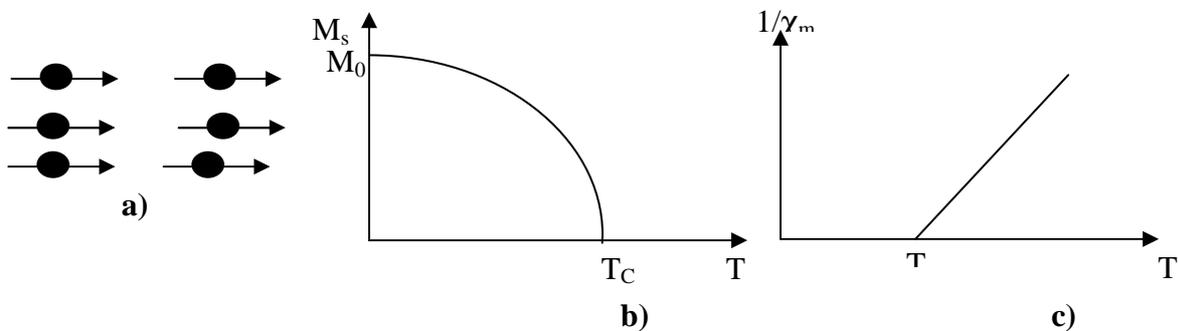


Figure. I. 5. Le ferromagnétisme : a) Réseau ferromagnétique à basse température, b) Variation de l'aimantation spontanée M_s en fonction de la température, c) Variation de l'inverse de la susceptibilité d'un corps en fonction de la température.

Mais alors pourquoi les matériaux ferromagnétiques, tel que le fer par exemple, ne sont pas toujours spontanément aimantés ? Ceci s'explique par le fait que l'intérieur du matériau est divisé en domaines magnétiques, appelés domaines de Weiss ; chaque domaine, qui comporte un grand nombre d'atomes, est spontanément aimanté. D'un domaine à un autre, la direction des moments, c'est-à-dire l'aimantation spontanée locale, varie de sorte que le moment magnétique total de l'échantillon est nul [1]. L'interface entre un domaine et un autre sont appelés « parois de Bloch » à travers lesquelles l'orientation des moments magnétiques passe progressivement d'une orientation à l'autre. Cette structure dite « structure en domaine » prend spontanément naissance pour abaisser l'énergie magnétique totale du solide [3]. La figure.I. 6, représente un schéma des domaines de Weiss séparés par des parois. La largeur des parois s'étend de quelques nm à la centaine de nm.

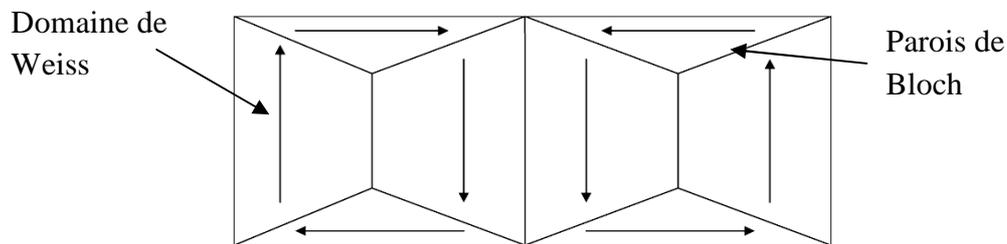


Figure. I. 6. Orientations des domaines magnétiques d'un monocristal ferromagnétique en l'absence de champ magnétique extérieur [4].

Pour suivre le comportement magnétique d'un matériau, on applique un champ magnétique extérieur qui augmente graduellement jusqu'à une valeur maximale puis diminue jusqu'à la valeur nulle. Ainsi, pour les matériaux ferromagnétiques, une fois la saturation est atteinte (alignement de tous les moments magnétiques dans la direction du champ appliqué) et lorsqu'on annule le champ appliqué, l'aimantation du matériau ne suit pas le même chemin qu'à la montée du champ. Le matériau garde ainsi une certaine aimantation dite aimantation rémanente (M_R). L'origine de cette aimantation rémanente s'explique par le fait que les domaines qui constituent le matériau ne suivent pas un comportement réversible. Par conséquent, pour réduire à zéro l'aimantation du matériau, il faut appliquer un champ en direction opposée au premier champ; la valeur pour laquelle l'aimantation de l'échantillon s'annule est nommée champ coercitif (H_C). Par ailleurs, en augmentant la valeur du champ magnétique dans la direction négative, on atteint de nouveau la saturation, mais dans l'autre sens. Si la direction du champ est inversée, le chemin de l'aimantation est fermé. La courbe ainsi obtenue s'appelle cycle d'hystérésis ou encore cycle d'aimantation (Figure .I. 7).

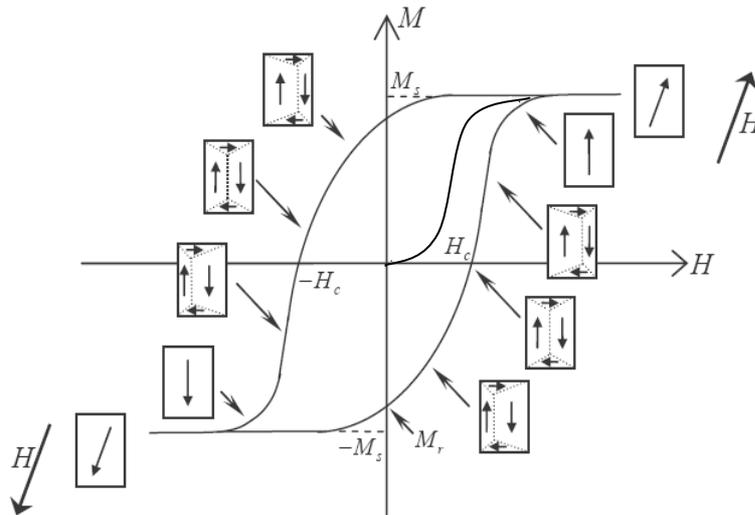


Figure. I. 7. Courbe d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique. La surface du domaine magnétique favorablement orienté avec le champ magnétique s'accroît avec l'augmentation de la valeur H par propagation des parois de domaines.

I. A. 2. 2. 3. L'antiferromagnétisme :

Les matériaux antiferromagnétiques sont constitués de moments magnétiques couplés antiparallèlement (figure I.8). Cette structure conduit à la division de la substance en sous réseaux possédant des moments magnétiques qui s'annulent. La résultante à l'échelle macroscopique est donc nulle [1]. La susceptibilité est faible et positive et varie selon cette formule :

$$\chi_m = \frac{C}{(T + T_N)} \quad (\text{I.3})$$

Où T_N représente la température d'ordre-désordre est appelée température de Néel.

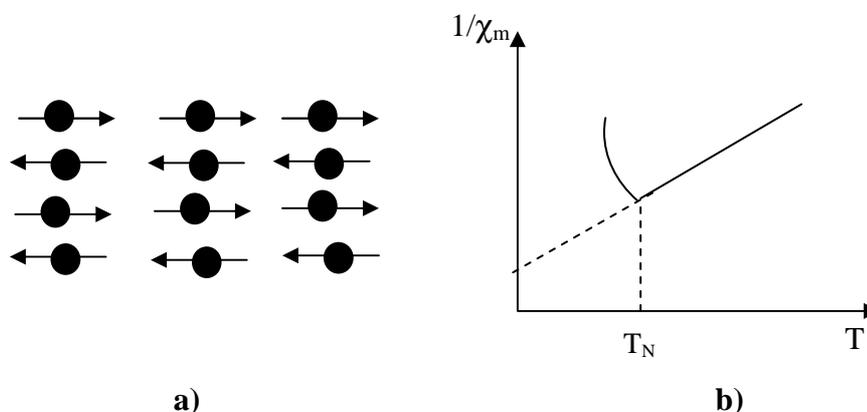


Figure. I. 8. a) Réseau antiferromagnétique, b) variation de la susceptibilité en fonction de la température.

I. A. 2. 2. 4. Le ferrimagnétisme :

Le ferrimagnétisme caractérise un matériau de type antiferromagnétique dans lequel les deux sous-réseaux n'ont pas la même aimantation il n'y a alors plus compensation exacte de l'aimantation des deux sous réseaux (figure I.9). En dessous de T_c on observe alors une aimantation spontanée.

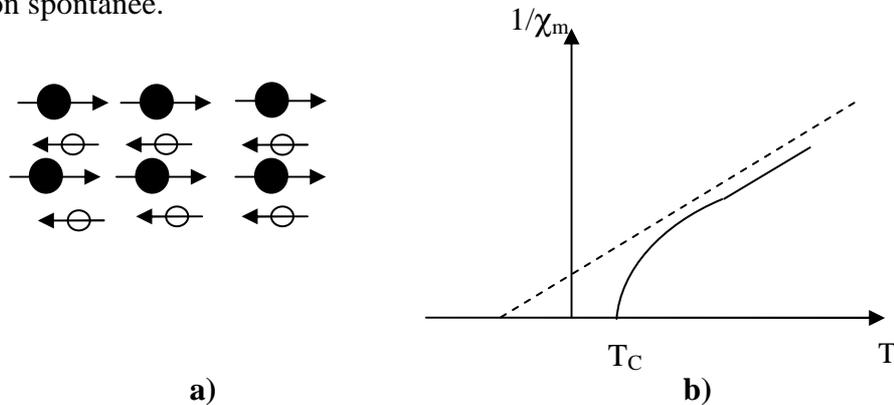


Figure. I. 9. Le ferrimagnétisme : a) réseau ferrimagnétique, b) allure de la courbe de la susceptibilité en fonction de la température.

I. B. Généralité sur les nanomatériaux

I. B. 1. Définition

Les matériaux nanostructurés ou nanomatériaux sont des solides, composés d'éléments ayant une dimension caractéristique (au moins dans une direction) de l'ordre du nanomètre (1-100 nm) [5]. Les nanomatériaux peuvent être classés, selon la dimension de leur nanostructure en plusieurs catégories :

- dimension zéro : clusters d'atomes ;
- 1 dimension : nanofils ou nanotubes ;
- 2 dimensions : couches minces ;
- 3 dimensions : particules nanocristallines.

Plusieurs méthodes sont utilisées pour la production des nanomatériaux. Ils peuvent être obtenus par voie physique, chimique ou mécanique [8].

- L'élaboration par voie physique: les nanomatériaux sont obtenues à partir de phases vapeurs générées par diverses méthodes (évaporation, pulvérisation, ablation laser ou par faisceau d'ions) cela nécessite un vide poussé. [6]
- Élaboration par voie chimique: les nanomatériaux sont obtenus à partir d'une phase vapeur ou liquide. On peut citer la CVD où les espèces gazeuses réagissent

chimiquement sur une surface chaude, dans le but de former un nouveau composé et la méthode sol-gel qui consiste à générer une suspension liquide (sol) qui sera transformée en un gel visqueux puis en solide [6].

- Elaboration par voie mécanique : les matériaux nanostructurés sont obtenus suite à un broyage mécanique sous atmosphère inerte ou réactive [5], ou par déformation plastique [7].

I. B. 2. Classification des matériaux magnétiques

Les matériaux magnétiques sont principalement classés en trois grandes familles : matériaux magnétiques doux, matériaux magnétiques durs et les matériaux supports de l'enregistrement.

- **Les matériaux magnétiques doux** : ils se caractérisent par un cycle d'hystérésis étroit et peuvent être aimantés ou désaimantés facilement (figure I.10). Le champ coercitif ne dépasse pas 12.5 Oe [9]. Ces matériaux, entre autre FeNi et FeSi, sont utilisés dans les circuits magnétiques pour transformateurs ou des pièces de blindage magnétique.
- **Les matériaux magnétiques durs** : ils se caractérisent par un cycle d'hystérésis large (figure I.10), et gardent une polarisation importante après l'élimination du champ appliqué. Ils possèdent un grand champ coercitif (supérieur à 125 Oe) [10]. On peut citer à titre d'exemple les ferrites durs et les aimants à base de terres rares.

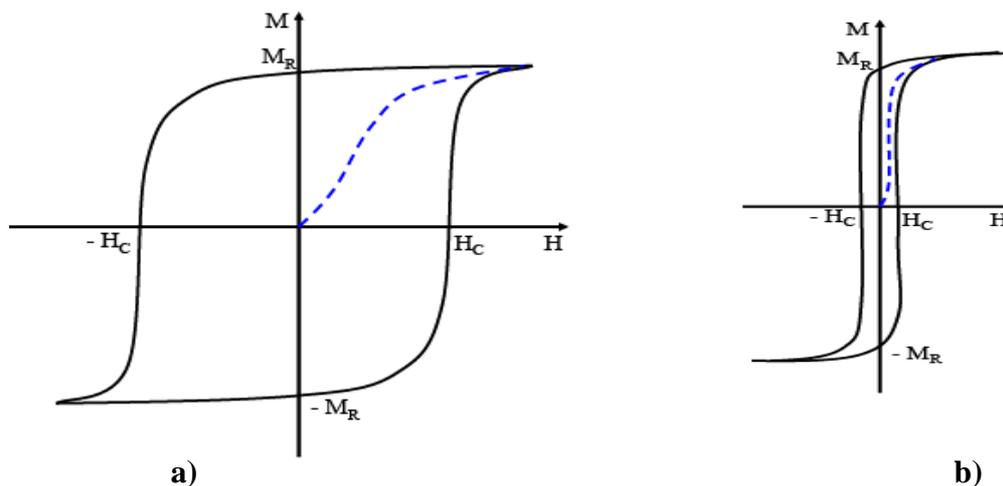


Figure. I. 10. Cycles d'hystérésis : a) matériau magnétique dur, b) matériau magnétique doux.

- **Matériaux supports de l'enregistrement** : ces matériaux sont utilisés pour l'enregistrement audio, vidéo, et du stockage sur ordinateur (disquettes et disques durs) 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[9]. Parmi ces matériaux, on peut citer les matériaux granulaires, du type $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ et les alliages à base de Co (CoNiP, CoCrPt, ...) déposés en couches minces [11].

I. B. 2. 1. Nanomatériaux magnétiques

I. B. 2. 1. 1. Les amorphes nanocristallins

La découverte des nanocristallins fut pour la première fois, en 1988, par Yoshizawa et al. [12], qui faisaient des études sur la stabilité thermique des amorphes et plus exactement sur l'alliage « Finemet » de composition $\text{Fe}_{37.5} \text{Cu}_1 \text{Nb}_3 \text{Si}_{22.5-x} \text{B}_x$. Pour ce matériau, l'état nanocristallin a été obtenu par un recuit à des températures généralement comprises entre 500 et 600 °C. Ce recuit conduit à une cristallisation primaire du Fe cubique centré (cc) pour former une phase Fe-Si (20%) cubique centré. La microstructure ainsi obtenue est caractérisée par des grains ultrafins de la phase $\text{Fe}_{80}\text{Si}_{20}$ (cubique centrée), avec une taille comprise entre 10-15 nm et qui sont aléatoirement dispersés dans un résidu de la matrice amorphe [13]. Le nouveau matériau ainsi élaboré possède des propriétés magnétiques douces qui sont principalement gouvernées par l'alliage $\text{Fe}_{80}\text{Si}_{20}$ nanocristallin [9]. En effet, lorsque la taille des grains diminue, le champ coercitif augmente, mais lors du passage à des tailles nanométriques, le champ diminue en puissance de D^6 , suivi du passage dans le domaine amorphe (voir figure I.11.).

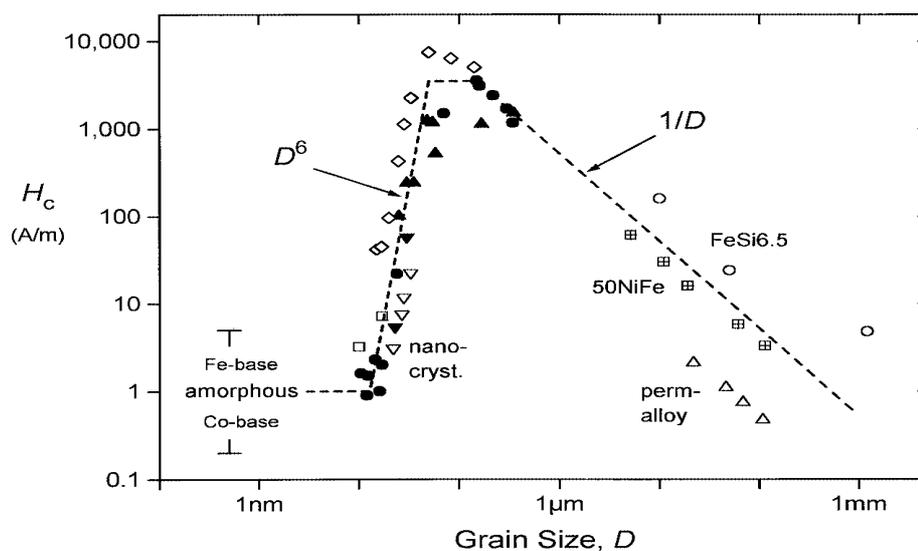


Figure I. 11. Effet de la taille de grains sur le champ coercitif.

La baisse du champ coercitif avec la diminution de la taille des grains dans le domaine nanométrique et l'amélioration des propriétés magnétiques douces pour ces matériaux peuvent être s'expliquées par le fait que dans ce domaine il ya également une réduction de l'anisotropie magnétocristalline comme ca était très bien décrit dans le modèle de l'anisotropie aléatoire décrit par Herzrer [13].

I. B. 2. 1. 2. Alliages binaires nanocristallins obtenus par broyage mécanique

Parmi les alliages binaires nanocristallins obtenus par broyage mécanique et qui présentent d'excellentes propriétés magnétiques douces, on cite les systèmes: FeNi, FeCo, FeSi...ect. Ces alliages nanocristallins sous forme de poudres ont été obtenus par broyage mécanique.

a) Les alliages FeCo obtenus par mécanosynthèse

Les alliages FeCo se manifestent généralement sous forme de rubans, mais cette forme n'étant pas pratique pour certaines applications, a mené à l'étude des poudres nanostructurées élaborées par mécanosynthèse.

A titre d'exemple on peut citer les poudres de $Fe_{50}Co_{50}$ élaborée à l'aide d'un broyeur planétaire durant 45 h de broyage [14] et pour les quels un champ coercitif de 47.95 Oe a été obtenu.

b) Les alliages FeNi obtenus par mécanosynthèse

Parmi les alliages FeNi obtenu par mécanosynthèse constitués de grains nonocristallins ayant des propriétés magnétique douces, on peut citer l'alliage $Fe_{95}Ni_5$ obtenu par A. H. Taghvaei et al .[16]. Ces auteurs ont montré que le champ coercitif diminue lorsque la taille des grains diminue avec une faible valeur de H_c égale à 3Oe. Aussi, les travaux de Hamzaoui et al. [17], sur l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$, qui montrent également la diminution du champ coercitif avec la diminution de la taille des grains avec une valeur de H_c égale à 1.1 Oe [13].

I. B. 3. Quelques applications des nanomatériaux magnétiques

L'effet de magnéto-résistance géante observée sur des matériaux nanostructurés en surface, a permis dans les années 1990 de réaliser de nouvelles têtes de lecture plus performantes [18].

Les nanomatériaux ont également été utilisés a des fins médicales un exemple des nanoparticules d'oxyde de fer magnétiques de sept nanomètres de diamètre ont été injectées à des patients atteints de cancer. Ces agrégats sont injectés dans les tumeurs localisées, puis à l'intérieur des cellules, le patient est alors soumis à un champ magnétique oscillant qui fait vibrer les nanoparticules. Ce mouvement entraine une élévation locale de la température et conduit ainsi à la destruction de la cellule [19,20].

Chapitre II :

*Etat de l'art des nanomatériaux $Fe_{80}Ni_{20}$ élaborés par
mécanosynthèse*

Dans ce deuxième chapitre, nous nous sommes d'abord intéressé à la méthode d'élaboration par broyage mécanique (mécanosynthèse). Ensuite, nous avons présenté une synthèse des études antérieures effectuées sur l'alliage Fe₈₀Ni₂₀ élaboré par broyage mécanique (mécanosynthèse).

II. A. La mécanosynthèse

III. A. 1. Définition

La mécanosynthèse ou broyage à haute énergie est une méthode mécanique qui permet la fabrication de poudres à grains nanométrique. Par cette technique, il peut également y avoir des réactions chimiques entre des poudres broyées ou entre poudre et atmosphère de broyage, il en résulte des transformations chimiques ou structurales [21]. Durant le broyage haute énergie, les particules de poudres sont présentes au piège entre bille et bille ou entre bille et parois des jarres. Par conséquent, il se produit une déformation plastique et une élévation locale de la température. Les particules sont alors aplaties, fracturées puis soudées (collage - décollage). Lorsqu'un certain équilibre s'installe entre le taux de rupture et le taux de soudage, on parle d'état d'équilibre. Le collage (soudage) tend à augmenter la taille moyenne des particules. Par contre, la rupture tend à diminuer leur taille moyenne (figure II. 1). Les petites particules résistent à la déformation sans être fracturées et tendent à être soudées sous forme d'agglomérat. Ces agglomérats tendent à atteindre une taille intermédiaire. A ce stade, chaque particule contient presque tous les éléments, avec la même proportion de départ [9].

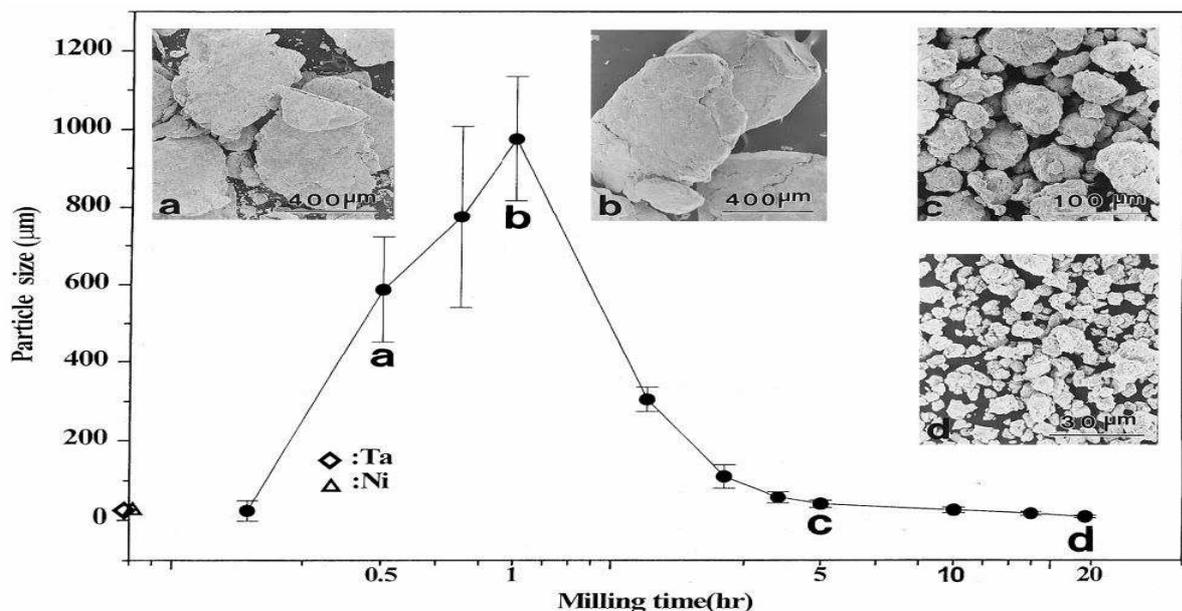


Figure II. 1. Distribution de la taille des particules provoquée par la tendance des petites particules à se souder et les grandes particules à se fracturer dans les conditions d'équilibre.

II. A. 2. Appareillage

Différents équipements peuvent être utilisés pour la production de poudres par mécanosynthèse. Les principaux broyeurs utilisés sont de trois types : broyeur attriteur, broyeur vibratoire et broyeur planétaire.

II. A. 2. 1. Broyeur attriteur

Il est constitué d'un caisson vertical, d'un axe agitateur sur lequel sont fixés des barres perpendiculairement (figure II. 2). Le broyage agit uniquement par frottements des billes sur la poudre [22]. Les broyeurs attriteurs sont utilisés pour la synthèse d'une grande quantité de poudre de 0.5 à 40 kg. Ce type de broyeur est utilisé pour le broyage à basse énergie, est commercialisé par Union Process, Akron, OH, Fritsch ou SPEX [23].

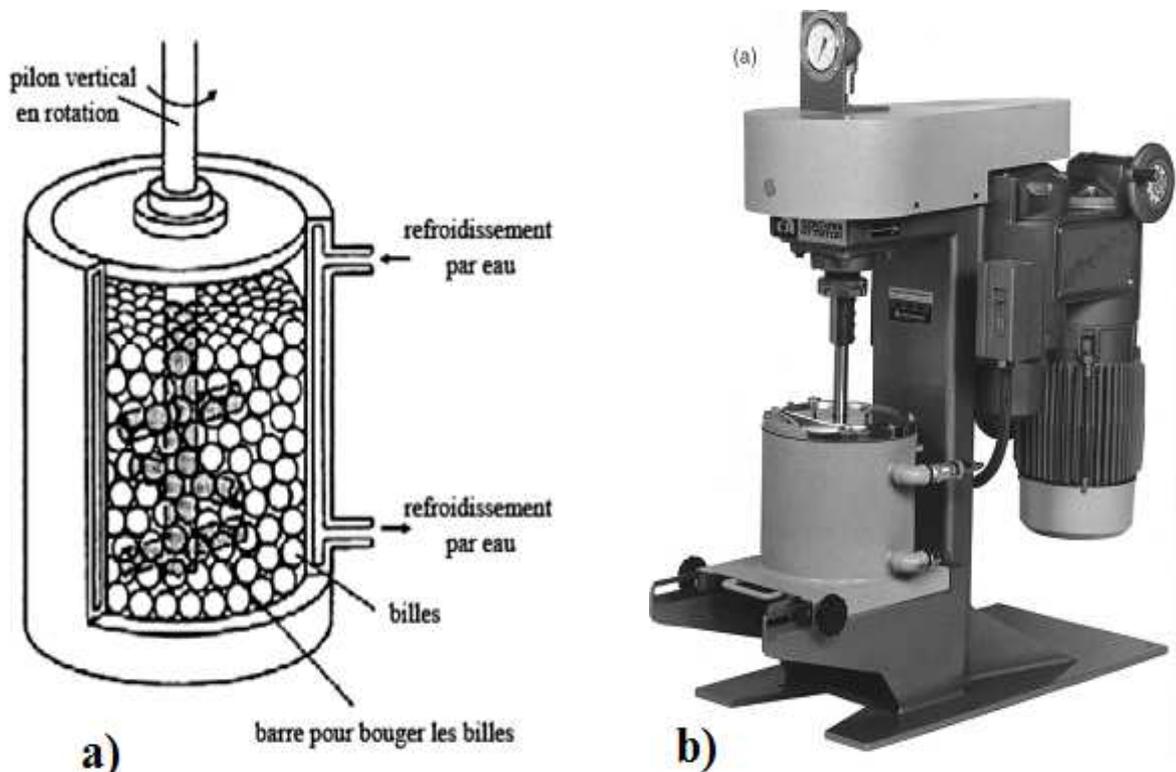


Figure II. 2. Broyeur attriteur :a) principe de fonctionnement, b) modèle 1-S.

II. A. 2. 2. Broyeur vibratoire

Le principe du broyeur vibrant est basé sur un mouvement de vibration à haute fréquence (20 Hz) d'un cylindre contenant la poudre à broyer et des billes. Le broyeur vibrant le plus couramment utilisé est le SPEX 8000, pouvant contenir de 2 à 40 billes et traiter une quantité de poudre de l'ordre de 10 g (voir figure II. 3). Le broyage se fait uniquement par chocs [22].

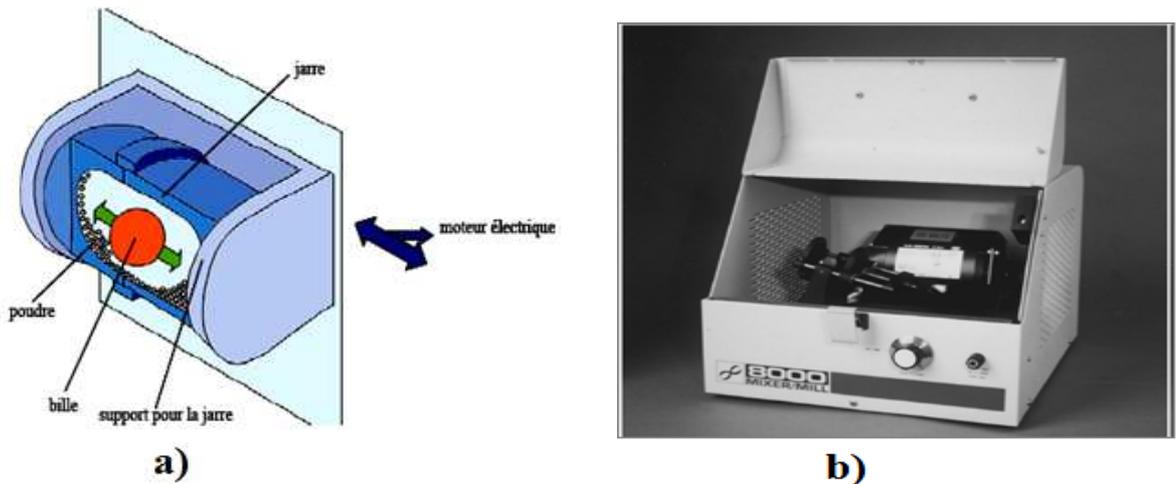


Figure II. 3. Broyeur vibratoire: a) principe de fonctionnement, b) modèle SPEX 8000.

II. A. 2. 3. Broyeur planétaire

Son principe réside dans la mise en rotation d'un plateau sur lequel on dispose des jarres tournant elles-mêmes dans le sens opposé (figure II. 4). La combinaison de ces mouvements crée un effet de frottement des billes qui restent collées contre la paroi avant d'être renvoyées violemment par la force centrifuge contre la paroi. Les poudres sont ainsi soumises à des effets de friction et de choc. Selon les cas, une réaction entre les poudres à broyer et le matériau constituant les jarres et les billes peut être observée. Pour éviter cela, il est préférable d'utiliser des jarres et des billes de même nature que les matériaux à broyer. Divers matériaux sont disponibles tels que l'acier, le carbure de tungstène, l'agate ou la zircone [24].

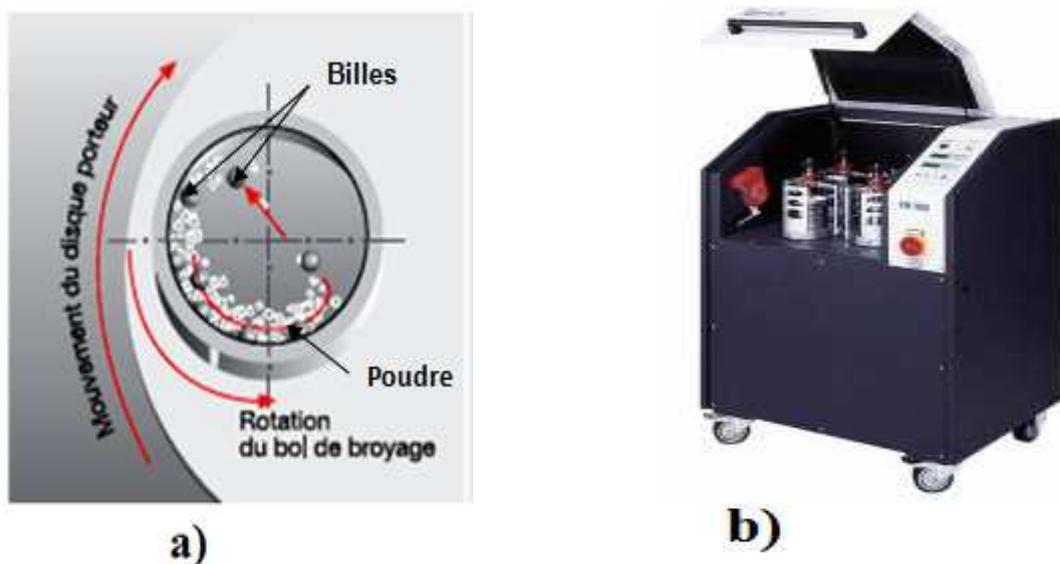


Figure II. 4. Broyeur planétaire : a) principe de fonctionnement, b) modèle PM400.

II. B. Etudes antérieures sur l'alliage Fe₈₀Ni₂₀

II. B. 1. Rappel et généralités

II. B. 1.1. Le fer

Le fer représente 4.7% de la croûte terrestre. Il existe trois phases pour le fer selon la température : La phase α (cubique centrée) en dessous de 906°C, la phase γ (cubique face centrée) en dessous de 1401°C et la phase δ (cubique centrée) en dessous de 1535 °C. Le paramètre de maille est égale à 2.86 Å, 3.64 Å et 2.93 Å pour les phases α , γ et δ respectivement [25].

II. B. 1.2. Le nickel

Le nickel est un matériau assez peu répandu dans l'écorce terrestre. On le trouve dans les météorites et sous forme combinée essentiellement au fer. Le Nickel se cristallise dans une structure cubique faces centrées avec un paramètre de maille égale à 3.523Å. Le tableau II. 1. récapitule les principales caractéristiques du fer et du nickel.

	Fe	Ni
Structure électronique	[Ar]3d ⁶ 4s ²	[Ar]3d ⁸ 4s ²
Numéro atomique	26	28
Rayon α (Å)	1.27	1.24
Température de fusion (C°)	1535	1453
Résistivité à 20 C° (10 ⁻⁸ Ω.m)	10	7.8
Etat magnétique	Ferromagnétique	Ferromagnétique
Température de Curie (C°)	770	350
Aimantation à saturation M _s (kAm ⁻¹)	1714	485

Tableau II. 1. Quelques caractéristiques de Fe et Ni [26].

II. B. 1. 3. Les alliages Fer-Nickel

Les alliages binaires de métaux de transition $Fe_{1-x}Ni_x$, sont largement utilisés dans l'industrie et la technologie. L'étude de leurs propriétés est importante car elle nous permet de comprendre et de prévoir leurs comportements de base dans différentes circonstances [27]. Le diagramme de phase du système Fe-Ni, montré sur la figure II.5, révèle la présence de plusieurs types de phases :

- La phase α (cc).
- La phase γ (cfc).
- γ_1 la phase paramagnétique de % Ni faible
- γ_2 la phase ferromagnétique riche en Ni
- γ' la phase ordonnée $FeNi_3$
- γ'' $FeNi$ ordonné

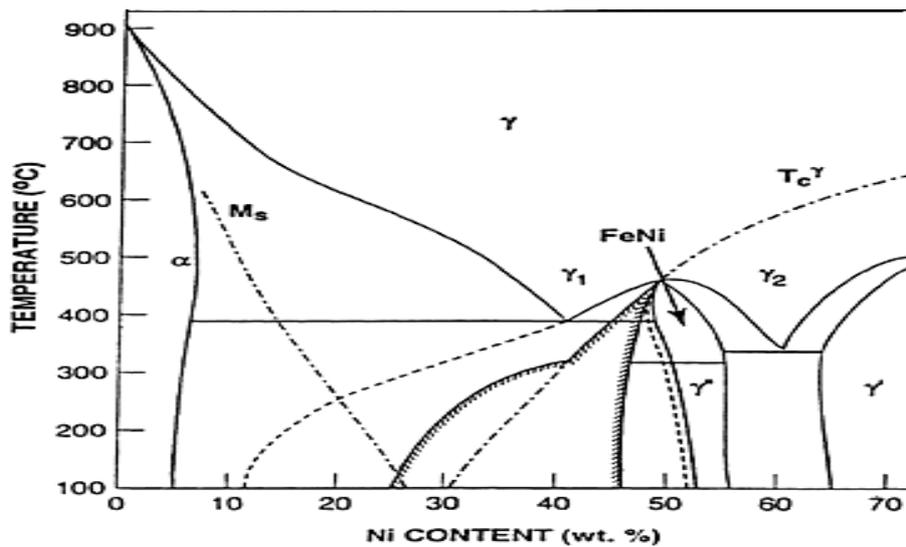


Figure II. 5. Diagramme de phase proposé par K.B. Reuter et al [28].

Pour ces alliages Fe_xNi_{1-x} on distingue:

- les alliages contenant une proportion autour 30% de Ni, qui sont caractérisés par une inversion rapide de l'aimantation. On trouve également l'alliage à 36% de Ni (ou INVAR) caractérisé par un très faible coefficient de dilatation et une résistivité électrique importante.
- les alliages contenant une proportion autour de 50% de Ni qui possèdent une aimantation à saturation élevée et l'alliage à 56% de Ni caractérisé par une magnétostriction isotrope.

- les alliages contenant une proportion autour de 80% de Ni (ou Permalloys) qui sont caractérisés par une très faible coercivité, une perméabilité importante et une magnétostriction nulle [9].

Les figures (II. 6. a et II. 6. b) représentent respectivement le paramètre de maille et la température de curie pour des alliages FeNi obtenus par fusion en fonction de la teneur en nickel. Le paramètre de maille des alliages Fe-Ni présente un maximum pour les compositions riches en nickel. La température de Curie pour les compositions riches en fer (région α) présente une descente linéaire avec l'augmentation de la quantité de nickel, en restant dans des valeurs élevées

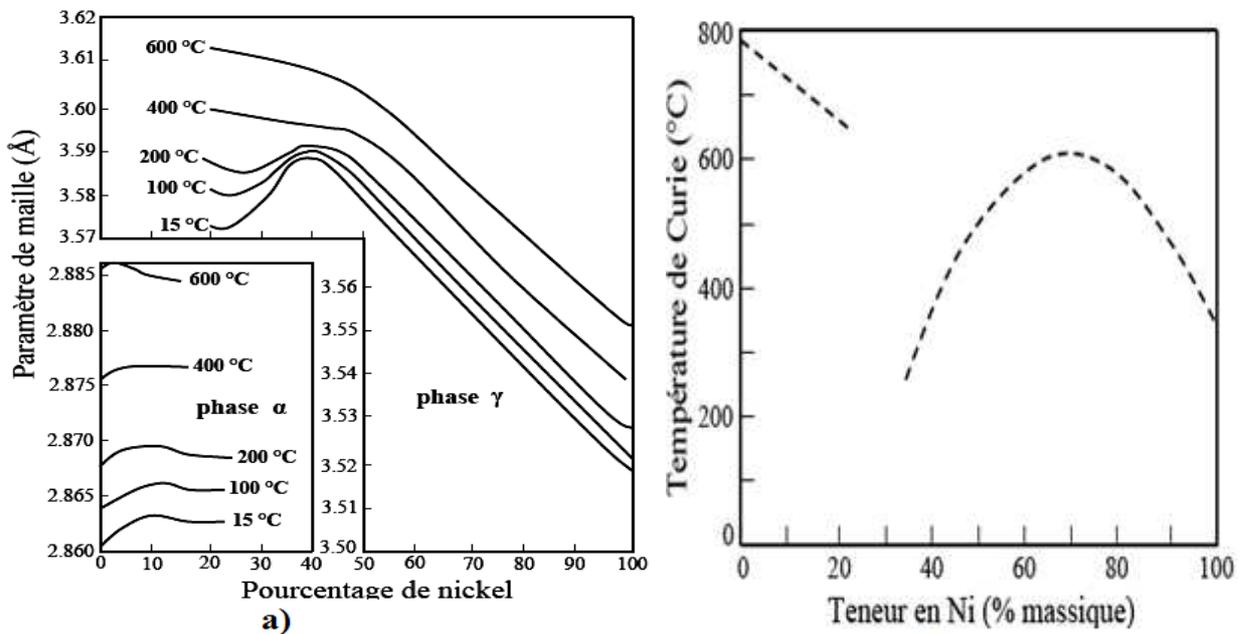


Figure II.6. (a) Paramètre de maille des alliages FeNi dans la région α et γ , (b) température de curie d'alliages de FeNi en fonction du pourcentage de Ni [6].

II. B. 1. 4. La structure de l'alliage Fe₈₀Ni₂₀ obtenue par mécanosynthèse

II. B. 1. 4. 1. L'influence du temps de broyage sur l'évolution de la structure

R. Koohkan et al. [29], ont étudié l'influence du temps de broyage sur les propriétés structurales du composé Fe₈₀Ni₂₀ élaboré à l'aide d'un broyeur planétaire pour une vitesse de rotation de 500 tr/min. Pour ces auteurs, la formation de la solution solide Fe(Ni) de structure cubique centré (c.c) est observée à partir de 45h de broyage. Les auteurs ont remarqué que le paramètre de maille augmente de 0.2866 nm (0 h) jusqu'à 0.2869 nm après 110 h de broyage (figure II. 7). Ils ont également constaté une décroissance monotone de la taille des cristallites

accompagnée d'une augmentation des microdistorsions. Après 110 h de broyage, les valeurs obtenus de D et ϵ étaient de 50 nm et 0.8% respectivement (figure II. 7).

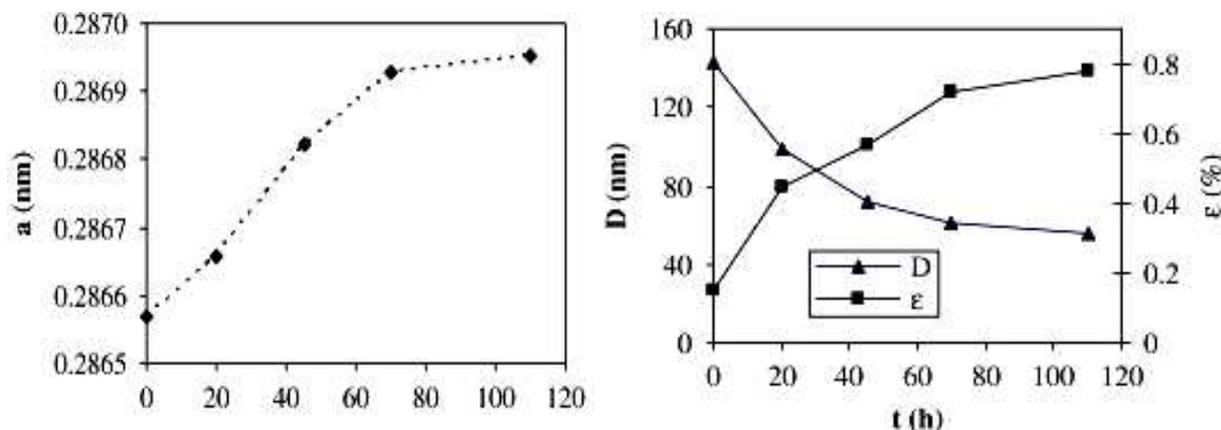


Figure II. 7. a) évolution du paramètre de maille, b) variation de taille des grains et microdistorsion.

A. Guittoum et al. [30], en utilisant un Retsch PM400 avec une vitesse des jarres de 240 tr/min, ont mis en évidence la formation de la solution solide FeNi (c. c) à partir de 8h de broyage. Le paramètre de maille passe d'une valeur de 0.28620 nm (0 h) à 0.28681 nm après 48 h de broyage (figure II.8). En ce qui concerne la taille des grains, les auteurs ont enregistré une valeur minimale égale à 11 nm après 48 h de broyage (figure II. 8).

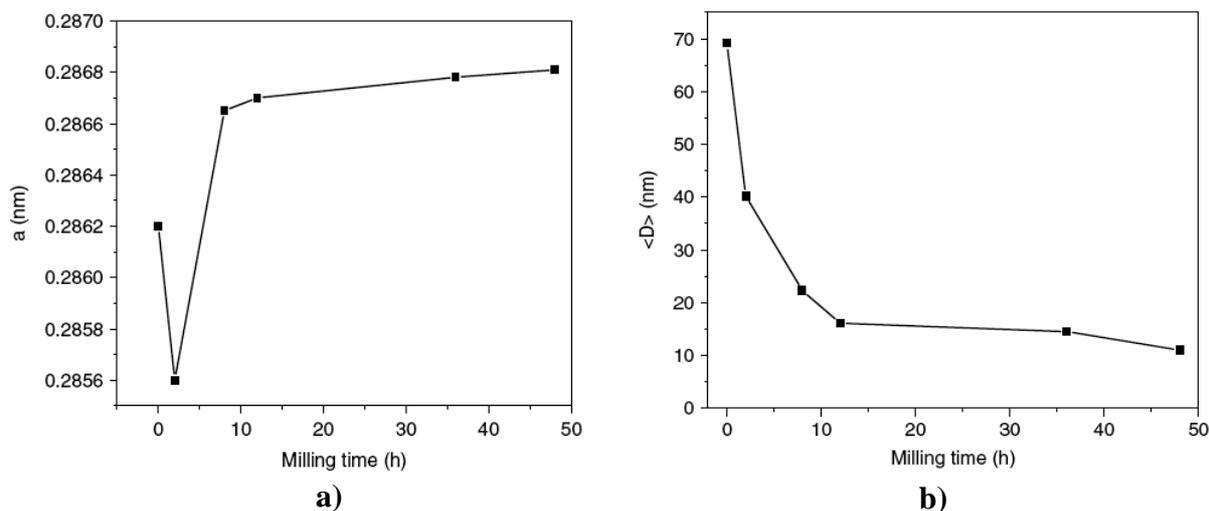


Figure II. 8. Propriétés structurales de la poudre Fe₈₀Ni₂₀ en fonction du temps de broyage: a) évolution du paramètre de maille, b) évolution de la taille des grains.

R. Hamzaoui et al. [31], en utilisant un Retsch PM 400 avec des vitesses du disque et des jarres de 400 tr/min et 800 tr/min respectivement, ont observé la formation de la solution solide Fe(Ni) (c.c) à partir de 24 h de broyage. Ils ont noté que le paramètre de maille augmente de 0.28658 nm (0 h) jusqu'à 0.28706 nm pour 96 h de broyage (figure II. 9). Pour

la plus longue durée de broyage (96 h), les valeurs de la taille des cristallites et des microdistorsions étaient de 9.8 nm et 0.72 % respectivement (figure II. 9).

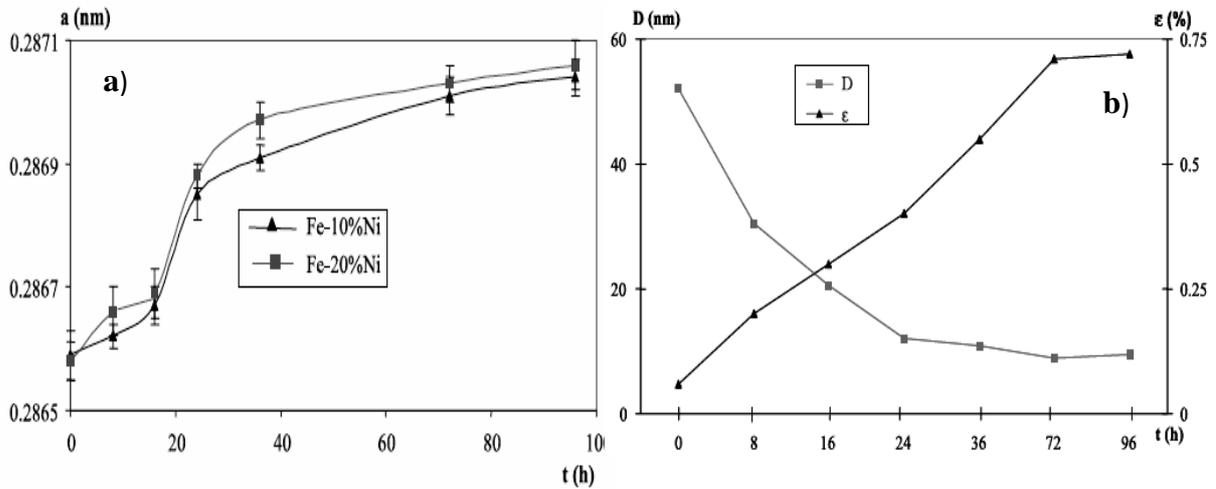


Figure II. 9. Evolution des paramètres structuraux en fonction du temps de broyage : a) paramètre de maille, b) taille des grains et microdistorsions.

On peut également citer les travaux de M. Peřkala et al. [32], qui ont remarqué que la solution solide Fe(Ni) cubique centré (bcc) s'est formée à partir d'un temps de broyage de 40 h en utilisant un broyeur planétaire Fritsch avec une vitesse de 300 tr/min. Les auteurs ont constaté l'augmentation progressive du paramètre de maille en fonction du temps de broyage. En effet la valeur de a passe de 0.2867 nm à 0.28690 nm (figure II. 10). D'autre part, les auteurs ont également calculé la taille des cristallites (D) et des microdistorsions (ϵ), en utilisant la méthode de Williamson-Hall. La valeur final de D est alors de 10 nm, celle de ϵ de 0.46% (figure II.10).

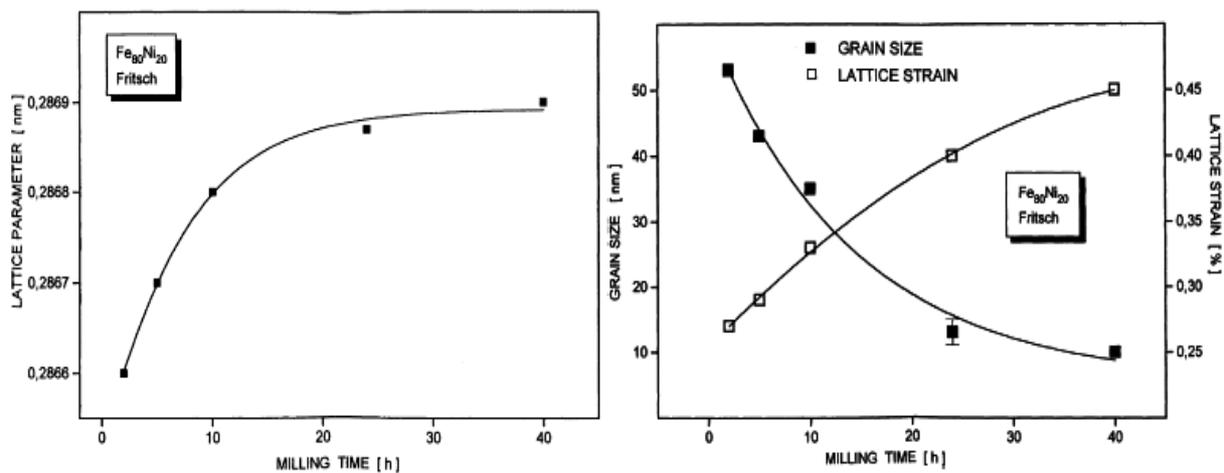


Figure II. 10. (a) évolution du paramètre de maille, (b) : variation de la taille des grains et des microdistorsions.

D'autres études, effectuées par E. Jartych et al. [33, 34], ont porté sur la différence entre le broyage haute énergie et basse énergie. Pour cela, les auteurs ont utilisé un broyeur planétaire (broyage haute énergie) et un broyeur horizontal (broyage basse énergie). La solution FeNi (c.c) s'est formée après 48 et 400 h pour les broyages à haute et basse énergie respectivement. En ce qui concerne le paramètre de maille et la taille des grains, les auteurs n'ont pas remarqué de différence significative, pour les longues durées de broyage, entre les échantillons élaborés à haute et basse énergies.

II. B. 1. 4. 2. L'influence de la puissance des chocs durant le broyage

Les travaux de Hamzaoui et al. [35] ont étudié l'influence de la puissance des chocs, durant le broyage, sur les propriétés structurales des composés Fe₈₀Ni₂₀ et Fe₉₀Ni₁₀. L'élaboration a été faite avec un vario-broyeur P4 pour une durée fixe de broyage égale à 36 h. Les auteurs ont conclu que l'évolution de la taille des cristallites et des microdistorsions ne dépend pas uniquement du temps de broyage mais également du mode de broyage utilisé (friction ou choc) (figure II. 11).

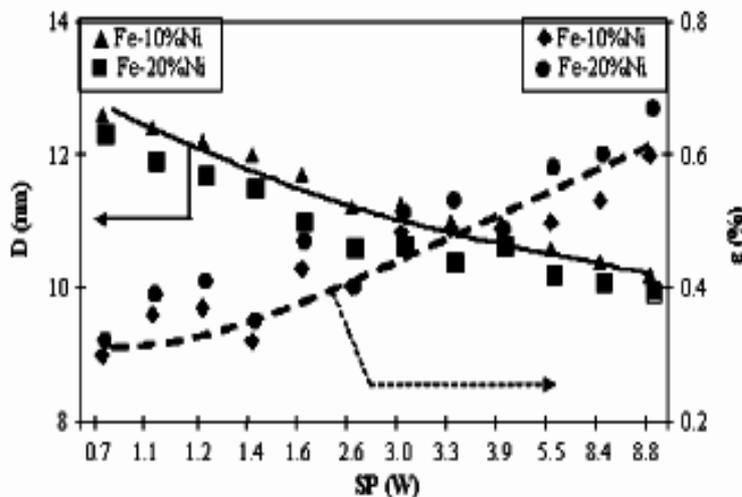


Figure II. 11. Evolution de la taille des cristallites et des microdistorsions en fonction de la puissance de choc durant le broyage.

II. B. 1. 4. 3. Influence de l'intensité de broyage sur la région biphasée

Des études portant sur les phases présentes dans les alliages Fe_{100-x}Ni_x (10% < x < 90%) élaborés par mécanosynthèse, révèlent l'influence des intensités de broyage sur ces phases ainsi que sur les limites de leurs existences. Parmi ces études, on peut citer, à titre d'exemple, les travaux de B. Hong et al. [36] faites sur les composés Fe_{100-x}Ni_x élaborés par mécanosynthèse à l'aide d'un broyeur Spex 8000. La figure II.12 représente la région biphasé α (cubique centrée) et γ (cubique faces centrées) en fonction de la concentration du nickel. On

voit clairement sur cette figure l'influence de l'intensité de broyage sur les limites de cette zone. En effet, pour une intensité I_1 (correspondant à une vitesse de 3m/s), cette région s'étend de $x=12$ à $x=30$ et de $x=18$ à $x=35$ pour une intensité $I_{0.3}$ (énergie cinétique des billes égale à $I_1/3$)

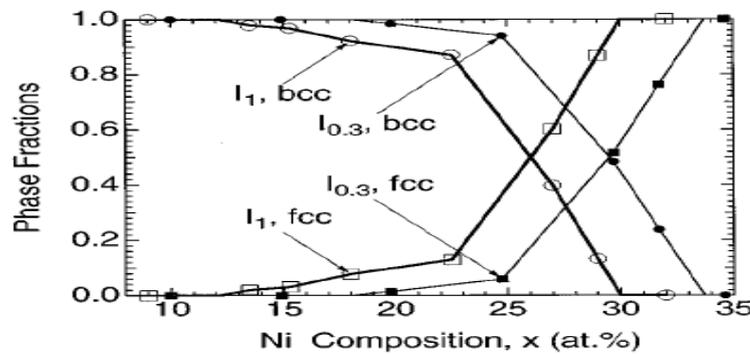


Figure II. 12. Fraction des phases α et γ dans l'alliage $Fe_{100-x}Ni_x$ obtenu par mécanosynthèse en utilisant l'intensité I_1 durant 24h et $I_{0.3}$ durant 48h.

II. B. 1. 5. Propriétés magnétiques et hyperfines

II. B. 1. 5. 1. Influence de la composition sur les propriétés magnétiques

Khurt et al. [37], ont étudié l'évolution de l'aimantation à saturation M_s , dans le cas de l'alliage FeNi élaboré à l'aide d'un broyeur P5 pour différentes intensités. Ils ont remarqué que l'aimantation à saturation décroît lorsqu'on passe de la région riche en fer à celle riche en nickel, avec une déviation aux alentours de 30 %Ni pour une intensité de 9, de 40%Ni pour une intensité de 7 et de 50%Ni pour une intensité de 5 (figure II. 13).

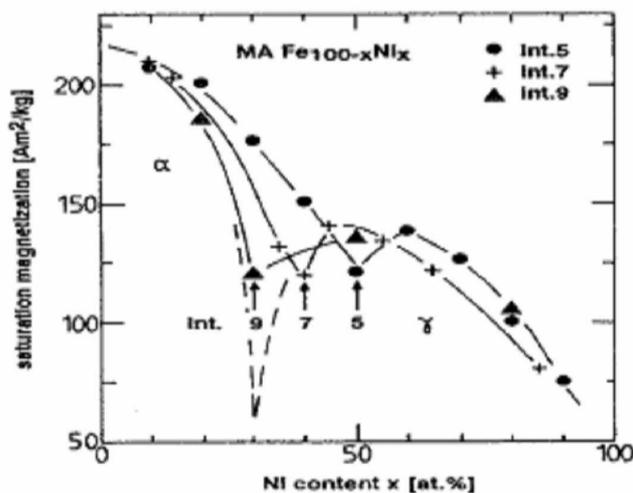


Figure II. 13. Evolution de l'aimantation à saturation en fonction de la teneur en nickel pour différentes intensités de broyage.

II. B. 1. 5. 2. Influence du temps de broyage sur les propriétés magnétiques

A. Guittoum et al. [30], ont étudié l'influence du temps de broyage l'aimantation à saturation et le champ coercitif des poudres de Fe₈₀Ni₂₀ élaborés par mécanosynthèse. Les auteurs ont attribué la diminution de l'aimantation à saturation aux atomes localisés aux joints de grains en effet, les atomes situés dans les joints de grains sont caractérisés par une densité relativement faible, conduisant à une réduction de l'aimantation.

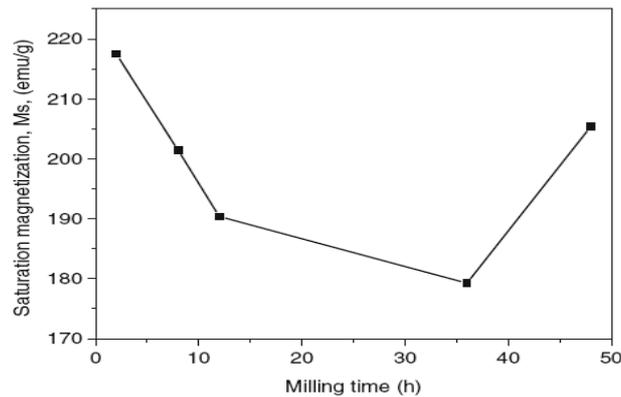


Figure II. 14. Evolution de l'aimantation à saturation en fonction de la durée de broyage pour les poudres Fe₈₀Ni₂₀ élaborées par mécanosynthèse.

Pour ce qui est de l'évolution du champ coercitif (figure II.15), A. Guittoum et al, suggèrent que l'augmentation du champ coercitif du matériau durant les premières heures du broyage est due à la formation progressive de la solution solide. Quand à la diminution de H_c pour des temps de broyages supérieurs à 8h elle est due à la diminution de la taille des cristallites (11nm). Le matériau se comporte alors comme un matériau magnétique doux.

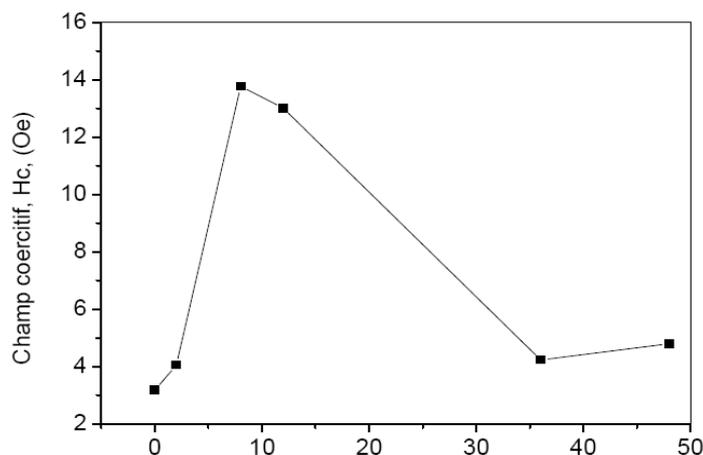


Figure II. 15. Variation du champ coercitif en fonction de la durée de broyage pour les poudres Fe₈₀Ni₂₀.

Par ailleurs, certains auteurs, entre autre Hamzaoui et al. [31], ont observé un comportement de l'aimantation à saturation différent de celui observé par A. Guittoum et al. En effet, pour des poudres Fe₈₀Ni₂₀ et Fe₉₀Ni₁₀ élaborées par broyage mécanique à l'aide d'un PM 400, les auteurs ont montré que l'aimantation à saturation, M_s , augmente lorsque le temps de broyage augmente (figure II .16). Cette augmentation de M_s avec la durée de broyage a été attribuée à la diminution de la taille des grains.

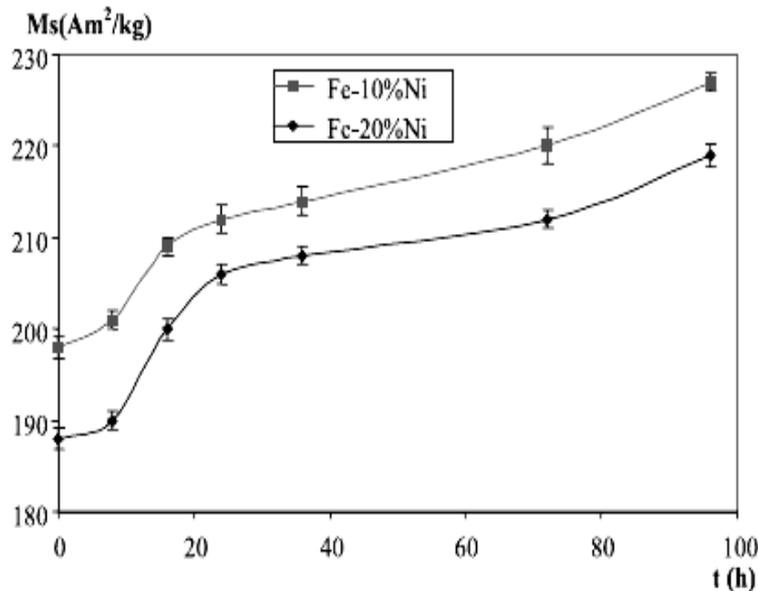


Figure II. 16. Evolution de l'aimantation à saturation pour des obtenus par mécanosynthèse.

A propos de la variation du champ coercitif, H_c , Hamzaoui et al, ont montré qu'il diminue lorsque le temps de broyage augmente (taille des grains diminue) (figure II. 17). Les auteurs ont interprétés cette diminution de H_c à la réduction de la taille des grains et aussi à la formation de la solution solide. Pour la plus grande durée de broyage de 96 h (taille des grains de 10 nm), une valeur de H_c égale à 110 A m⁻¹.

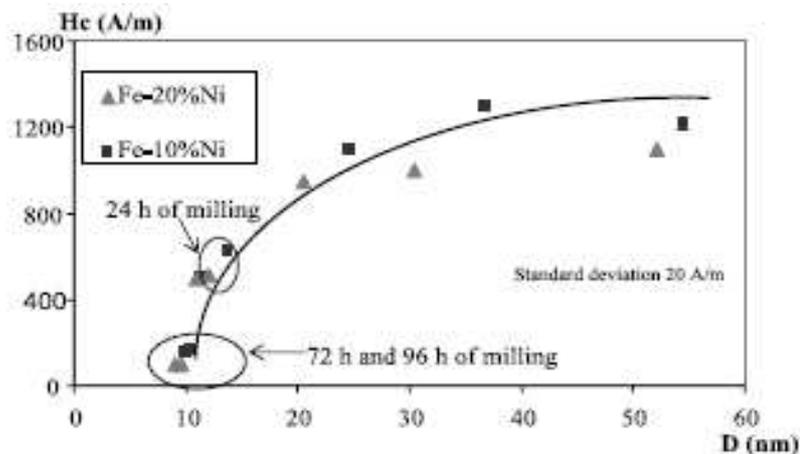


Figure II. 17. Evolution du champ coercitif en fonction de la taille des grains pour les composés Fe₈₀Ni₂₀ et Fe₉₀Ni₁₀ élaborés par mécanosynthèse.

II. B. 1. 5. 3. Influence du temps de broyage sur la structure hyperfine

A. Guittoum et al. [30] ont aussi suivi l'évolution de la formation, en fonction du temps de broyage, du composé Fe₈₀Ni₂₀ par la spectroscopie Mössbauer du ⁵⁷Fe. La figure II. 18 montre la distribution du champ hyperfin obtenue pour différentes durées de broyage. Les auteurs ont montré que le composé Fe₈₀Ni₂₀ s'est formé après 8 h de broyage. De plus, ils ont remarqué qu'à partir de 12 h de broyage, les spectres Mössbauer présentent deux sextuplets. Le premier sextuplet avec des valeurs moyennes du champ hyperfin, $\langle H_{hf} \rangle$, voisinant 34 T a été attribué aux nanograins. Cependant, le second sextet, avec des valeurs de $\langle H_{hf} \rangle$ au voisinage de 31 T, a été attribué aux joints de grains.

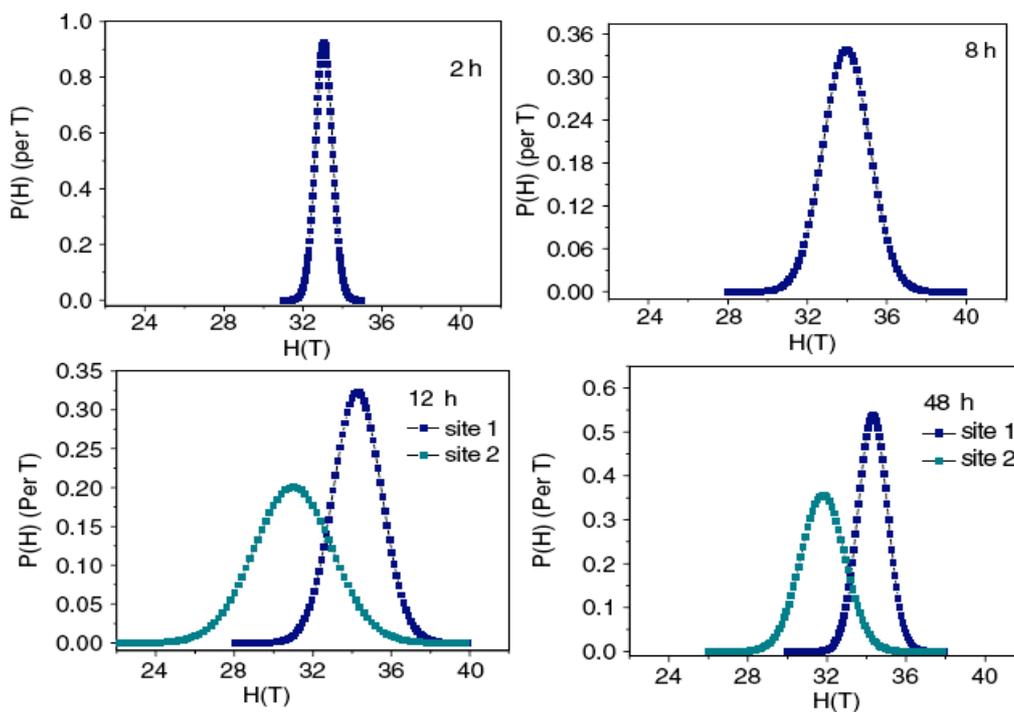


Figure II. 18. Distribution du champ hyperfin obtenue par spectroscopie Mössbauer pour les poudres Fe₈₀Ni₂₀ élaborées à différents temps de broyage.

R. Hamzaoui et al. [17], ont étudié l'effet du temps de broyage sur la structure hyperfine du composé Fe₈₀Ni₂₀ élaboré à l'aide d'un broyeur de type PM400 pour différents temps de broyage. Les spectres Mössbauer ainsi que les distributions du champ hyperfin montrés sur la figure II. 19, indiquent que les alliages élaborés sont ferromagnétiques et désordonnés avec des valeurs moyennes du champ magnétique hyperfin, $\langle H_{hf} \rangle$ égales à 33.5, 33.7 et 33.8 T pour les temps de broyage de 36, 72, 96 h respectivement. Par ailleurs, les auteurs ont noté la présence d'une composante dans les spectres Mössbauer ($\langle H_{hf} \rangle \sim 30$ T) et qui a été attribué aux joints de grains.

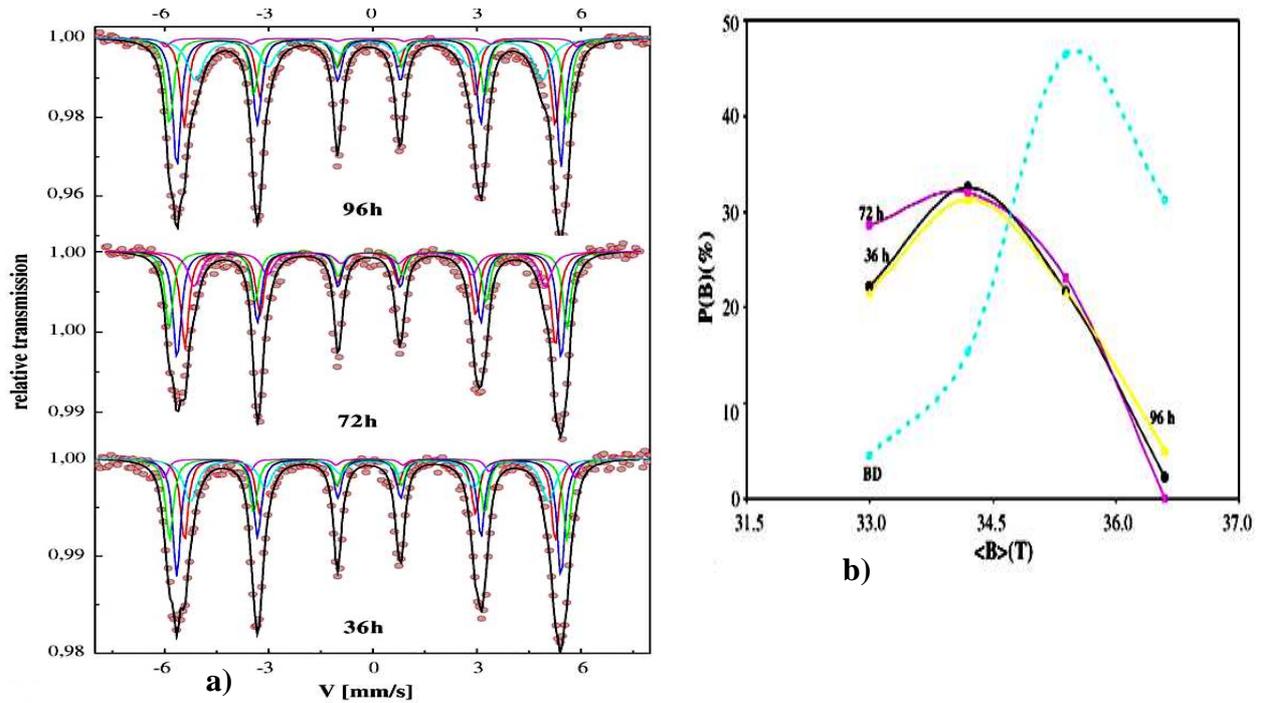


Figure II. 19. Résultats de la spectroscopie Mössbauer: a) spectres d'absorption, b) distribution de champs.

II. B. 1. 5. 4. Influence de l'intensité du broyage sur le champ hyperfin

M. Peřkala et al. [32], ont effectué des mesures par spectroscopie Mössbauer sur des échantillons de Fe₈₀Ni₂₀ élaborés par broyage à basse et à haute énergie à l'aide d'un broyeur de marque Fritsch. La figure II. 20, représente les spectres obtenus après broyage à haute et basse énergie pour des durées de 56 h et 600 h respectivement. Les auteurs ont montré que le composé obtenu est ferromagnétique et est désordonné. La valeur obtenue du champ hyperfin, dans le cas du broyage haute énergie à 300 tr/ min, est de 33.9 T. Cependant, dans le cas du broyage à basse énergie, la valeur du champ hyperfin est de 33.8 T.

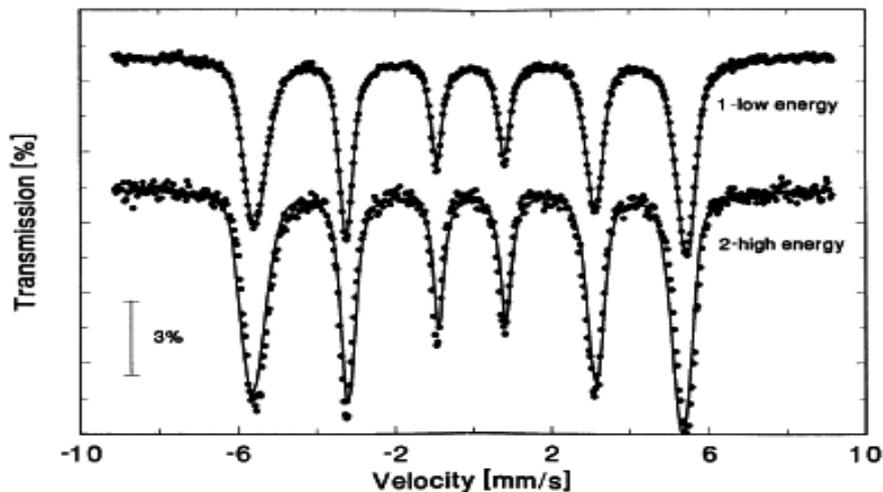


Figure II. 20. Spectres Mössbauer des poudres Fe₈₀Ni₂₀: 1- broyage basse énergie, 2- broyage haute énergie.

Conclusion

Cette étude bibliographique nous a permis de faire une synthèse sur les travaux de recherches qui ont été menés sur l'alliage Fe₈₀Ni₂₀ en utilisant différents types de broyeurs. De plus, elle nous a permis de constater le peu de travaux publiés sur le composé Fe₈₀Ni₂₀ élaboré à l'aide du vario-broyeur planétaire P 4. Ainsi, il ressort de ces études que les propriétés (structurales, hyperfines et magnétiques) dépendent de la microstructure qui elle-même dépend des conditions d'élaboration, en particulier le broyeur utilisé. Cette diversité dans les résultats obtenus dans ces différents travaux, nous a poussé à entreprendre ce travail de recherche ayant pour objet l'étude de l'effet de la durée de broyage sur les propriétés structurales, microstructurales et hyperfines des poudres nanostructurées Fe₈₀Ni₂₀ élaborées à l'aide du vario-broyeur de recherche P4 et pour des conditions différentes de celles citées dans la littérature.

Chapitre III :
Elaboration, propriétés structurales et microstructurales

Ce chapitre est consacré à la description de la méthode et des conditions d'élaboration des échantillons $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ ainsi qu'aux techniques de caractérisation utilisées pour l'étude structurale et microstructurale. Il comporte également les résultats de la diffraction des rayons X et aussi ceux obtenus par la microscopie à balayage couplé à l'EDX.

III. 1. Elaboration des poudres

III. 1. 1. Vario-Broyeur Planétaire Pulverisette 4

Nous avons élaboré les échantillons $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ au sein du laboratoire de Spectroscopie Mössbauer de la division des techniques nucléaires du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA).

Le vario-broyeur planétaire utilisé est de type « Pulverisette 4, P4 » commercialisé par FRITTSCH (figure III. 1). Comme tous les broyeurs planétaires, le principe du P4 consiste en la mise en rotation d'un plateau sur le quel sont disposées des jarres contenant des poudres et des billes. La particularité du broyeur P4 réside dans le principe des vitesses découplées du plateau et des jarres. Cette caractéristique permet non seulement de choisir le sens de rotation des jarres et du plateau qui peuvent être dans le même sens ou dans des sens opposés, mais elle permet également de choisir des vitesses différentes pour la rotation des jarres, ω , et du plateau, Ω . Le rapport entre les deux vitesses, Ω/ω , est appelé facteur de multiplicité. Sa valeur nous permet de choisir le mode de broyage utilisé et ce pour vitesse, Ω , choisie. On parlera de mode choc lorsque $\Omega/\omega \gg 1$ et de mode friction quand $\Omega/\omega \ll 1$.

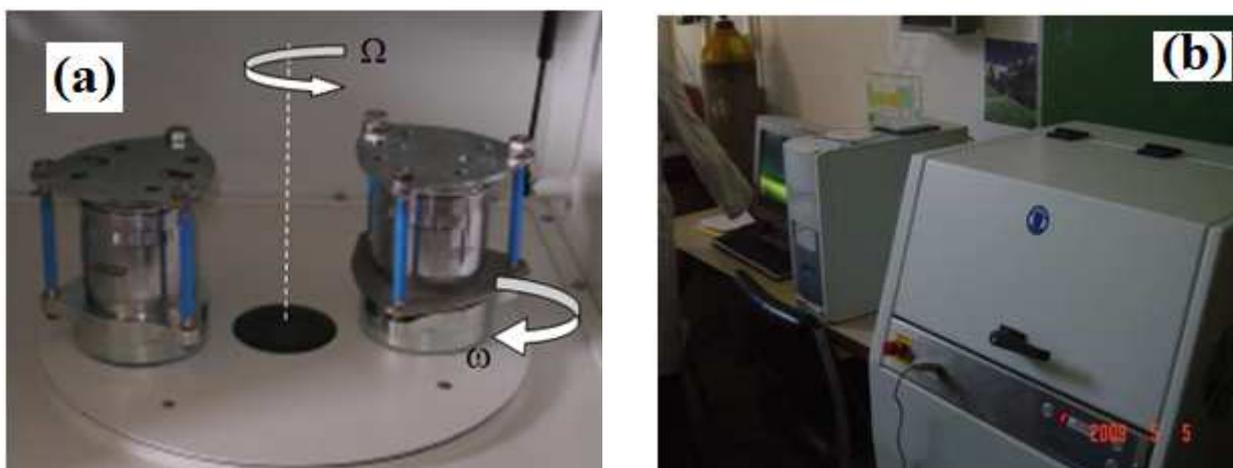


Figure III. 1. Vario-broyeur planétaire P4: (a) mise en rotation du plateau et des jarres (b) vue globale du P4.

Le P4 est piloté par ordinateur à l'aide du logiciel « P4_CONTROL », il permet le réglage de plusieurs paramètres (figure III. 2) :

- La vitesse de rotation du plateau en tours /minute ;
- La vitesse de rotation des jarres en tours /minute (le signe négatif pour la vitesse caractérise la rotation en sens inverse) ;
- Le rapport relatif de la vitesse des jarres et du plateau;
- La durée du cycle de broyage et du cycle de repos;
- Le nombre de répétition des cycles de broyage;
- Le mode reverse qui consiste à inverser régulièrement le sens de rotation;

Le vario-broyeur P4 est également munit d'un dispositif qui garde en mémoire le temps de broyage écoulé, ce qui est très utile en cas de coupure de courant, faute de quoi il faudrait refaire toute l'expérience.

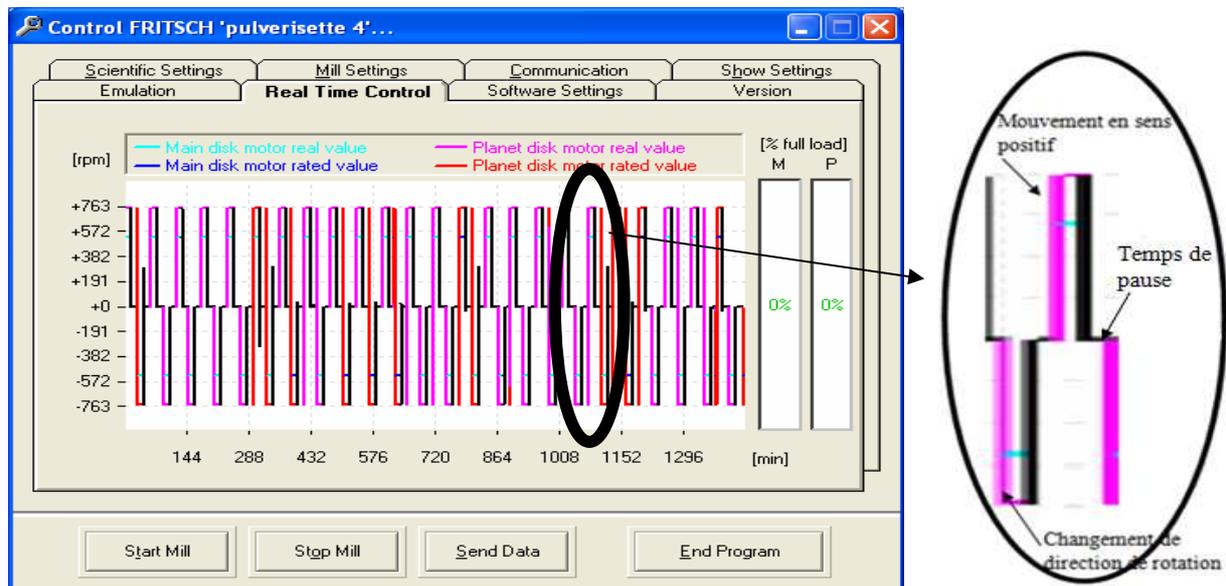


Figure III. 2. Fenêtre de contrôle indiquant les cycles de broyage.

III. 1. 2. Outils de broyage

Les outils de broyage peuvent influencer sur la qualité des échantillons élaborés. En effet, lors du broyage il y'a un risque de contamination par les outils de broyage (billes et jarres). Dans notre travail, nous avons utilisé des jarres et des billes en acier chromé commercialisées

par Fritsh (figure III. 3). Les caractéristiques des jarres et des billes utilisées sont les suivantes:

- Le diamètre d'une bille est de 2cm avec une masse de 32,6 g chacune.
- Le volume de la jarre est de 250 ml.
- Le diamètre des jarres est de 10 cm.



Figure III. 3. Outils de broyage.

III. 1. 3. Atmosphère de broyage

Lors du broyage, les multiples fractures et soudures créent de nouvelles surfaces facilement contaminables par l'atmosphère ambiante à l'intérieur des jarres. Pour éviter cela, nous avons travaillé sous atmosphère inerte (Argon) en utilisant une boîte à gants (figure III. 4). La boîte à gants est une enceinte fermée, ayant deux orifices pour fixer les gants qui servent à manipuler les outils (jarres, billes et poudres). Elle est également munie d'une entrée qui sert à injecter l'argon et d'une sortie reliée à une pompe primaire.

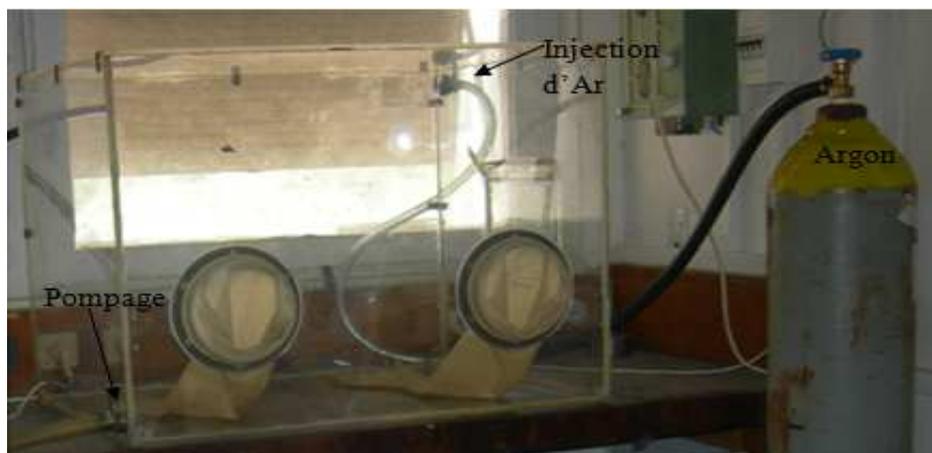


Figure III. 4. Boîte à gants sous atmosphère inerte.

III. 1. 4. Préparation des échantillons

Afin d'élaborer les échantillons $Fe_{80}Ni_{20}$, nous avons utilisé des poudres commercialisées par Goodfellow dont la pureté est de 99.995%. Nous avons effectué la pesée des poudres,

correspondantes à la composition désirée, à l'aide d'une micro balance à quartz. Afin de bien homogénéiser les poudres de fer et de nickel, nous avons en premier effectué un mélange manuel dans un mortier durant 10 min, ensuite par agitation manuelle à l'intérieur d'un tube à essais durant 30 min. Le mélange de poudres obtenu a été introduit dans la jarre, contenant les billes, qui a été placée dans la boîte à gants. Nous avons ensuite lancé le pompage à l'aide d'une pompe primaire et injecté de l'Ar à l'intérieur de la boîte à gants. La circulation du flux d'Ar est maintenue jusqu'à ce qu'on soit sûr que l'atmosphère régnante dans les jarres est inerte. Par la suite, les jarres sont transportées vers le broyeur ou elles seront fixées sur des supports rotatifs. Les conditions de préparation sont récapitulées dans le tableau III. 1.

Nombre de billes	8
Rapport $M_{\text{billes}} / M_{\text{poudre}}$	15 :1
Masse de poudre	17.38g
Taille des particules de fer au départ	<50 μm
Taille des particules de nickel au départ	<100 μm

Tableau III. 1. Conditions utilisées pour la préparation de l'alliage Fe₈₀Ni₂₀.

III. 1. 5. Mode de broyage

Afin d'optimiser le mode de broyage, nous avons effectué une série d'essais avec des vitesses du disque et des jarres de 270 tr/min et -68 tr/min respectivement durant des temps de broyages de 67 h, 72h et 102 h (rapport de multiplicité de -0.25). Les analyses par DRX de ces échantillons ont révélées la formation de la solution solide Fe(Ni) à 67 h de broyage (disparition des pics Ni dans les spectres DRX). Dans le but de réduire ce temps de broyage, nous avons pensé à jouer sur une caractéristique particulière du P4, à savoir le rapport de multiplicité. En effet, en injectant un rapport (vitesse des jarres/ vitesse du disque) égale à 2 et pour une vitesse du plateau de 300 tr/min (vitesse relative des jarres de -600 tr/min), nous avons remarqué un échauffement des jarres après 30 mn de broyage. L'analyse par DRX de cet échantillon a révélé la diminution des pics caractéristiques de nickel, ce qui est le signe du début de la formation de la solution solide Fe(Ni). Dans le but d'éviter l'échauffement des jarres, notamment, pour les longues durées de broyage, nous avons opté pour des vitesses du

disque et des jarres de 250 tr/min et de -500 tr/min respectivement, tout en gardant le rapport de multiplicité égal à 2. Le cycle de broyage était de 15 min de broyage pour 15 min de pause et les durées de broyage étaient de: 3 h, 6 h, 10 h, 17 h et 25 h. (figure III. 5)

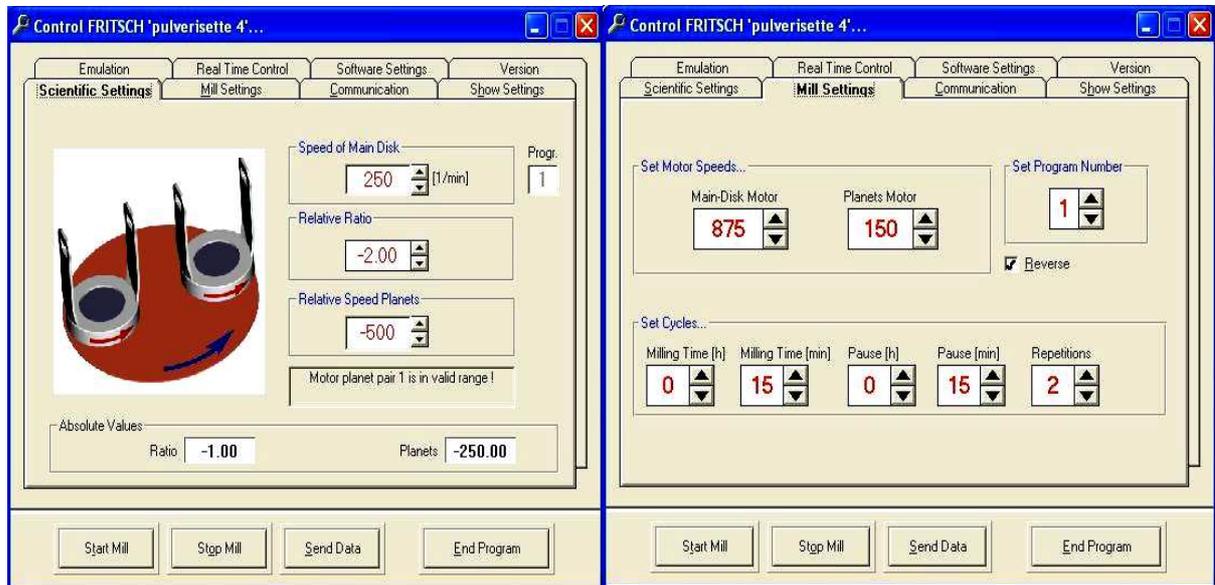


Figure III. 5. Conditions de broyages injectées par logiciel «P4_CONTROL ».

III. 2. Caractérisation des poudres par diffraction des rayons X

Pour étudier les propriétés structurales des poudres nanostructurées Fe₈₀Ni₂₀, nous avons utilisé la diffraction des rayons X (DRX). Les expériences ont été réalisées à l'aide d'un diffractomètre de type Philips X'Pert Pro disponible au CRNA (voir section III. 2. 2).

III. 2. 1. Principe

La diffraction des rayons X est une méthode d'analyse non destructive permettant d'apporter des renseignements sur la structure cristallographique d'un matériau et les phases présentes. Dans les solides, les atomes sont rangés sous forme de plans (figure III.6). Afin d'obtenir la distance entre ces plans, on utilise la relation de Bragg [2]:

$$n\lambda = 2d_{h,k,l} \sin(\theta) \quad (\text{III. 1})$$

Où :

n: l'ordre de diffraction;

λ : longueur d'onde des rayons X incident ;

$d_{h,k,l}$: distance interréticulaire correspondante à une famille de plans désignés par les indices de Miller (h k l);

θ : angle d'incidence des rayons X, appelé angle de Bragg.

Les interférences constructives, qui obéissent à la relation de Bragg, donnent lieu à des pics de diffraction correspondants aux plans (hkl).

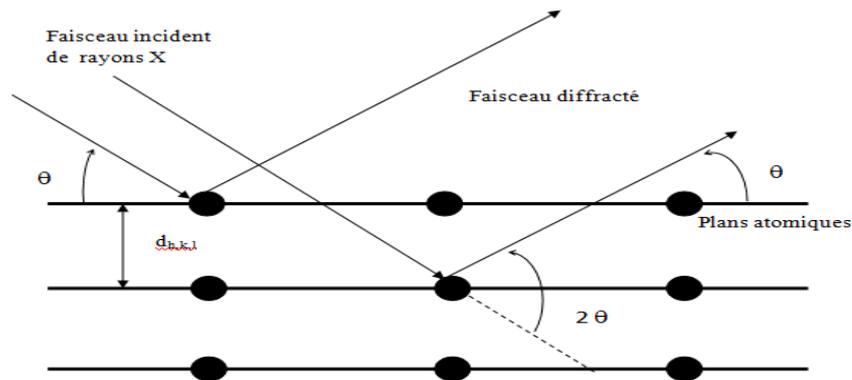


Figure III. 6. Principe de diffraction d'un faisceau des rayons X par les plans cristallins.

III. 2. 2. Dispositif expérimental

Le diffractomètre utilisé est muni d'un goniomètre vertical en mode θ - θ (figure III.7). Ce mode permet de travailler en gardant l'échantillon immobile et faire varier symétriquement la position du tube à rayons X et du détecteur d'un angle θ . L'appareil est muni d'un codage optique permettant la lecture directe de la position angulaire sur les bras du goniomètre. Il permet de balayer une gamme d'acquisition comprise entre 10° et 140° avec une précision angulaire absolue de 0.0025° .

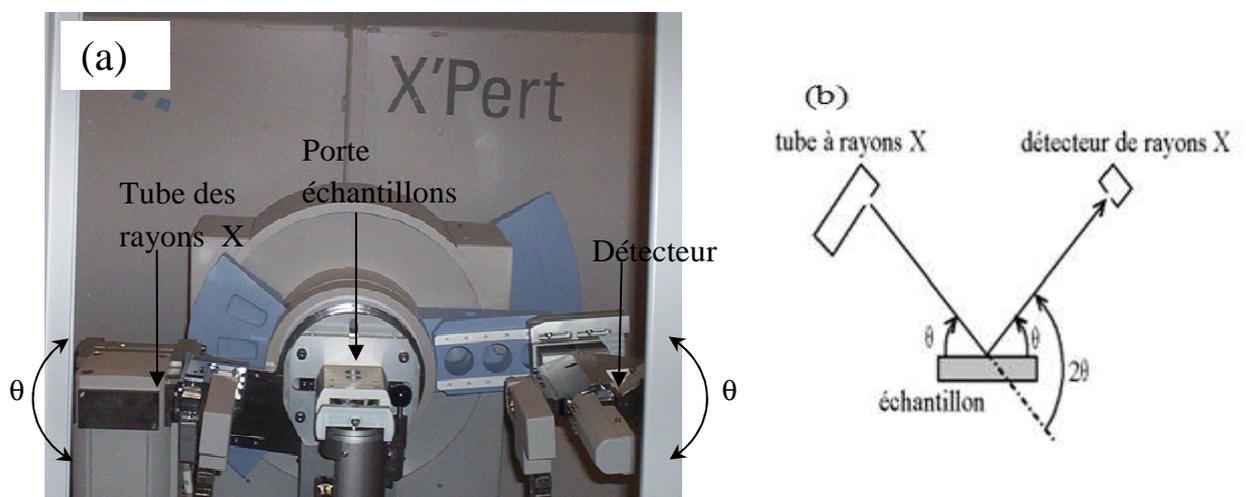


Figure III. 7. Configuration du goniomètre en mode θ - θ : a) goniomètre utilisé, b) principe.

Ce diffractomètre est muni d'un tube à rayons X avec une anticathode en cuivre, d'un filtre monochromateur permettant la sélection d'une seule longueur d'onde et de différentes fentes programmables servant à avoir des rayons parallèles. Le détecteur utilisé est de type proportionnel scellé, il permet de convertir les photons X incidents en impulsions électriques. L'ensemble de l'appareil est commandé par une électronique ultra-rapide connectée à un ordinateur comportant plusieurs programmes qui permettent le contrôle de l'appareil la programmation des différents modes analytiques et le traitement des données de mesure.

III. 2. 3. Propriétés structurales de l'alliage Fe₈₀Ni₂₀

III. 2. 3. 1. Evolution de la structure cristalline

L'évolution structurale des échantillons Fe₈₀Ni₂₀ en fonction du temps de broyage a été suivie par diffraction X, les conditions expérimentales ont été fixées comme suit:

- Une tension de 50 kV
- Une intensité de 40 mA
- Une gamme de $40^\circ < 2\theta < 110^\circ$
- Un pas angulaire de 0.02°
- Une anticathode en cuivre avec une longueur d'onde moyenne $\lambda(K_\alpha) = 1.5418 \text{ \AA}$
- Un porte échantillon rotatif « spiner » pour avoir une analyse homogène de tout l'échantillon

La figure III. 8, représente la superposition des spectres de diffraction des poudres élaborées pour différents temps de broyage. Le diffractogramme du mélange initial est aussi donné pour comparaison.

Le spectre relatif à l'échantillon non broyé (0 h) 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.). L'indexation des spectres a été faite en faisant référence aux fiches JC PDS (International Center for Diffraction Data) du fer et du nickel [38,39].

A partir de 3 h de broyage, nous avons remarqué que les pics de diffraction s'élargissent de façon progressive indiquant ainsi une diminution continue de la taille des grains et une introduction des contraintes internes. Cet élargissement dans les pics de diffraction est attribué au second ordre de contraintes internes, qui agit à un niveau macroscopique dans les cristallites [41].

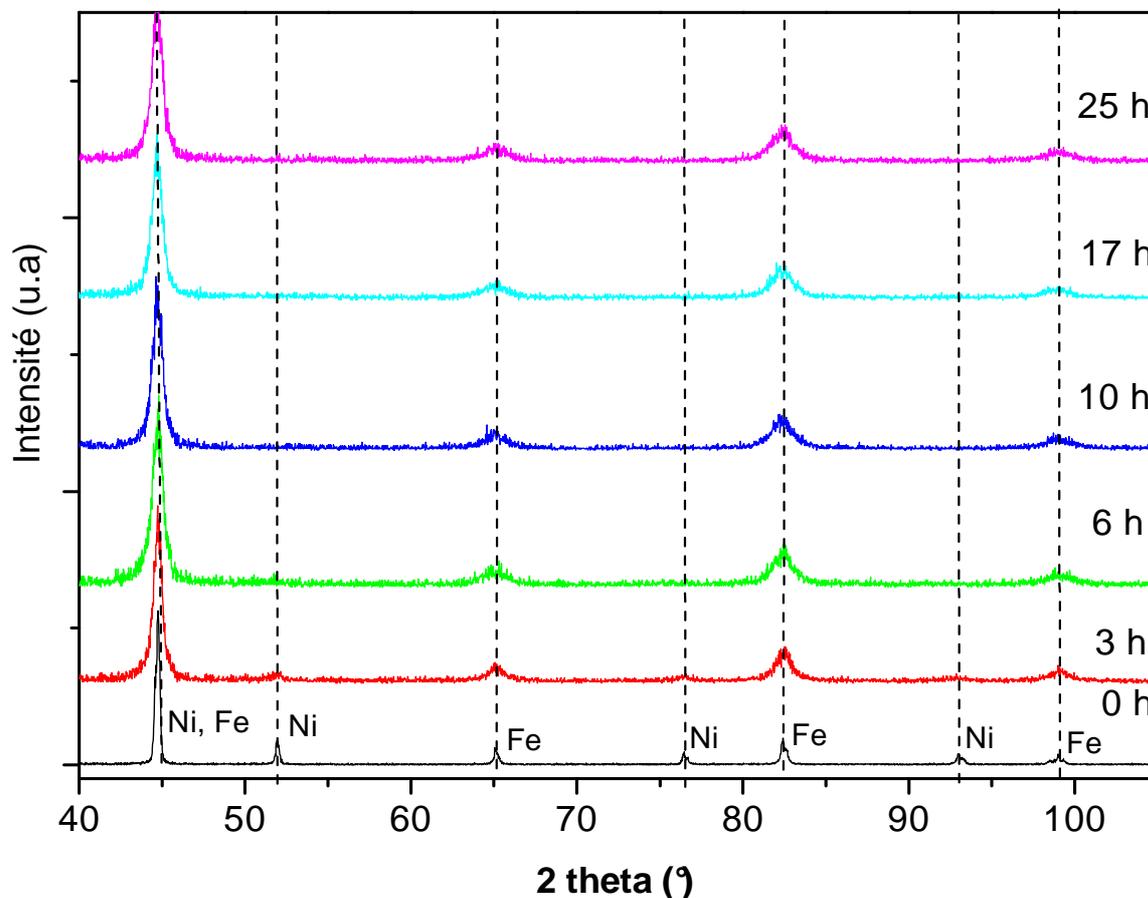


Figure III. 8. Evolution des diffractogrammes des rayons X de la poudre du $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ en fonction du temps de broyage.

Après 6 h 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 matrice de Fe donnant lieu à la formation de la solution solide $\text{Fe}(\text{Ni})$. Celle-ci a été identifiée comme étant la phase α FeNi de structure cubique centré (c.c) (appelée aussi kamacite) [40]. 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 [41].

Cependant et afin de voir s'il y'a une réelle formation totale de la solution solide pour la poudre broyée à 6 h, nous avons effectué une analyse des spectres de diffraction des rayons X pour cet échantillon. Pour cela, nous avons utilisé le logiciel High Score commercialisé par Philips [45]. Le profile de simulation des pics de diffraction est une fonction Pseudo-Voigt qui est une combinaison d'une gaussienne et d'une lorentzienne :

$$PV(2\theta) = \gamma L(2\theta) + (1-\gamma) G(2\theta) \quad (\text{III.2})$$

Où γ représente un paramètre de mélange:

- si $\gamma = 0$ la fonction est une gaussienne,
- si $\gamma = 1$, la fonction est une lorentzienne.

L'identification des différentes phases, pouvant exister, a été effectuée en faisant référence aux fiches JCPDS incluses dans la base de données du logiciel X'Pert High Score. Un exemple de traitement du spectre de la poudre Fe₈₀Ni₂₀ broyée pendant 6 h est présenté sur la figure III. 9. Il ressort ainsi que, pour cet échantillon, la formation de la phase FeNi (c.c) (kamacite) n'est pas totale. En effet, l'identification a montré l'existence du fer alpha dans cet échantillon. Ainsi nous concluons que la solution solide s'est totalement formée pour une durée de broyage supérieure à 6 h.

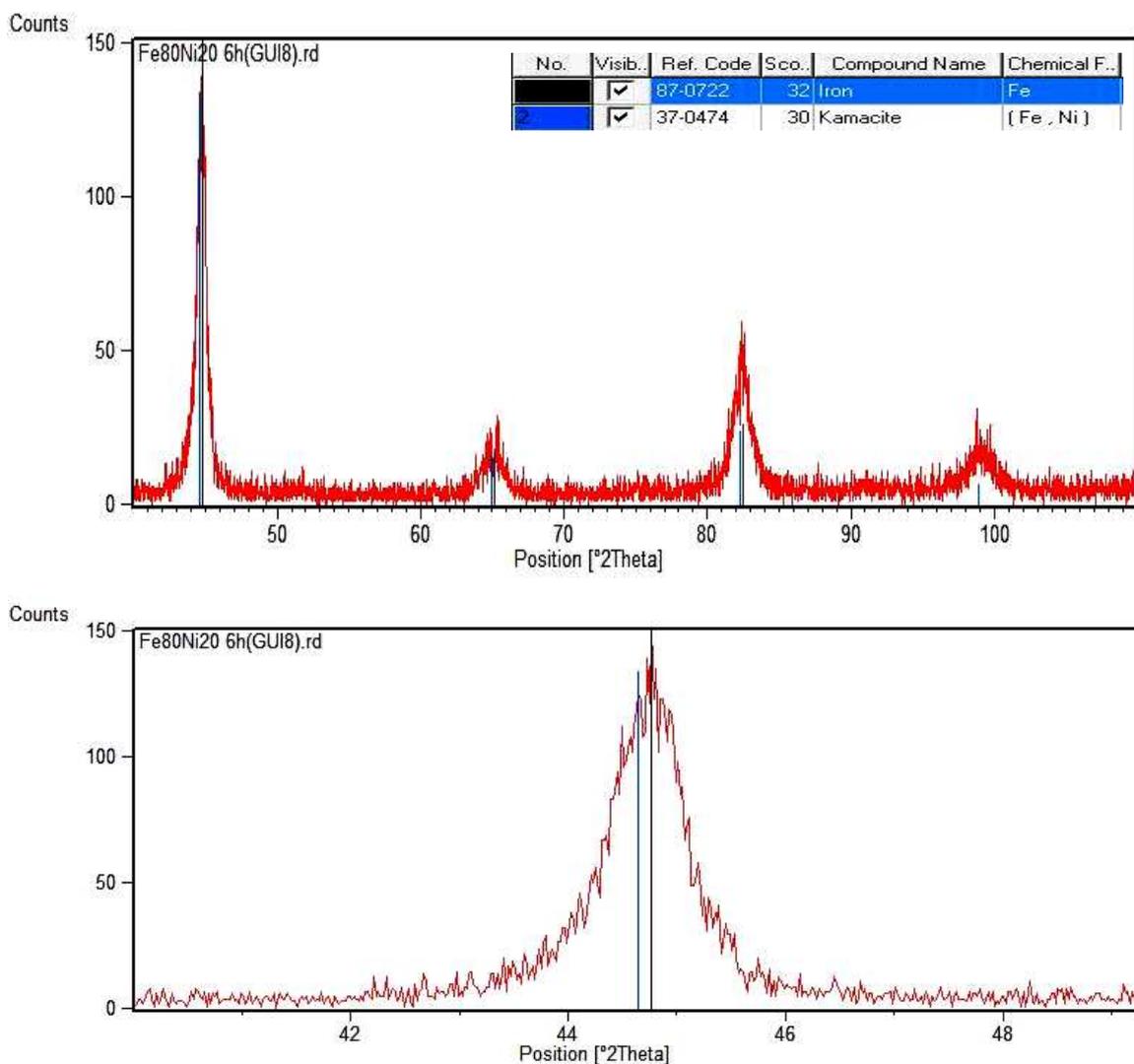


Figure III. 9. Exemple de l'ajustement d'un spectre de rayons X du Fe₈₀Ni₂₀ obtenu après 6h de broyage.

La formation de la solution solide Fe(Ni) dans le cas du composé Fe₈₀Ni₂₀ obtenu par mécanosynthèse a été déjà observée par plusieurs auteurs utilisant différents types de broyeurs. On peut citer, à titre d'exemple, P. Gorria et al. [46] qui ont observé la formation de la solution solide Fe(Ni) cubique centré (c.c) à partir de 24 h de broyage. R. Koohkan et al. [29], en utilisant un broyeur à haute énergie avec une vitesse de 500 tr/min, ont mis en évidence la formation de la solution solide après 45 h de broyage. R. Hamzaoui et al. [31], en utilisant un broyeur Retsch PM 400, ont montré la formation de la solution solide après 24 h de broyage.

Par comparaison aux travaux déjà cités, nous tenons à préciser que, dans notre cas, la complète formation de la solution solide Fe(Ni) (c.c) a été obtenue pour un temps de broyage relativement court.

III. 2. 3. 2. Evolution du paramètre de maille

La distance interréticulaire donnée par le logiciel, a été utilisée pour le calcul du paramètre de maille. Dans le cas d'un système cubique, la relation qui relie les deux grandeurs est donnée par la formule suivante

$$d_{h,k,l} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (\text{III.3})$$

Où :

$d_{h,k,l}$: distance inter réticulaire;

a : paramètre de maille;

h, k, l : indices de Miller.

Pour le calcul du paramètre de maille des poudres Fe₈₀Ni₂₀ obtenues après différents temps de broyage, nous avons considéré le pic le plus intense (110) du fer et de la phase Fe(Ni) avant et après formation de la solution solide respectivement.

L'évolution du paramètre de maille en fonction du temps de broyage est représentée sur la figure III. 10.

Nous avons remarqué une légère augmentation du paramètre de maille en fonction du temps de broyage. En effet, sa valeur augmente de 0.28613 ± 0.00002 nm pour le fer non broyé

jusqu'à 0.28668 ± 0.00002 nm après 25 h de broyage. Une telle petite variation du paramètre de maille est due à la faible différence entre les rayons atomiques du Fe et Ni et qui sont de 0.127 et 0.124 nm respectivement [26]. 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 égale à 0.28686 nm [40].

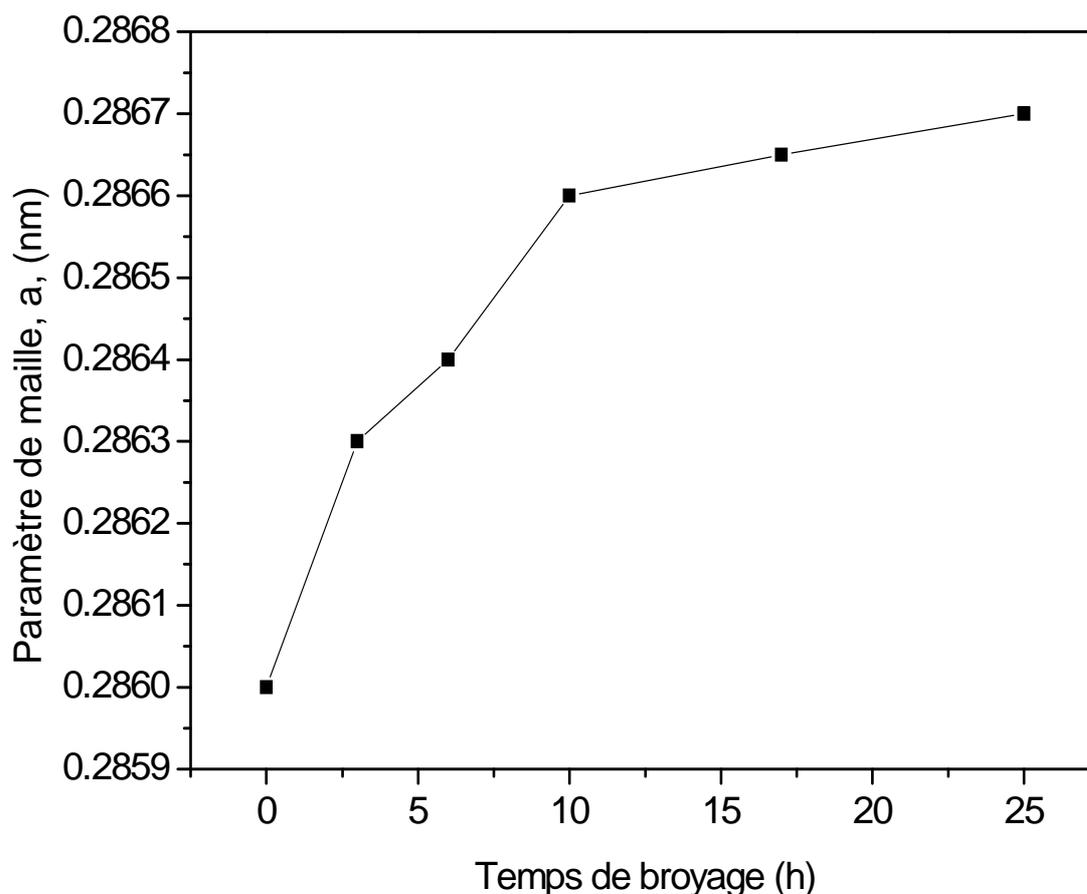


Figure III. 10. Paramètre de maille, a (nm), en fonction de la durée du broyage pour les échantillons $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$.

Le comportement de a (nm) en fonction de la durée de broyage est semblable à celui observé généralement dans la littérature. On peut citer, à titre de comparaison, que Hamzaoui et al. [46], ont trouvé un paramètre de maille de 0.28689 nm après 36 h de broyage à l'aide d'un broyeur planétaire P4. R. Koohkan et al. [29] ont obtenu un paramètre de maille de 0.2869 nm après un temps de broyage de 110 h à l'aide d'un broyeur planétaire. A. Guittoum et al.

[30] ont trouvé une valeur de 0.28681 nm après 48h de broyage à l'aide d'un broyeur Retsch PM400 et E. Jartych et al. [34] ont obtenu une valeur de a (nm) égale à 0.28690 nm après 56 h de broyage à l'aide d'un broyeur planétaire Fritsch P5.

III.2. 3. 3. Evolution de la taille des grains et des microdistorsions

La taille moyenne des grains, $\langle D(\text{nm}) \rangle$, et le taux de microdistorsions, $\langle \varepsilon (\%) \rangle$, ont été calculés conjointement à partir des spectres de diffraction relatifs aux différents temps de broyage. L'affinement des profils de raies de diffraction X a été effectué à l'aide du logiciel High Score [45]. Après avoir éliminé la contribution de la raie $K\alpha_2$ au profil de raie à l'aide de la méthode de Rachinger ainsi que l'élargissement instrumental, les largeurs vraies β des raies spectrales ont été déterminées pour chaque pic de diffraction.

La taille moyenne des grains, $\langle D(\text{nm}) \rangle$, a été calculée à l'aide de la relation de Scherrer incluse dans le Logiciel High Score Plus et qui est donnée par la relation suivante [47] :

$$\langle D \rangle (\text{nm}) = \frac{K \cdot \lambda}{\beta_L \cos \theta} \quad (3)$$

K : constante de Scherrer dont la valeur est généralement proche de 1 (ici $K = 0.9$).

λ : longueur d'onde en nm de la raie $K\alpha_1$ du rayonnement X,

θ : angle de diffraction,

β_L : contribution de la Lorentzienne à la largeur vraie β et qui traduit l'effet de la taille des cristallites.

Le taux moyen de microdistorsions, $\langle \varepsilon (\%) \rangle$, a été calculé en utilisant la formule de la tangente incluse dans le logiciel High Score plus et qui est donnée par la relation suivante [47]:

$$\langle \varepsilon (\%) \rangle = \frac{\beta_G}{(4 \tan \theta)} \quad (4)$$

β_G : contribution de la Gaussienne à la largeur vraie β et qui traduit l'effet des microdistorsions.

La figure III. 11. montre l'évolution de la taille moyenne des grains, $\langle D(\text{nm}) \rangle$, et de la valeur moyenne des microdistorsions, $\langle \varepsilon \rangle (\%)$, en fonction du temps de broyage. Nous avons remarqué que la taille moyenne des grains diminue de façon monotone avec l'augmentation

de la durée du broyage. Cette diminution de $\langle D \rangle$ est accompagnée d'une augmentation du taux de microdistorsions $\langle \epsilon \rangle$ avec le temps de broyage. En effet, la taille moyenne des grains diminue de 72 nm (0 h) jusqu'à 11 nm après 25 h alors que le taux de microdistorsions augmente de 0.141 % (0 h) jusqu'à 0.811 % à 25 h.

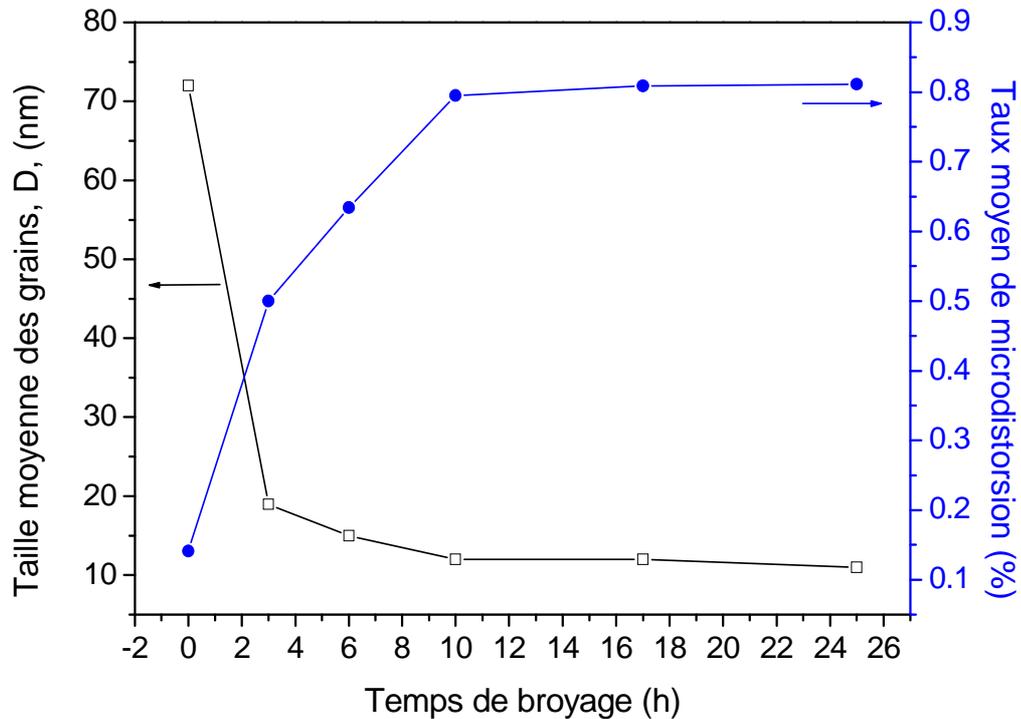


Figure III. 11. Taille des grains D (nm), et microdistorsions ϵ % en fonction de la durée du broyage pour les échantillons $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$.

La valeur finale de la taille des grains obtenue (11 nm) est comparable à celle trouvée R. Hamzaoui et al. [46] (10 nm) après 36 h de broyage à l'aide d'un vario-broyeur P4, D. Martínez-Blanco et al. [48] (11 nm) après 30 h de broyage à l'aide d'un broyeur planétaire RETSCH PM400, A. Guittoum et al. [30] (11 nm) après 48 h à l'aide du PM400. Aussi, R. Rong et al. [50] 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. [51] ont atteint une valeur de 12 nm après 1 h de broyage à l'aide d'un broyeur de type AGO-2UL.

Il est important de souligner que, dans notre cas, la valeur minimale de D (nm) a été obtenue après 25 h de broyage qui représente un temps relativement court en comparaison avec les études déjà citées. Ceci est probablement dû au mode de broyage utilisé (friction) du vario-broyeur P4 ainsi qu'aux conditions d'élaboration utilisées dans notre travail.

III. 3. Caractérisation des poudres par microscopie électronique à balayage

III. 3. 1. Principe de fonctionnement du microscope

Dans le microscope électronique à balayage (MEB) ou SEM (Scanning Electronic Microscopy, en anglais), une source émet un faisceau d'électrons, qui sera focalisé (dans le vide) en une sonde fine qui va venir interagir avec un échantillon. Comme les électrons vont pénétrer la surface, il se produit alors différentes interactions provoquant l'émission d'électrons ou de photons. Une partie des électrons émis peuvent être détectés à l'aide de détecteurs appropriés. En balayant la surface de l'échantillon il se forme une image sur l'écran. Les principales images produites par le MEB sont de trois types : les images formées par les électrons secondaires, les électrons rétrodiffusés et les spectres obtenus par les rayons X.

- **Les électrons rétrodiffusés :** ils sont issus de l'interaction élastique des électrons incidents avec l'échantillon et possèdent des énergies comparables à ses électrons primaires. Le taux de rétrodiffusion est directement croissant avec le numéro atomique de l'échantillon. Un élément lourd donnera donc un signal intense (clair), un élément léger un signal faible (sombre). Ces électrons possèdent une profondeur d'échappement de l'ordre de 100 nm.
- **Électrons secondaires :** Ils sont issus de l'interaction inélastique des électrons incidents avec les électrons de l'échantillon. Leur énergie est inférieure à 50 eV et proviennent de la surface de l'échantillon (0.5 à quelques nm). ces électrons sont sensibles à la topographie de la surface et donnent des images dont le contraste vient du relief de l'échantillon
- **Les rayons X et les électrons Auger:** lors d'une collision des électrons primaires avec des atomes du solide, un électron d'une couche profonde peut être éjecté et l'atome entre dans un état excité. La désexcitation peut se produire de deux façons différentes: en émettant un photon X ou en émettant un électron Auger (effet Auger) [52]. En analysant le spectre des rayons X, on peut avoir une analyse élémentaire sur la nature des atomes présents. La détection des rayons X se fait soit en fonction de la longueur d'onde (WDX, Wavelength Dispersive X-ray spectroscopy, en Anglais) soit en fonction de l'énergie (EDX, Energy Dispersive X-ray spectroscopy, en Anglais) des rayons X. La technique utilisant les longueurs d'onde est plus précise et permet des

analyses quantitatives alors que celle utilisant l'énergie est plus rapide et moins coûteuse. Les détecteurs de type EDX sont des semi-conducteurs (cristal de Silicium dopé au Lithium en surface). Ce cristal est maintenu à la température de l'azote liquide pour minimiser le bruit électronique [4].

III. 3. 2. Dispositif expérimental

Pour l'étude microstructurale des échantillons $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$, nous avons utilisé un microscope électronique à balayage de type ESEM XL 30 existant au niveau du C.R.N.A (figure III. 12)

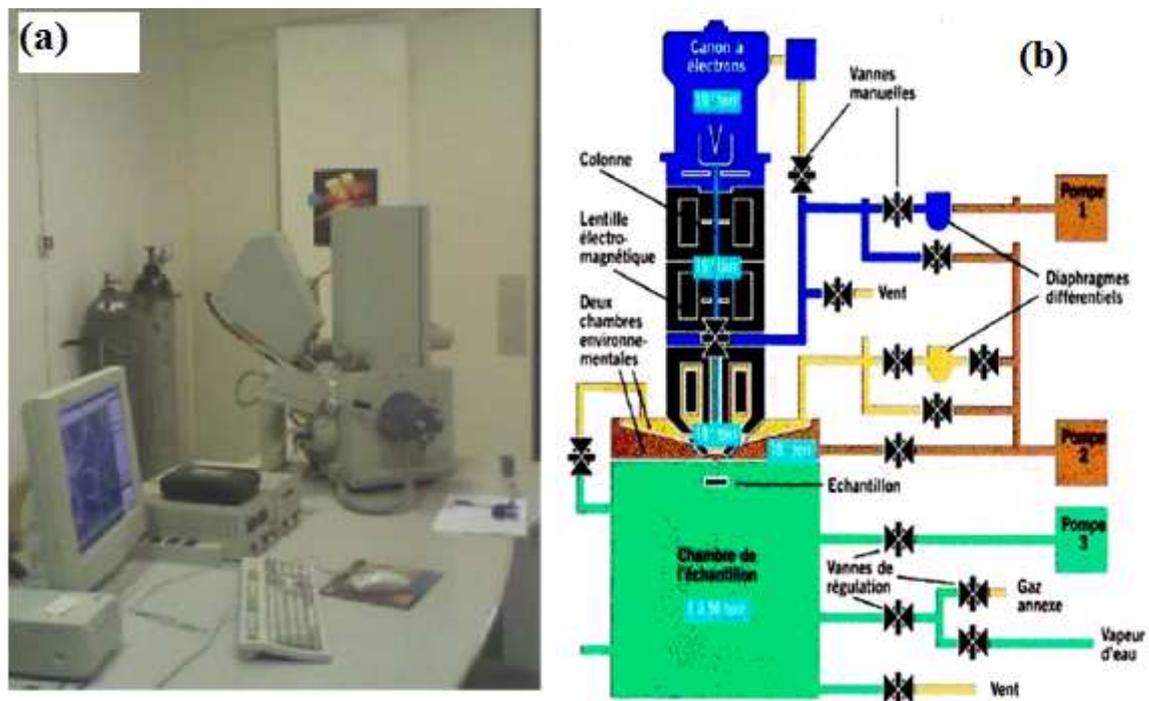


Figure III. 12. Microscope électronique à balayage ESEM XL 30 FEG : a) photographie du microscope, b) schémas du MEB.

Ce microscope possède certaines caractéristiques notamment :

- Une source d'électrons à canon à émission de champ (connu sous les initiales FEG : Field Emission Gun en Anglais)
- La taille de la chambre qui est assez grande, avec des déplacements de 50 mm par 50 mm en X et Y
- Un vide poussé permettant l'observation d'échantillons avec le moins de préparation possible.
- Il permet également de travailler sous deux modes de pression :

- Le mode pression contrôlée encore appelée «Low Vacuum en anglais » : où la pression est généralement comprise entre 0,1 et 2 mbar. Ce mode peut être utilisé pour analyser des échantillons non conducteurs sans avoir à les métalliser. Cependant ce mode ne permet pas observation d'échantillons hydratés sans les endommager.
- Le mode ESEM (Environnemental Scanning Electron Microscope): la pression utilisée avec ce mode peut aller jusqu'à 26 mbar, le mode environnemental permet d'éviter la métallisation en introduisant à l'intérieur de la chambre des vapeurs d'eau ou de gaz tel que l'azote ou argon...Il permet également de chauffer l'échantillon à des températures pouvant atteindre 1500 C° [53].

III. 3. 3. Morphologie et cartographie par EDX des poudres Fe₈₀Ni₂₀

III. 3. 3.1. Morphologie des poudres Fe₈₀Ni₂₀

La morphologie des échantillons de poudres Fe₈₀Ni₂₀ élaborés pour différents temps de broyage a été observée par microscopie à balayage. Les micrographies obtenues nous renseignent sur les processus qui régissent le broyage, la forme des particules, leurs tailles et leurs homogénéisations. L'analyse chimique a été effectuée par EDX (précision de 0.3%). Ces analyses nous ont permis de vérifier la pureté des échantillons broyés.

Pour l'échantillon non broyé (figure III. 13), La micrographie MEB montre clairement l'existence séparée des deux types de particules Fe (grandes) et Ni (petites).

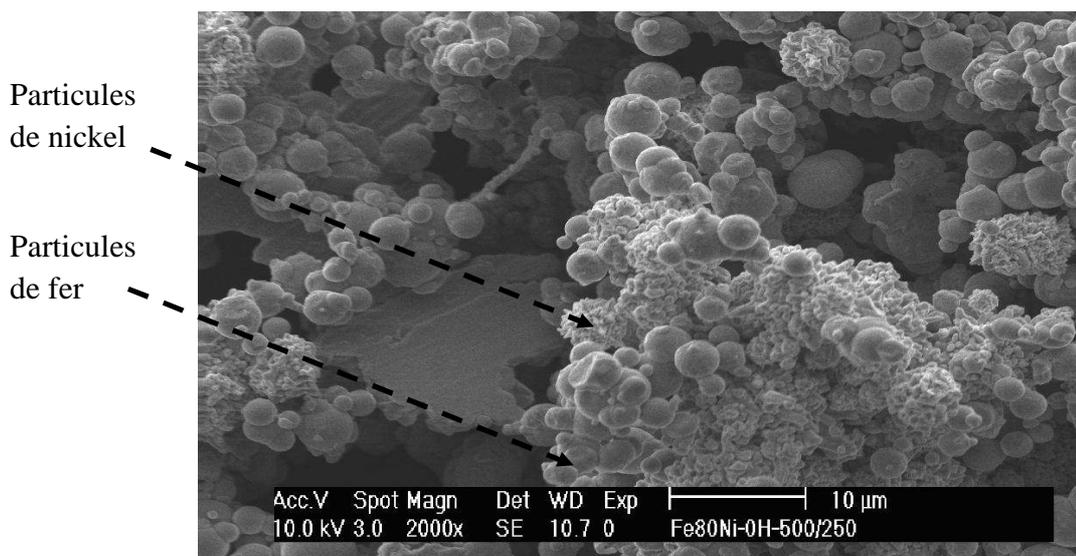


Figure III. 13. Micrographies de la poudre non broyée.

Après 3 h de broyage (figure III. 14), on peut clairement voir les phénomènes de fracture et soudage des particules et qui sont propres à la mécanosynthèse. De plus, nous avons remarqué l'existence de deux types de particules: des particules de forme aplaties relativement grandes et des particules plus petites qui commencent à s'arrondir. Pour les particules aplaties, une structure lamellaire est visible. Cette structure est typique des matériaux ductiles ou fragiles préparés par mécanosynthèse [54]. L'analyse chimique de cet échantillon, a permis de constater que le composé FeNi avec une composition 80 :20 commence déjà à se former) partir de 3 h. ; pour cette durée de broyage, il n'ya aucune contamination par de l'oxygène (O_2) ou le Chrome (Cr) en provenance de l'atmosphère ou des outils de broyage (jarre et billes) respectivement.

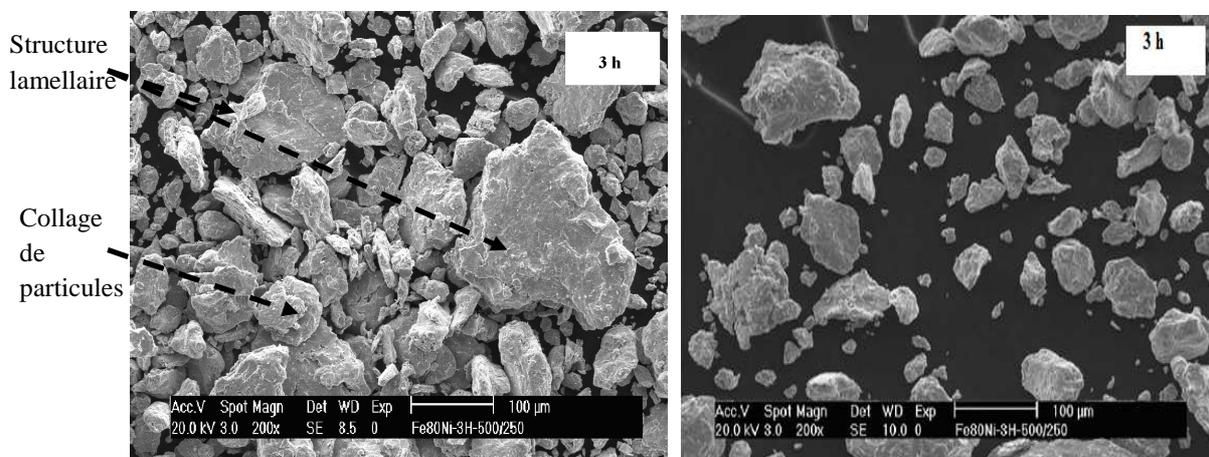


Figure III. 14. Micrographie des poudres $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ obtenues par mécanosynthèse après 3 h de broyage.

La figure III. 15, représente les micrographies obtenues après 10 h de broyage. Nous avons noté que la majorité des particules possèdent une forme plus ou moins arrondies avec une réduction considérable de leurs tailles.

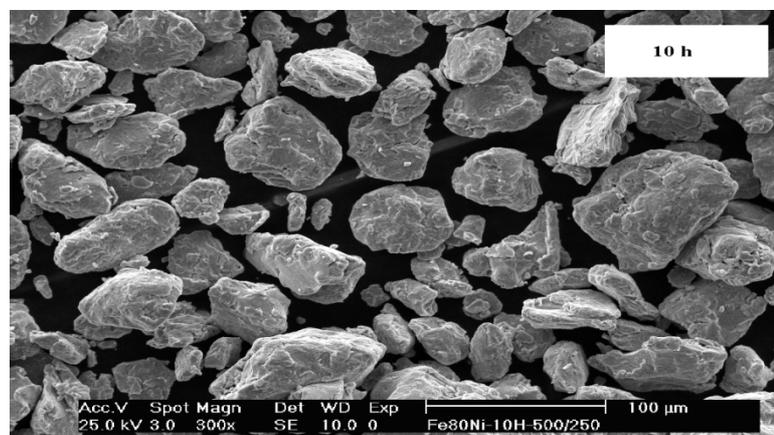


Figure III. 15. Micrographies de la poudre $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ obtenues par MEB après 10 h de broyage.

Pour la plus longue durée de broyage (figure III. 16), la majorité des particules possèdent une forme arrondie. Cependant, on peut encore observer la présence de grosses particules possédant une forme aplatie. Il semblerait ainsi que, pour les longues durées de broyage, le mode utilisé ainsi que les conditions de broyage favorisent l'existence des particules de forme ronde.



Figure III. 16. Micrographie des poudres $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ obtenues par mécanosynthèse après 25 h de broyage.

III. 3. 3. 2. Cartographie par EDX des poudres $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$

L'homogénéité des alliages élaborés par mécanosynthèse est un facteur très important. En effet, il est intéressant de savoir, pour un composé donné, si la composition de départ est identique à celle après broyage. De ce fait, pour suivre la formation de la solution solide et vérifier l'homogénéité des poudres $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ élaborées par mécanosynthèse, nous avons effectué des cartographies des éléments Fe et Ni à l'aide l'EDX incorporé dans le MEB.

III. 3. 3. 2. 1. Mise en forme des poudres par compaction pour la cartographie

Afin de minimiser l'effet d'ombre résultant des observations MEB faites sur les échantillons sous forme de poudres, nous avons procédé à l'élaboration de pastilles par compactage à froid des poudres broyées à l'aide d'une presse automatique de 25 tonnes. Un moule en acier chromé de 13 mm de diamètre à été utilisé pour fabriquer une pastille d'environ 3 mm d'épaisseur (figure III. 17).

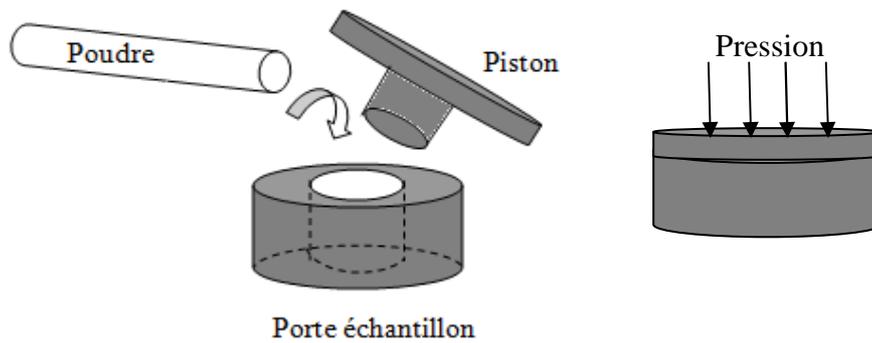


Figure III. 17. Mise en forme des poudres broyées par compactage

III. 3. 3. 2. 2. Résultats des cartographies

La figure III.18 montre la distribution des éléments Fe et Ni obtenues suite à l'analyse des pastilles fabriquées avec les poudres broyées à des temps de 3 h, 10 h et 25 h.

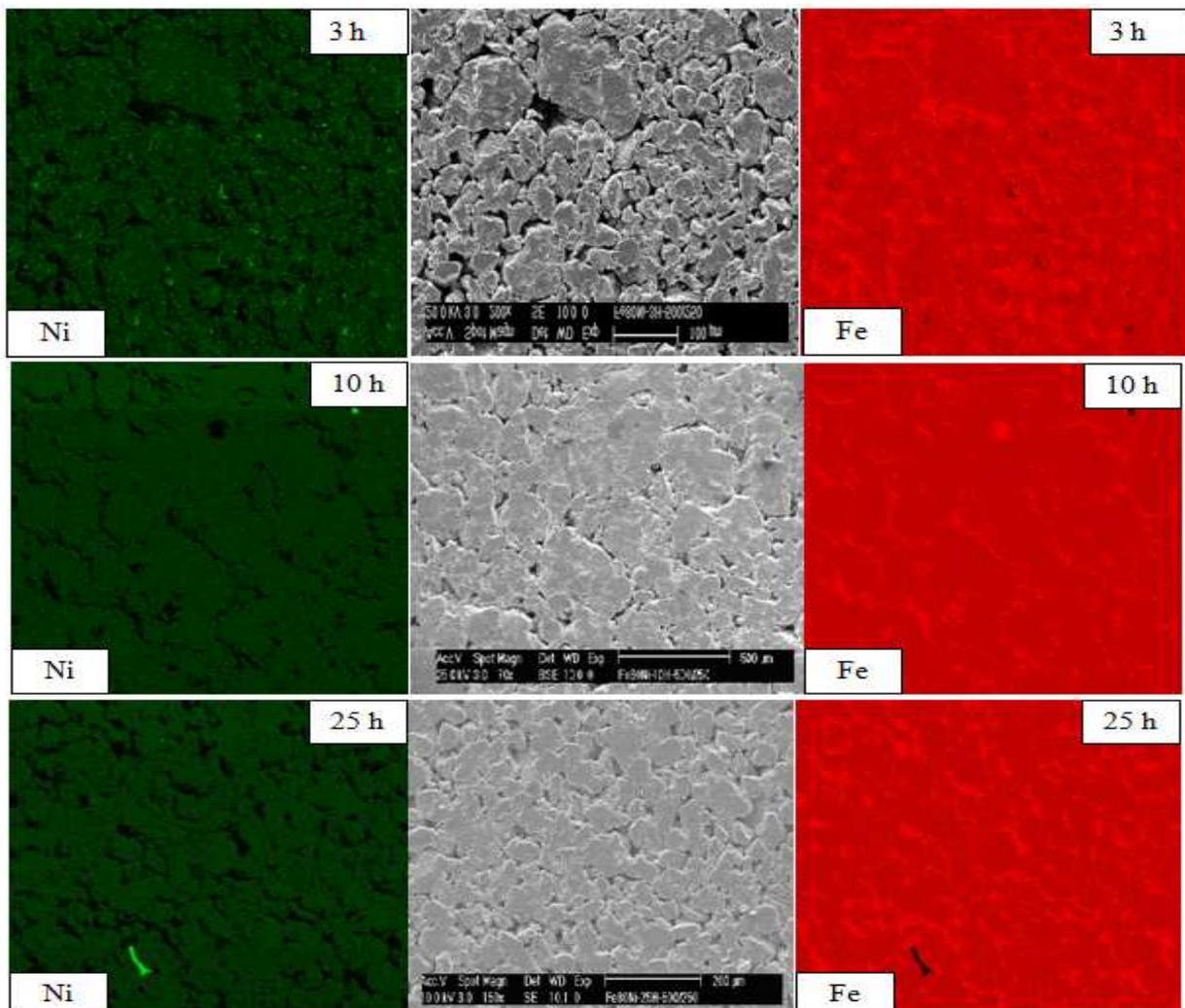


Figure III. 18. Cartographies de la distribution des éléments Fe et Ni pour différents temps de broyage : 3 h, 10 h et 25 h.

Nous avons remarqué que, durant les premières heures de broyage (3 h), les cartographies montrent qu'il commence à être difficile de séparer les éléments Fe et Ni. Ceci indique que le composé FeNi commence déjà à se former. Cependant, nous pouvons toujours observer l'existence séparée des éléments Fe et Ni. A partir de 10 h de broyage, nous avons remarqué que la distribution des deux éléments (Fe et Ni) est quasiment identique. Ceci indique que le composé FeNi est complètement formé. Ces résultats sont en bon accord avec ceux trouvés par la diffraction des rayons X (voir section III. 2. 3).

Conclusion

L'élaboration des poudres nanostructurées Fe₈₀Ni₂₀ a été réalisée avec succès, à l'aide du vario-broyeur planétaire P4, pour différents temps de broyage allant de 3 à 25 h. Les poudres obtenues ont été caractérisées par la diffraction des rayons X (DRX) et la microscopie électronique à balayage (MEB) couplée à l'EDX.

A partir des spectres DRX, nous avons 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 microdistorsions augmente jusqu'à la valeur de saturation de 0.811 % après 25 h.

L'étude microstructurale nous a permis d'observer le changement de la forme ainsi que la taille des particules après le broyage. Il semblerait que pour les longues durées de broyage, le mode utilisé ainsi que les conditions de broyage favorisent l'existence des particules de forme ronde. Les cartographies réalisées par EDX nous ont permis de suivre l'évolution de la formation de l'alliage en fonction du temps de broyage.

Chapitre IV:

Spectroscopie Mössbauer des nanomatériaux $Fe_{80}Ni_{20}$

Dans le but de compléter cette étude et de mieux comprendre les phénomènes survenus lors de l'élaboration des échantillons de poudres Fe₈₀Ni₂₀, nous avons utilisé la spectroscopie Mössbauer. Cette méthode non destructive permet d'avoir des renseignements à l'échelle atomique. En effet, son principe est basé sur l'excitation d'un noyau sonde qui va nous renseigner sur les interactions hyperfines existantes et sur l'environnement immédiat de ce noyau. Ainsi, il est possible de suivre l'évolution de la formation du composé à l'échelle local.

IV. A. Aspect théorique de la spectroscopie Mössbauer

L'effet Mössbauer a été découvert en 1958 par R.L. Mössbauer, prix Nobel de Physique 1961 [55, 56]. Cet effet est caractérisé par l'émission et l'absorption résonnante nucléaire de photons γ . Le mode transmission de la spectroscopie Mössbauer consiste à détecter le rayonnement gamma émis par l'échantillon après l'absorption résonnante. Les éléments de base d'un montage permettant la mesure par spectroscopie Mössbauer en mode transmission sont: une source de radiation γ , un échantillon et un système de comptage qui enregistre le spectre. Ces éléments sont montés selon le schéma représenté sur la figure IV.1.

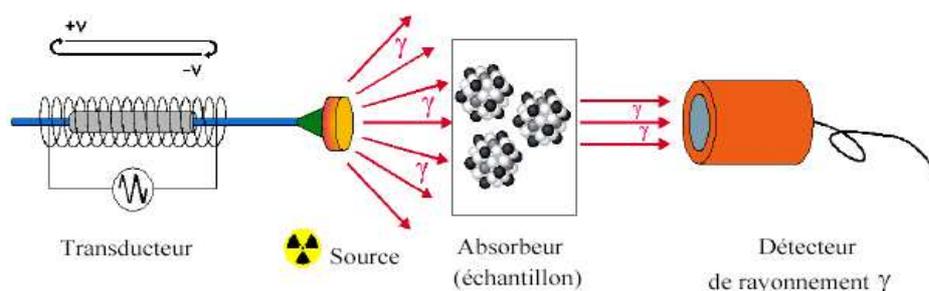


Figure IV. 1. Illustration du dispositif expérimental de spectrométrie Mössbauer en mode transmission.

IV. A. 1. Phénomène de résonance

Lors de la désexcitation nucléaire d'un atome, d'un niveau excité vers le niveau fondamental, il se produit l'émission d'un rayonnement γ ayant une énergie de :

$$E_0 = \omega \cdot \eta \quad (\eta : \text{Constante de Planck}) \quad (\text{IV.1})$$

Lorsque cette énergie du rayonnement γ est absorbée par un noyau absorbeur, celui-ci passe dans un état excité, ce phénomène est appelé la résonance γ nucléaire (figure IV.2) [57].

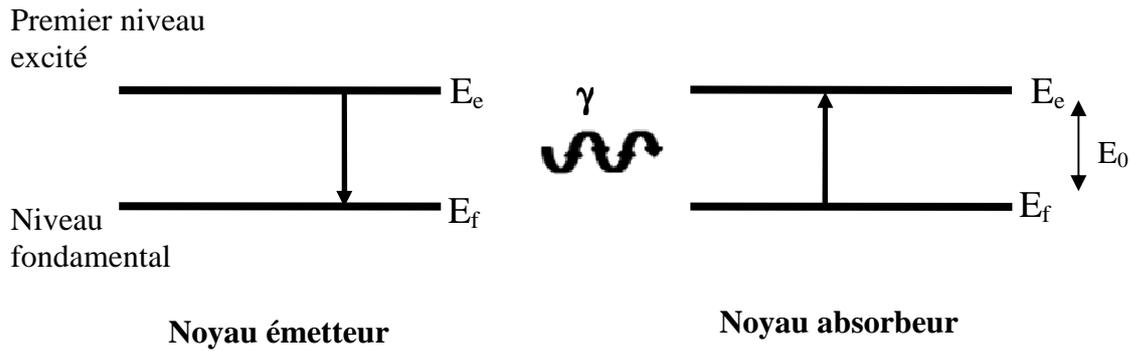


Figure IV. 2. Représentation schématique du processus de résonance gamma nucléaire.

Or, généralement pour des atomes libres, l'émission et l'absorption de photons s'accompagne d'un effet de recul, ainsi l'énergie d'un photon émis n'est pas l'énergie de la transition E_0 mais $E_0 - E_R \pm \Gamma/2$

Où : E_R : énergie de recul, Γ : largeur naturelle de la transition.

Pour que ce photon soit par la suite absorbé il faudrait qu'il possède l'énergie $E_0 + E_R \pm \Gamma/2$ [58].

Comme $E_R \gg \Gamma$, le phénomène de résonance ne peut pas être observé.

Un recouvrement des raies d'émission et d'absorption peut être obtenu, par agitation thermique (figure IV. 3), mais sa faible étendue rend difficile l'observation de la résonance nucléaire.

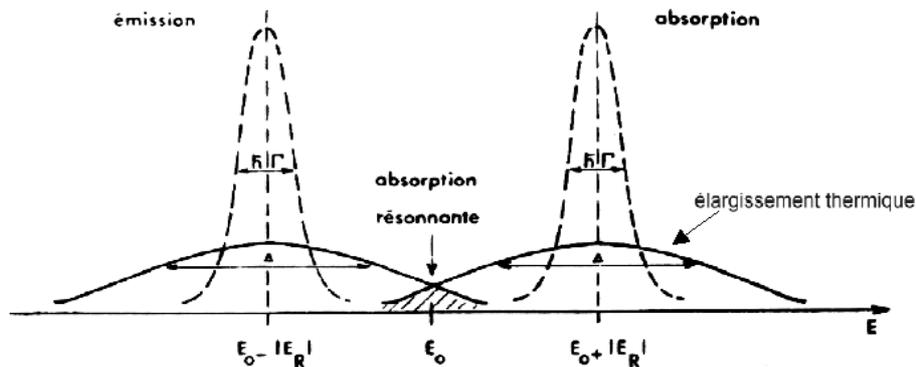


Figure IV. 3. Recouvrement des spectres d'absorption et d'émission par l'élargissement thermique.

Pour avoir la résonance, il faut moduler l'énergie du rayonnement γ . Cette modulation se fait en utilisant l'effet Doppler. La variation en énergie du rayonnement γ apporté par l'effet Doppler est de :

$$\Delta E = \frac{v}{c} E_0 \cos(\theta) \quad (\text{IV.2})$$

Où :

v : la vitesse relative de la source.

θ : l'angle entre la direction du mouvement de la source la direction de l'émission du rayonnement γ (dans la pratique la valeur de θ est de 0 ou de $\pi/2$) [57].

Les valeurs de v utilisées dans le cas du fer et des alliages à base de fer ne dépassent généralement pas la valeur de ± 10 mm/s.

Dans un cristal, une fraction des noyaux peut émettre ou absorber des photons sans effet de recul. Cette fraction est donnée par la formule de Debye :

$$f = \exp[-2W(T)] \quad (\text{IV.3})$$

$W(T)$ est appelé facteur de Debye–Waller, il est défini par :

$$2W(T) = \frac{4\pi \langle x^2 \rangle}{\lambda^2} \quad (\text{IV.4})$$

Où : $\langle x^2 \rangle$: valeur quadratique moyenne du déplacement du noyau autour de sa position d'équilibre dans la direction de propagation du rayonnement, λ : longueur d'onde du rayonnement.

Pour observer ce phénomène de résonance, il faut donc utiliser des éléments qui présentent une fraction de noyaux Mössbauer élevée. Pour l'application à la spectrométrie Mössbauer, les éléments les plus utilisés sont l'isotope du Fer (⁵⁷Fe) et celui de l'étain (¹¹⁹Sn).

IV. A. 2. L'influence de l'environnement sur les niveaux nucléaires

Dans les corps solides, il existe des champs électriques et magnétiques, créés par l'environnement électronique, qui perturbent les niveaux d'énergie nucléaires. Ces perturbations sont appelées interactions hyperfines. On compte trois types d'interactions :

- L'interaction monopolaire électrique
- L'interaction quadripolaire électrique
- L'interaction magnétique Zeeman

IV. A. 2. 1. Interaction monopolaire électrique (effet de taille)

Cette contribution fait intervenir la taille du noyau dû à l'interaction électrostatique entre les protons du noyau et les électrons "s" atomiques qui ont une probabilité de présence non nulle dans le volume nucléaire [9]. Le rayon quadratique moyen du noyau est défini par la relation suivante :

$$\langle R_N^2 \rangle = \frac{1}{Ze} \int r^2 \rho_N(r) d\tau \quad (\text{IV.5})$$

Où : $\rho_N(r)$ est la densité de charges nucléaire au point défini par le rayon vecteur r ;

(Ze) : la charge du noyau.

Lors d'une transition nucléaire, il se produit un changement du rayon quadratique moyen du noyau. Ce qui va induire un échange d'énergie avec le milieu extérieur [59]. Cette variation d'énergie se traduit par un déplacement d'ensemble des niveaux nucléaires appelé déplacement isomérique, S.I, « Isomeric Shift (I.S) en Anglais ».

$$(I.S) = \frac{1}{6 \epsilon_0} Z e^2 |\Psi_s(0)|^2 (\langle R_e^2 \rangle - \langle R_f^2 \rangle) \quad (\text{IV.6})$$

Avec : Ze la charge nucléaire ;

$\Psi(0)$: La fonction d'onde électronique au site nucléaire ;

$\langle R_e \rangle^2$ et $\langle R_f \rangle^2$: Les rayons quadratiques moyens de la distribution de charge nucléaire dans l'état excité et l'état fondamental [9].

La valeur de S.I sera donnée par rapport au centre d'un spectre standard, dans notre cas c'est le spectre du fer métallique alpha à température ambiante, pris comme zéro de l'échelle des vitesses. Cette grandeur fournit des renseignements chimiques tels que l'état d'oxydation, la coordinence, l'état de spin et la nature de la liaison [58].

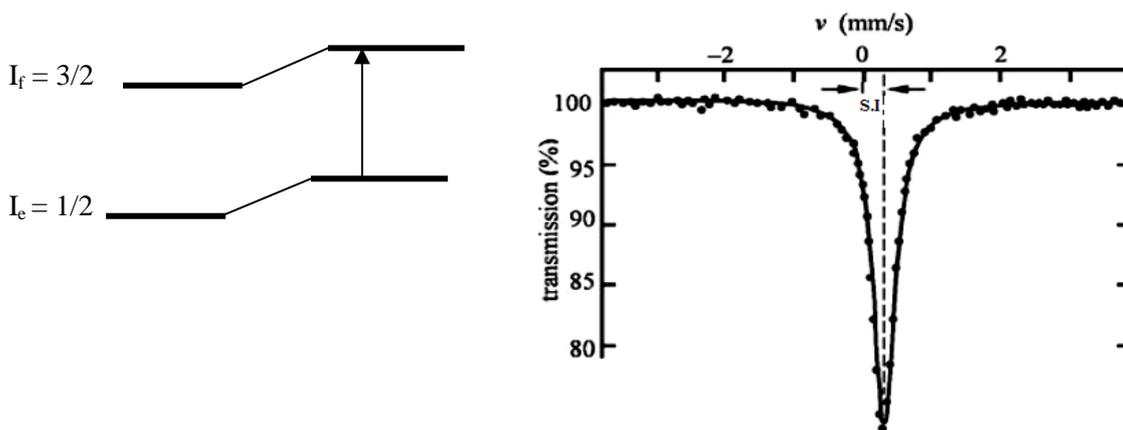


Figure IV. 4. Déplacement isomérique.

IV. A. 2. 2. Interaction quadripolaire électrique

L'effet quadripolaire ou l'effet de forme est induit par la distribution de charge nucléaire non-sphérique créée par les électrons de valence et/ou par les charges ioniques environnantes. Ceci produit une interaction entre le moment quadripolaire du noyau dans l'état considéré et le gradient de champ électrique (GCE) dû aux charges extérieures au noyau. Dans le cas du ⁵⁷Fe, le niveau fondamental (I=1/2) reste dégénéré alors que la dégénérescence du niveau excité (I=3/2) est partiellement levée, donnant deux niveaux séparés m_I= ±1/2 et m_I= ±3/2 (figure IV. 5). On observe alors deux transitions séparées par un écart énergétique, appelé séparation quadripolaire dont la valeur est donnée par la formule suivante [9,58]:

$$\Delta E_Q = \frac{eQV_{zz}}{2} \quad (\text{IV.7})$$

Où :

Q : moment quadripolaire électrique ;

e: la charge de l'électron ;

V_{zz} : composante du tenseur du gradient de champ électrique suivant l'axe principal oz.

Cette séparation renseigne sur la symétrie de l'environnement ainsi que la structure locale au voisinage de l'atome absorbant.

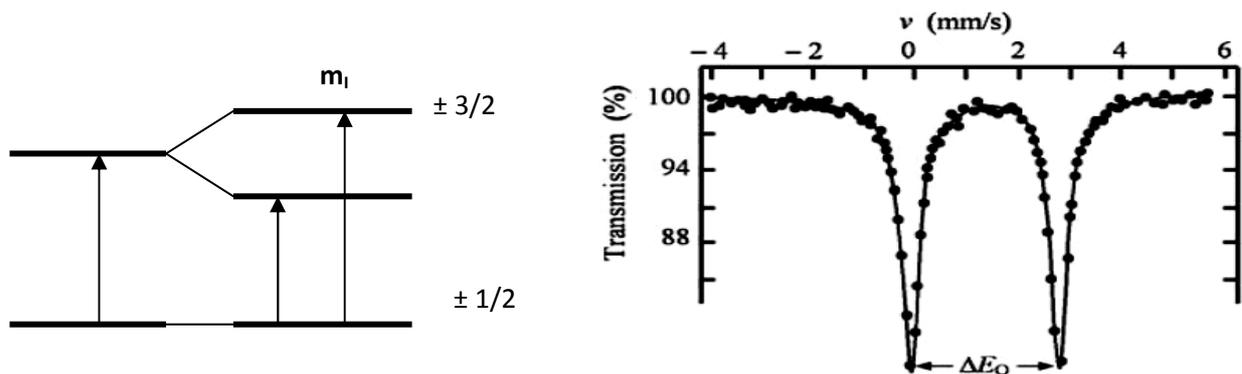


Figure IV. 5. Interaction quadripolaire pour le ⁵⁷Fe

IV. A. 2. 3. L'interaction magnétique Zeeman

Un noyau atomique possède un moment magnétique noté μ, pour un état de spin nucléaire I

on a : $\mu = g\mu_N I$

Avec : μ_N le magnéton nucléaire et g le rapport gyromagnétique.

En présence d'un champ magnétique extérieur ou d'origine atomique, il se crée une interaction entre le moment magnétique nucléaire et ce champ magnétique. Cette interaction lève la dégénérescence de chaque niveau nucléaire I. Chaque niveau se scinde en 2I+1 sous niveaux équidistants de ΔE_m .

$$\Delta E_m = -g_n \mu_B H_{\text{eff}} \cdot m_I \quad (\text{IV.8})$$

Où :

m_I : le nombre quantique magnétique

H_{eff} : le champ magnétique effectif au noyau qui résulte de plusieurs contributions

Pour le fer, la transition entre l'état fondamental (I_f) et excité (I_e) de spin nucléaire respectif 1/2 et 3/2 est susceptible d'induire 6 transitions (figure IV. 6). Ces transitions sont permises par les règles de sélection de $\Delta I = \pm 1$ et $\Delta m = \pm 1, 0$, ce qui va donner lieu à un sextuplet. Le champ magnétique hyperfin est proportionnel à l'écart entre les raies extrêmes. Ce paramètre donne des informations sur l'ordre magnétique et les structures des systèmes magnétiquement ordonnés, surtout elle peut aussi analyser et étudier les changements de phases [58].

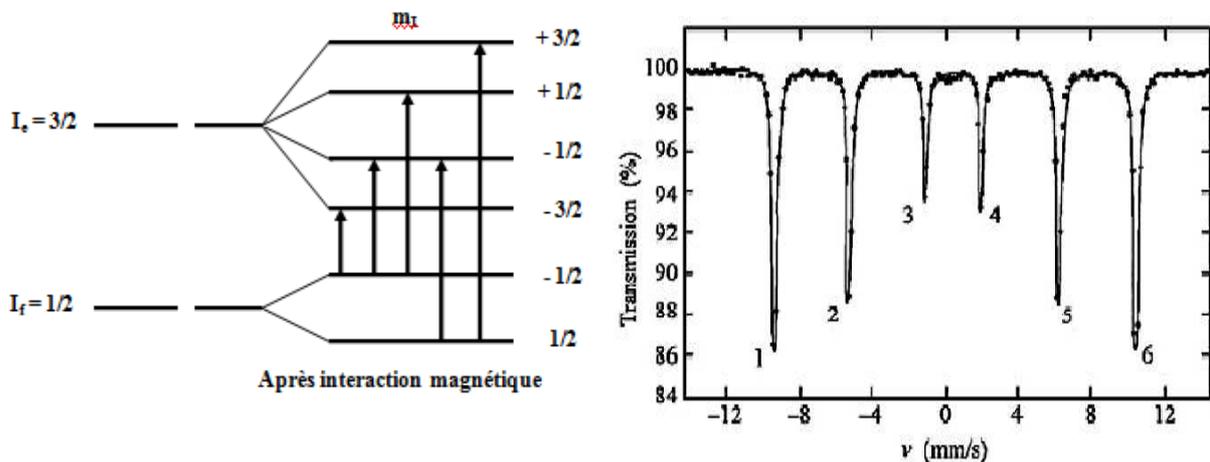


Figure IV. 6. Interaction magnétique dans le ⁵⁷Fe et le spectre Mössbauer correspondant.

IV. B. Aspect expérimental de la spectroscopie Mössbauer

Lors de ce travail de mémoire, nous avons utilisé un spectromètre Mössbauer de type WISSEL fonctionnant en mode transmission. Ce dernier est constitué d'une source radioactive, d'un porte-échantillon, d'un détecteur proportionnel à gaz, d'une chaîne

électronique de commande et d'un micro-ordinateur équipé d'une carte pour l'acquisition des spectres.

En premier lieu et avant de commencer les mesures, nous avons eu l'opportunité d'effectuer un changement du système d'entraînement du spectromètre (unité d'entraînement et transducteur) ainsi que de la source ^{57}Co (25 mCi d'activité) (le changement de source se fait tout les trois à quatre ans). Afin de minimiser l'exposition dangereuse aux rayons γ , nous avons choisis de commencer par le changement du système d'entraînement. Ainsi, nous avons procédé à l'emplacement de la nouvelle unité d'entraînement de type MR 360 de marque WISSEL et le transducteur de type MA 260-S (voir figure IV. 7).



Figure IV.7. a) Unité d'entraînement de type MR 360, b) transducteur de type MA 260-S.

Une fois le nouveau système d'entraînement installé, il est nécessaire de passer par une étape de calibration de l'unité MR 360. Celle-ci consiste à établir la relation entre la vitesse de la source et l'amplitude du signal visualisée sur oscilloscope et mesurée en mV. En prenant comme facteur de calibration la valeur indiquée par le constructeur (Wissel) qui est de 30mm/s par Volt, et pour avoir une vitesse de 10 mm/s, l'amplitude du signal mesuré est ainsi égale à 860 mV. Une fois l'étape de calibration du MR 360 terminée, nous avons procédé à l'emplacement de la nouvelle source ^{57}Co (30.3 mCi, 1.12 GBq). Pour cette source, l'efficacité d'émission des photons 14.4 keV est de 86%. Le schéma de désintégration du ^{57}Co est représenté sur la figure IV. 8.

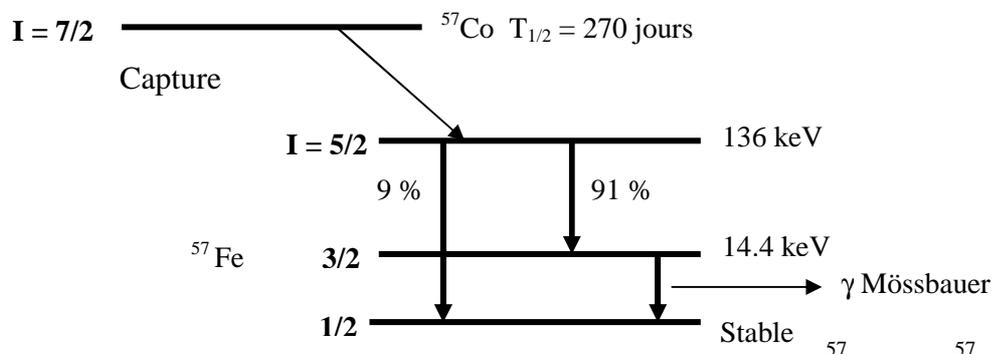


Figure IV. 8. Schéma de désintégration nucléaire de l'isotope instable ^{57}Co vers ^{57}Fe délivrant la raie γ Mössbauer 14,4 keV

Comme nous l'avons déjà indiqué, le spectromètre Mössbauer est également constitué des éléments suivants :

- **Le porte échantillon:** le porte échantillon utilisé est de forme cylindrique, il possède un orifice de même diamètre que la fenêtre du détecteur. Il est muni de deux supports réglables permettant de le positionner sur une plaque coulissante pour ajuster la distance entre la source et le détecteur d'une part et d'autre part de centrer en hauteur l'échantillon avec la source et la fenêtre du détecteur (voir figure IV. 9).

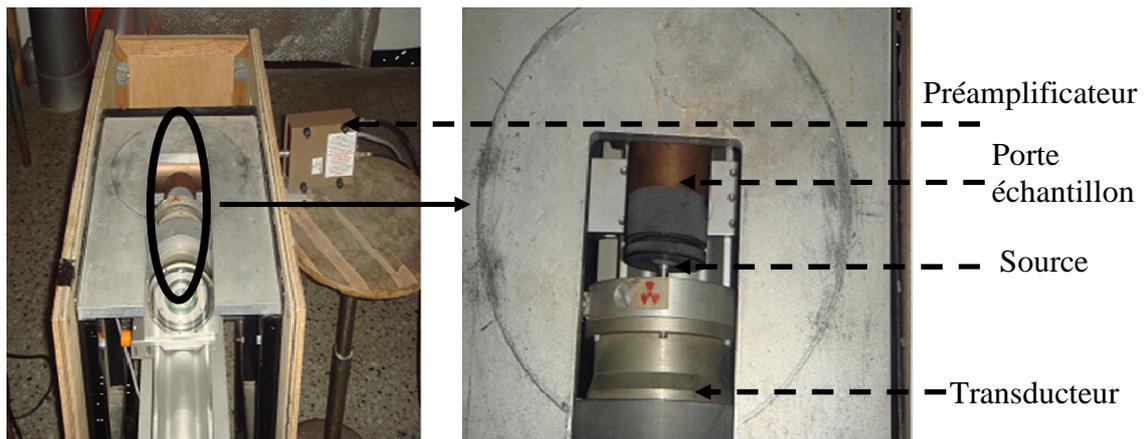


Figure IV. 9. Photographie du transducteur, du porte échantillon et détecteur polarisé par le biais du préamplificateur.

- **Le détecteur:** le détecteur utilisé est de type proportionnel scellé rempli du gaz Kr-CO_2 . Son principe de fonctionnement est basé sur l'ionisation des molécules de gaz placées dans un champ électrique. Il est également muni d'une fenêtre de détection en Béryllium de $7 \mu\text{m}$ d'épaisseur permettant la récolte du signal. Ce détecteur est relié à un préamplificateur et à un amplificateur.
- **Un préamplificateur:** de type Ortec 142 PC, par le biais duquel le détecteur est polarisé. Il sert également à protéger le détecteur en cas de chocs.
- **Chaîne électronique:** elle est constituée d'un rac d'alimentation NIM (Nuclear Instrumental Measurements), comprenant trois modules électroniques:
 - Un générateur de tension positive de type Ortec, qui sert à alimenter le détecteur (à travers le préamplificateur);
 - Un amplificateur de type Canberra 2021 qui amplifie le signal de sortie du détecteur et le transmet vers l'entrée de la carte d'acquisition incorporée dans le micro-ordinateur ;

- Un générateur de fonction digitale de type Wissel DFG 1000, qui génère un signal triangulaire (mouvement à accélération constante) ou encore sinusoïdale qui sera imposé à la source.
- **Système d'acquisition** : constitué d'un microordinateur au sein duquel est incorporée une carte de type CMCA 550. Cette carte possède deux modes d'acquisition : mode PHA (Pulse High Analysis) qui permet de visualiser le spectre de la source ⁵⁷Co et le mode MCS (window) (MCS : Multichannel Scaling) qui permet la collecte du spectre Mössbauer.

IV. B. 1. Montage expérimentale

Les différents constituants du spectromètre Mössbauer sont assemblés selon le schéma ci-après (figure IV. 10).

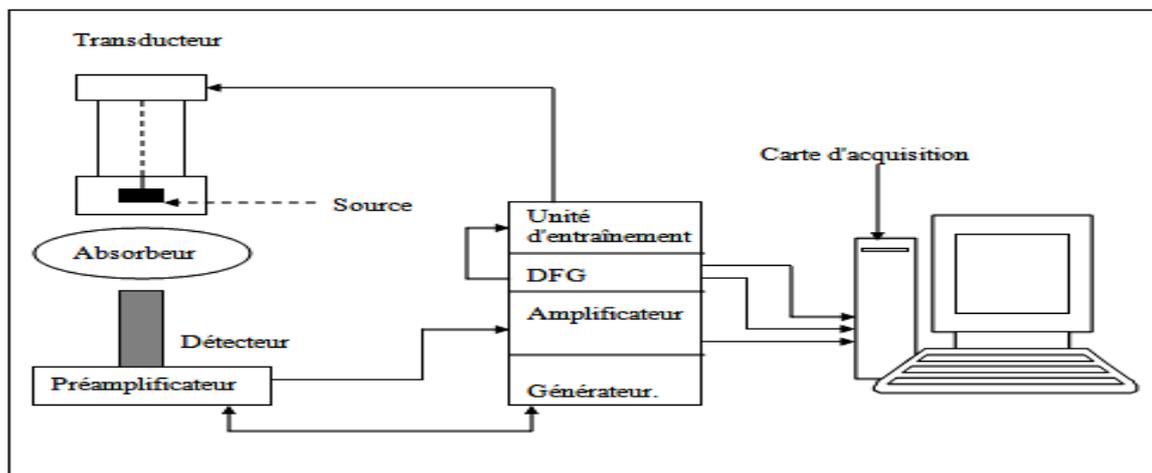


Figure IV. 10. Représentation schématique du montage de la spectroscopie Mössbauer

IV. B. 2. L'acquisition des spectres Mössbauer

Avant l'acquisition des spectres Mössbauer il faut d'abord sélectionner la raie Mössbauer et procéder à la calibration du spectromètre.

IV. B. 2. 1. Sélection de la raie Mössbauer

La sélection de la raie Mössbauer passe par les étapes suivantes:

- Polariser le détecteur par le biais du préamplificateur à une tension de -1700 V,
- Passer en mode PHA (Pulse High Analysis) sur la carte d'acquisition,

- Visualiser les raies d'émission correspondantes aux différentes transitions de la source ⁵⁷Co à savoir : l'émission X (6.3 KeV et 7.1 KeV), la raie Mössbauer (14.4 KeV) et la raie 123 KeV.
- Délimiter la région qui contient la raie Mössbauer de 14.4 keV.

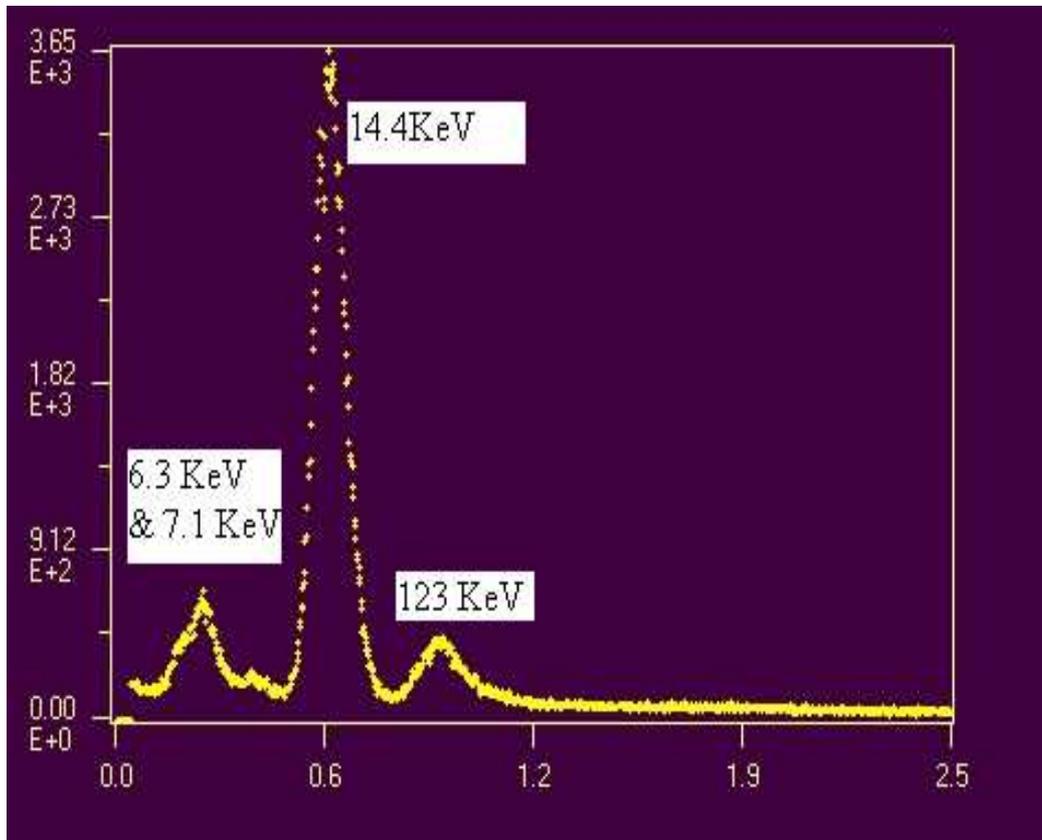


Figure IV. 11. Spectre de la source de ⁵⁷Co.

IV. B. 2. 2. Calibration du spectromètre

La calibration consiste à attribuer à chaque canal une valeur de la vitesse qui lui correspond. Dans notre cas l'étalonnage se fait en utilisant un standard de fer de haute pureté se présentant sous forme d'une feuille de 12.5 μm d'épaisseur. Afin de récolter le spectre Mössbauer du standard de fer, nous devons passer en mode MCS Window et faire une acquisition sur un nombre de canaux égale à 1024. Le spectre obtenu contient deux sextets correspondant chacun au mouvement de la source entre deux vitesses de $-V_{\text{max}}$ et $+V_{\text{max}}$ (signal triangulaire). Pour vérifier la linéarité du mouvement de la source, nous avons utilisé un logiciel dit MOSMOD [60]. Ce dernier permet de superposer le spectre expérimental sur le théorique et

de vérifier que les valeurs des deux pentes (positive et négative) du mouvement de la source sont identiques (figure IV.12).

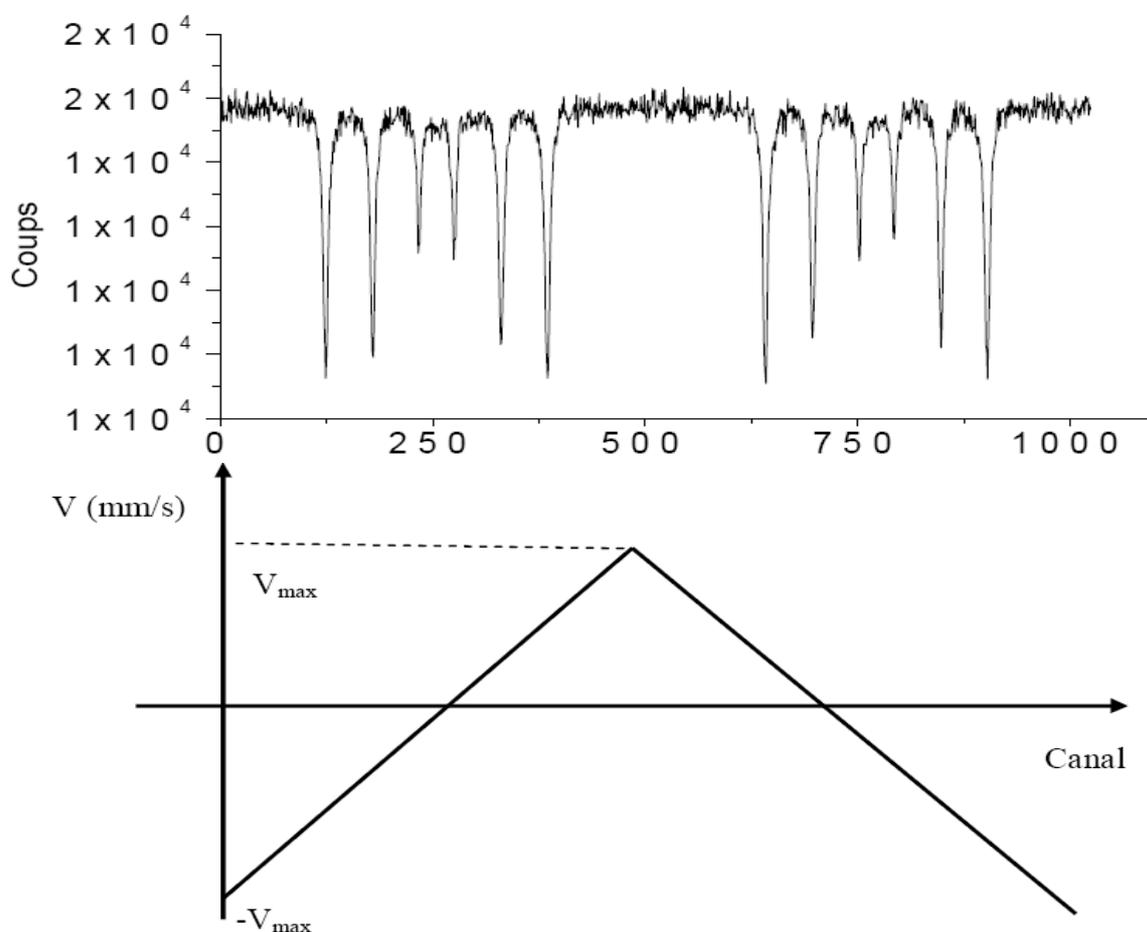


Figure IV. 12. Spectre expérimental du standard de Fe calibré montrant le mouvement à vitesse triangulaire (accélération constante).

IV. B. 3. Préparation des échantillons pour les expériences M

Afin de pouvoir effectuer l'analyse des échantillons par spectroscopie Mössbauer nous devons préparer un échantillon assez mince à partir des poudres élaborées. Nous avons collé une feuille d'Aluminium sur un support en duralumin possédant un orifice de 1 cm de diamètre (égale à la fenêtre du détecteur). Par la suite, nous avons pesé, à l'aide d'une micro balance à quartz, une masse de 30 mg de poudre et nous l'avons déposé dans le support. Ensuite, nous avons rajouté, à la quantité de poudre, du sucre et du benzène et le tout est remué doucement jusqu'à l'obtention d'une pâte répartie sur toute la surface du support. A noter que cette préparation se fait sous hôte ou avec le port d'un masque pour éviter l'inhalation du benzène en raison de sa toxicité.

IV. B. 4. Traitement des spectres Mössbauer

L'ajustement des spectres Mössbauer se fait à l'aide du logiciel Recoil [61]. Dans un premier temps nous avons commencé par plier le spectre par rapport au canal du milieu, à fin d'obtenir un seul sextet. Cette étape se fait en prenant comme référence le spectre du standard de fer calibré. L'opération de pliage (fold en anglais) permet d'éliminer d'une part la distorsion de la ligne de base causée par la variation de la distance source-détecteur au cours du mouvement et d'autre part d'augmenter la statistique de comptage des spectres.

Le logiciel Recoil contient plusieurs modèles d'analyse. Dans notre cas nous avons utilisé la méthode dite VBF (Voigt-based fitting). Celle-ci permet d'avoir les valeurs moyennes des paramètres hyperfins ainsi que leurs distributions. La méthode VBF offre la possibilité de choisir des sites indépendants (distribution discrète) ou un site contenant plusieurs composantes (distribution continue). Dans notre cas, nous avons utilisé une distribution continue du champ hyperfin.

IV. B. 5. Résultats et discussions

L'analyse par spectroscopie Mössbauer à température ambiante a été réalisée pour tous les échantillons Fe₈₀Ni₂₀. Les spectres Mössbauer obtenus ainsi que leur distribution du champ hyperfin pour les différents temps de broyage sont présentés sur la figure IV. 13. Les résultats obtenus pour l'ensemble de nos échantillons sont résumés dans le tableau IV. 1.

Nous avons observé que pour l'échantillon de poudre non broyée (0 h), le spectre obtenu est un sextuplet identique à celui de standard de fer alpha. L'ajustement de ce spectre a été effectué avec une composante ayant une valeur moyenne du champ hyperfin, $\langle H_{hf} \rangle$, égale à 32.95 T.

A partir 3 h de broyage, nous avons remarqué que tout les spectres Mössbauer se présentent sous forme d'un sextuplet et d'une raie centrale. Nous avons également noté un changement de la forme des spectres qui est fortement indiqué par l'élargissement des raies. Ce comportement est propre aux alliages ferromagnétiques désordonnés [33, 62]. La raie centrale a été ajustée à l'aide d'un doublet dont l'intensité relative varie entre 1.06 % et 1.88% pour les différents temps de broyage. Nous pensons que ce doublet est dû à la présence de l'oxyde FeO. Il est important de noter que le même doublet a été aussi observé par d'autres auteurs, en l'occurrence, Valderruten et al. [63] en utilisant un broyeur planétaire « Pulverisette 5 » et aussi Lima et al. [64] en utilisant une méthode chimique pour la synthèse des poudres de FeNi nanostructurées. Ces deux auteurs ont attribué ce doublet à la phase paramagnétique FeO. Par

ailleurs, nous pensons aussi que l'origine de cette oxydation de la poudre Fe₈₀Ni₂₀ provient de la bouteille d'Ar que nous avons utilisé pour la préparation et la récupération de la poudre avant et après broyage.

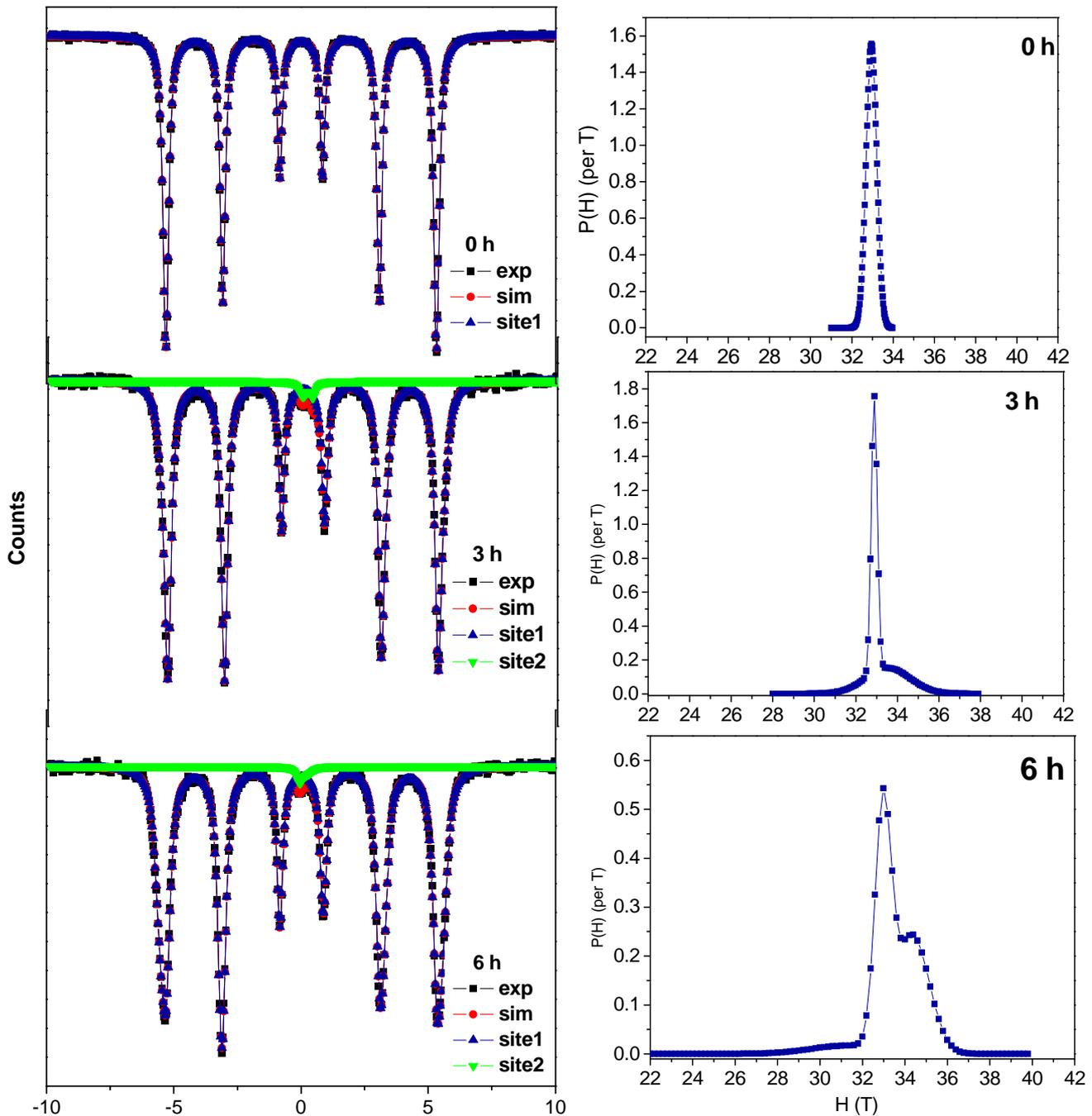
Pour l'échantillon broyé à 3 h, l'ajustement du spectre Mössbauer a été fait en considérant un site ayant deux composantes: la première possédant un champ hyperfin moyen, $\langle H_{hf} \rangle$, de 32.90 T (intensité 59.04 %) est caractéristique du fer non allié (encore présent dans l'échantillon). La deuxième composante avec un $\langle H_{hf} \rangle$ égal à 33.55 T (intensité 40.96 %) est attribuée à la formation la solution solide Fe(Ni) cubique centré (cc) avec une composition Fe₈₀Ni₂₀ comme ça était démontré par Hamzaoui et al. [17] dans le cas des poudres Fe₈₀Ni₂₀ broyé à durée de 36 h en utilisant un broyeur PM 400.

A 6 h de broyage, l'ajustement du spectre Mössbauer a permis de constater une augmentation de l'intensité de la composante caractéristique du Fe₈₀Ni₂₀ et la diminution de la composante du fer. En effet la composante caractéristique de la phase ferromagnétique Fe₈₀Ni₂₀, ayant une valeur du champ hyperfin moyen de 33.72 T, est dominante avec une intensité de 83.05 % par rapport à celle du fer ayant un champ hyperfin moyen de 32.96 T et une intensité de 16.96%. Ces résultats qui mettent en évidence le début de formation, à partir de 6 h de broyage, de la solution solide, sont en accord avec ceux préalablement obtenus par la diffraction des rayons X (voir chapitre III). Cependant, grâce à la spectroscopie Mössbauer, nous avons pu quantifier la contribution des deux phases présentes à savoir le Fe et le Fe₈₀Ni₂₀.

Pour les temps de broyage de 10 h, 17 h et 25 h, l'ajustement des spectres a été fait en considérant toujours un sextet ayant deux composantes. La première composante avec $\langle H_{hf} \rangle$ de 34.10, 34.17 et 34.24 T pour les temps de broyage respectifs de 10, 17 et 25 h, a été attribuée à la solution solide Fe₈₀Ni₂₀. La deuxième composante possédant un $\langle H_{hf} \rangle$ de 31.20, 31.69 et 31.90 T pour les temps de 10, 17 et 25 h respectivement, est caractéristique des joints de grains [30, 35].

Il est important de signaler que les valeurs du champ hyperfin, obtenus dans ce travail pour le composé Fe₈₀Ni₂₀, sont proches de celles trouvées par d'autres auteurs. On peut citer, notamment, les travaux de R. Hamzaoui et al. [35] qui ont obtenu un $\langle H_{hf} \rangle$ de 34.0 T après 36 h de broyage en utilisant un vario-broyeur P 4, A. Guittoum et al. [30] qui ont trouvé une valeur de $\langle H_{hf} \rangle$ égale à 34.32 T après 48 h de broyage en utilisant un broyeur PM400. De plus, on peut citer, à titre de comparaison, que M. Peřkala et al. [32] ont trouvé un champ de

33.9 T en utilisant un broyeur planétaire Fritsch et une vitesse de 300 tr/min après 56 h de broyage et R. Hamzaoui et al. [17] ont obtenu un champ magnétique hyperfin de 33.8 T après 96 h de broyage en utilisant le PM 400.



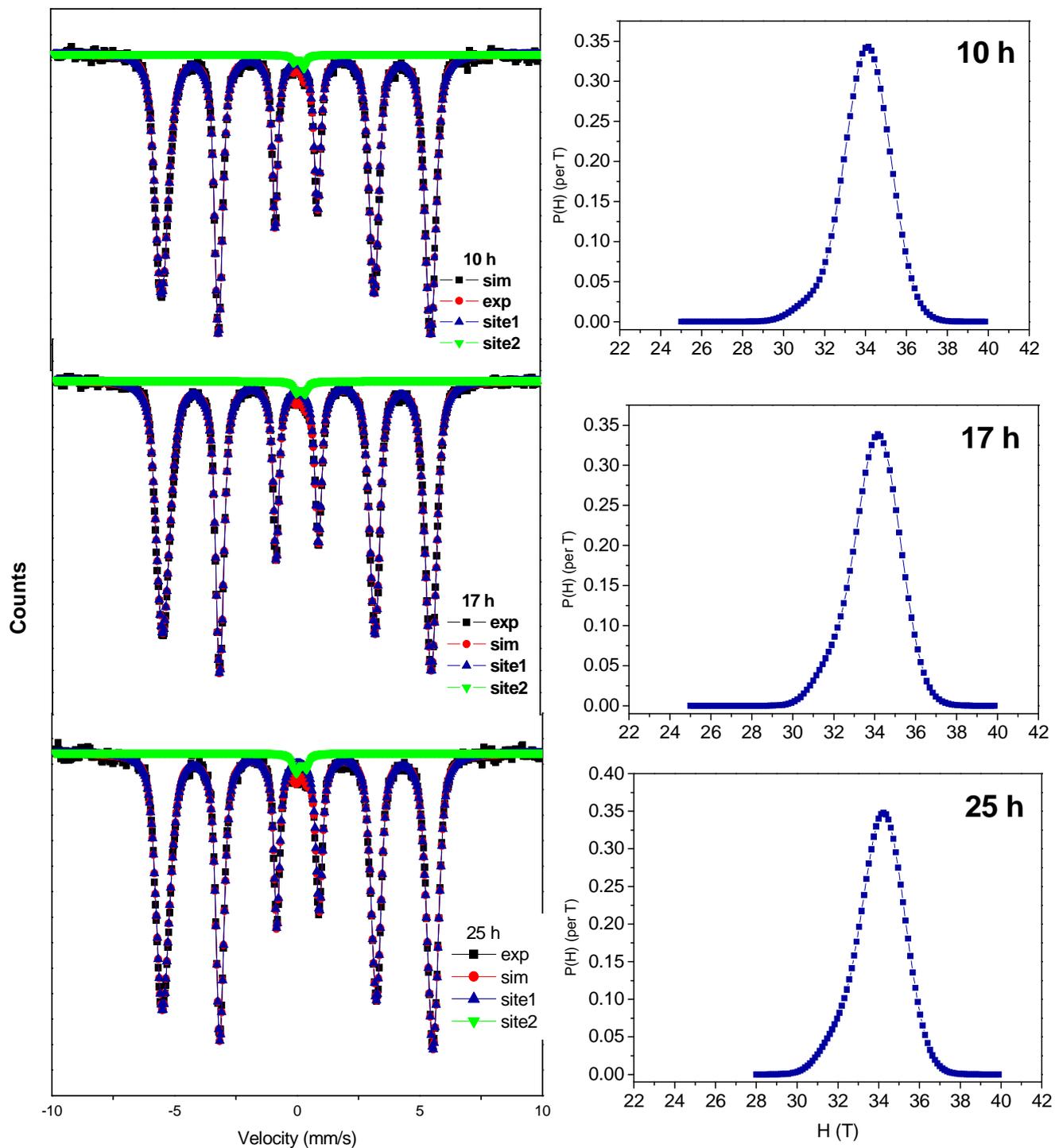


Figure IV. 13. Spectres Mössbauer de l'alliage $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ pour différents temps de broyage et les distributions du champ hyperfin correspondantes.

IV. B. 6. Modèle de l'environnement local

Nous avons appliqué le modèle de l'environnement local (champ additif) pour estimer les proches voisins d'un site de fer. Ce modèle peut être appliqué aux alliages binaires de type Fe-X (X= Ni, Co, ...) [65]. En effet, pour chaque atome de l'élément X qui se substitue à un atome de fer situé dans son voisinage, il se produit un changement du champ magnétique hyperfin par une valeur ΔH_i (le changement ΔH_i est additif). Ainsi, la contribution du premier et second voisin par rapport à un site de fer donné est décrite par la relation suivante:

$$H(m, n) = H(0, 0) + m. \Delta H_1 + n. \Delta H_2. \quad (\text{IV.9})$$

Où:

H (0, 0): champ hyperfin du noyau ⁵⁷Fe entouré uniquement par des atomes Fe ;

m : nombre d'atomes X situés en premier voisin

n : nombre d'atomes X situé en second voisin).

ΔH_1 et ΔH_2 : les changements du champ hyperfin dus aux substitutions des atomes X à la place des atomes de fer dans la première et seconde sphère de coordinence.

D'après la littérature, un atome de Ni augmente le champ magnétique hyperfin d'une valeur de 0.94 T lorsqu'il est situé en premier voisin et de 0.7 T lorsqu'il est en deuxième voisin [34]. La valeur du champ magnétique hyperfin s'écrit alors :

$$H(m, n) = H(0, 0) + m. 0.94 + n. 0.70 \quad (\text{IV.10})$$

En ce basant sur ce modèle nous pouvons dire que pour l'échantillon broyé à 6 h, ayant une valeur du $\langle H_{hf} \rangle$ de 33.72 T, il ya un atome de Ni situé au voisinage immédiat de l'atome de Fer. Pour les temps de broyage de 10 h, 17 h et 25 h, les valeurs de $\langle H_{hf} \rangle$ associées au composé Fe₈₀Ni₂₀ (cc) sont égales à 34.1 T, 34.17 T et 34.24 T respectivement. Ceci nous permet de conclure que pour ces temps de broyage, il existe un ou deux atomes de Ni proches voisins d'un atome de Fe.

Temps de broyage (h)	Composantes	Intensité relative (%)	Déplacement isomérique moyen <CS> mm/s	Eclatement quadupolaire moyen <QS>	Champ hyperfin moyen <Hhf> (T)	Largeur à mihauteur des raies HWHM mm/s
0 h	Site 1	100	/	/	32.95	0.1162
3 h	Site 1 : Sextet	98.12	0.01037	/	32.90	0.1339
	Comp1	59.04				
	Comp2	40.96				
	Site 2: doublet	1.88	0.19283	0.40023	/	
6 h	Site 1: Sextet	98.66	0.02115	/	33.72	0.1441
	Comp1	83.05				
	Comp2	16.95				
	Site 2: doublet	1.34	0.10523	0.31332	/	
10 h	Site 1: Sextet	98.94	0.03389	/	34.10	0.1353
	Comp1	95.88				
	Comp2	4.12				
	Site 2: doublet	1.06	0.13951	0.43365	/	
17 h	Site 1: Sextet	98.79	0.03260	/	34.17	0.1448
	Comp1	92.25				
	Comp2	7.75				
	Site 2: doublet	1.21	0.17785	0.38108	/	
25 h	Site 1: Sextet	98.13	0.03379	/	34.24	0.1401
	Comp1	91.14				
	Comp2	8.96				
	Site 2: doublet	1.87	0.17789	-0.43298	/	

Tableau. IV. 1. Paramètres obtenus par spectroscopie Mössbauer pour différents temps de broyage.

Conclusion

L'étude des propriétés hyperfines des échantillons Fe₈₀Ni₂₀ a été faite par la spectroscopie Mössbauer du ⁵⁷Fe en mode transmission. Cette analyse nous a permis de suivre la formation, à l'échelle local, de la solution solide Fe(Ni) pour les différents temps de broyage. En effet, il a été montré que le début de la formation de l'alliage Fe₈₀Ni₂₀ a commencé à partir de 3 h de broyage. Une formation totale a été mise en évidence à partir de 10 h de broyage. Ces résultats sont conformes à ceux obtenus par la diffraction des rayons X. De plus, cette analyse a permis de mettre en évidence l'existence de la composante joint de gains qui n'a pas pu être détectée par diffraction X.

Conclusion générale

Conclusion générale

Dans ce mémoire de magister, nous avons étudié l'effet de la durée de broyage sur les propriétés structurales, microstructurales et hyperfines des poudres nanostructurées $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$, élaborées par mécanosynthèse.

L'élaboration des poudres nanostructurées $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ a été réalisée avec succès, à l'aide du vario-broyeur planétaire P4, pour différents temps de broyage allant de 3 à 25 h. Les poudres obtenues ont été caractérisées par la diffraction des rayons X (DRX) et la microscopie électronique à balayage (MEB) couplée à l'EDX.

A partir des spectres DRX, nous avons montré que la solution solide $\text{Fe}(\text{Ni})$ 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 microdistorsions augmente jusqu'à la valeur de 0.811 % après 25 h.

L'étude de la morphologie des poudres $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ nous a permis d'observer le changement de la forme ainsi que la taille des particules après le broyage. Il semblerait que pour les longues durées de broyage, le mode utilisé ainsi que les conditions de broyage favorisent l'existence des particules de forme ronde. Les cartographies réalisées par EDX nous ont permis de suivre l'évolution de la formation de l'alliage en fonction du temps de broyage.

L'étude des propriétés hyperfines des échantillons $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ a été faite par la spectroscopie Mössbauer du ^{57}Fe en mode transmission. Cette analyse nous a permis de suivre la formation, à l'échelle local, de la solution solide $\text{Fe}(\text{Ni})$ pour les différents temps de broyage. En effet, il a été montré que le début de la formation de l'alliage $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ a commencé à partir de 3 h de broyage. Une formation totale a été mise en évidence à partir de 10 h de broyage. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par la diffraction des rayons X. Par ailleurs, l'analyse par spectroscopie Mössbauer a permis de mettre en évidence l'existence de la composante joint de gains qui n'a pas pu être révélée par la diffraction X.

Dans nos travaux futurs, nous pensons à effectuer des mesures de cycles d'hystérésis afin de suivre l'évolution de l'aimantation à saturation et du champ coercitif en fonction de la taille

Conclusion générale

des grains. L'effet du recuit sur les propriétés structurales, hyperfines et magnétiques des nanomatériaux $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ serait une bonne continuité à ce travail de recherche.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

- [1] M. Cyrot et J. P. Yonnet, « *Magnétisme I-Fondements* », édition EDP Sciences, 2000.
- [2] C. Kittel, « *Physique de l'état Solide* », 7^{ème} édition, Dunod, Paris, 1998.
- [3] G. Courderchon, « *Alliages magnétiques doux* », Techniques de l'Ingénieur, traité Matériaux métalliques, M 350.
- [4] N. Boukherroub, *mémoire de magister*, Université de Boumerdes, 2010.
- [5] K. Lu, Mater. Sci. Eng. R 16 (1996) 161.
- [6] F. Popa, *thèse de doctorat*, Université Technique de Cluj-Napoca-Université Joseph Fourier, Grenoble, 2008.
- [7] R. Z. Valiev and I. V. Alexandrov, Nanostructured Materials. 12 (1999) 3540.
- [8] R. W. Siegel, « *Characterization of Nanoparticles and Nanophase Materials* », Argonne National Laboratory, 1994.
- [9] A. Guittoum, *thèse de doctorat*, Université du Sétif, 2008.
- [10] J. M. D. Coey, J. Alloys. Compd. 326 (2001) 2.
- [11] D. Givord, « *Matériaux à propriétés spécifique : les Matériaux magnétiques* », Rapport du laboratoire Louis Néel, CNRS de Grenoble 2000.
- [12] Y. Yoshizawa, S. Oguma, K. Yamauchi, J. Appl. Phys 64. (1988) 6044.
- [13] G. Herzer, “*Nanocrystalline soft magnetic alloys*”, in Handbook of magnetic materials, vol. 10, edited by K. H. J. Buschow, 1997.
- [14] M. D. Chermahini, S. Sharafi, H. Shokrollahi , M. Zandrahimi, J. Alloys. Compd. 474 (2009) 18.
- [15] C. Kuhrt, L. Schultz, J. Appl. Phys. 71 (1992) 1896.
- [16] A. H. Taghvaei, A. Ebrahimi, M. Ghaffari, K. Janghorban, J. Magn. Magn. Mater. 322 (2010) 808.
- [17] R. Hamzaoui, O. Elkedim, E. Gaffet, J. M. Greneche, J. Alloys. Compd. 417 (2006) 32.
- [18] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2472.
- [19] A. Jordan, R. Scholz, P. Wust, H. Fähling, R. Felix, J. Magn. Magn. Mat. 201 (1999) 413.
- [20] A. Jordan, R. Scholz, K. Maier-Hauff, M. Johannsen, P. Wust, J. Nadobny, H. Schirra, H. Schmidt, S. Deger, S. Loening, W. Lanksch, R. Felix, J. Magn. Magn. Mat. 225 (2001) 118.
- [21] S. Begin-Colin, F. Wolf, G. Le Caër, J. Phys III. 7 (1997) 473.
- [22] K. Akkouche, *mémoire de magistère*, Université de Boumerdes, 2010.

- [23] C. Suryanarayana, *Progr. Mater. Sci.* 46 (2001) 1.
- [24] S. Lamrani, N. Maddache, *mémoire d'ingénieur*, Université de Tizi Ouzou, 2008.
- [25] Richard J. D. Tilley, “*Understanding solids: the science of materials*”, John Wiley & Sons LTD, 2004.
- [26] G. Béranger, F. Duffaut, J. Moret, J. F. Tiers, « *Les alliages de fer et de nickel* », édition Lavoisier TEC & DOC , 1996.
- [27] A. J. Panas, D. Panas, *High Temperatures-High Pressures.* 38 (2009) 63.
- [28] K. B. Reuter, D. B. Williams and J. I. Goldstein, *Met. Trans.* 20 (1989) 719.
- [29] R. Koohkan, S. Sharafi, H. Shokrollahi and K. Janghorban, *J. Magn. Magn. Mater.* 320(8) (2008) 1089.
- [30] A. Guittoum, A. Layadi, H. Tafat, A. Bourzami, N. Souami, O. Lenoble, *Philos. Mag.* 88(7) (2008) 1085.
- [31] R. Hamzaoui, O. Elkedim, N. Fenineche, E. Gaffet, J. Craven, *Mater. Sci. Eng.* 360 (2003) 299.
- [32] M. Pękala, D. Oleszak, E. Jartych, J. K. Żurawicz, *J. Non-Cryst Solids.* 250 (1999) 757.
- [33] E. Jartych, J. K. Żurawicz, D. Oleszak, M. Pekala, *J. Magn. Magn. Mater.* 208 (2000) 221.
- [34] E. Jartych, *J. Magn. Magn. Mater.* 265 (2003) 176.
- [35] R. Hamzaouia, O. Elkedim, J.M. Grenèche, E. Gaffet, *J. Magn Magn Mater.* 294 (2005) 145.
- [36] L. B. Hong, B. Fultz, *J. Appl. Phys.* 79 (8) (1996) 3946.
- [37] C. Kuhrt, L. Schultz, *J. Appl. Phys.* 73 (4) (1993) 1975.
- [38] Fiche JCPDS N°06-0696, 1997.
- [39] Fiche JCPDS N° 00-004-0850.
- [40] Fiche JCPDS N° 00-037-0474.
- [41] J. L. Lebrun, G. Maeder, *Publs Scient. Tech. ENSAM*, (1981) 51.
- [42] P. Gorria, D. Martinez Blanco, M. J. Perez, J. A. Blanco, R. I. Smith, *J. Magn. Magn. Mater.* 294 (2005) 159.
- [43] S. D. Kaloshkin, V.V. Tcherdyntsev, I. A. Tomilin, Y. V. Baldokhin, E. V. Shelekhov, *Physica B.* 299 (2001) 236.
- [44] Y. V. Baldokhin, V.V. Tcherdyntsev, S.D. Khaloshkin, G. A. Kochetov, Y. A. Pustov, *J.Magn. Magn. Mater.* 203 (1999) 313.
- [45] High Score software for crystallography, Philips analytical, 2002.
- [46] R. Hamzaoui, S. Guessasma, and O. ElKedim, *J. Alloys. Compd.* 462(1-2) (2008) 29.

- [47] P. Scherrer, *Nachr. Ges. Wiss. Göttingen*, 2 (1918) 96.
- [48] D. Martínez-Blanco, P. Gorria, M. J. Pérez, J. A. Blanco, R. I. Smith, *J. Magn. Magn. Mater.* 316 (2007) 328.
- [49] H. Shokrollahi, *Materials and Design* 30 (2009) 3374.
- [50] Y. Rong, Q. Meng, Y. Zhang, T. Y. Hsu, Xu. Zuyao, *Mater. Sci. Eng.* 438 (2006) 414.
- [51] L. Yu. Pustov, V. V. Tcherdyntsev, S. D. Kaloshkin, E. I. Estrin, E. V. Shelekhov, A. I. Laptev, D. V. Gunderov, *Mater Sci and Eng.* 481 (2008) 732.
- [52] C. R. Brundle, C. A. Evans, S. Wilson, “*Encyclopedia of materials characterization*”, 1992.
- [53] S. Djahid, Rapport « *Notions et applications sur le microscope électronique à balayage environnemental ESEM XL 30 FEG* », Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, 2004.
- [54] A. Djekoun, A. Otmani, B. Bouzabata, L. Bechiri, N. Randrianantoandro, J. M. Greneche, *Catalysis Today* 113 (2006) 235.
- [55] R. L. Mössbauer, *Z. Phys.* 151 (1958) 124.
- [56] R. L. Mössbauer, *Naturwissenschaften.* 45 (1958) 538.
- [57] V. V. Ovchinnikov, “*Mössbauer analysis of the Atomic and Magnetic Structure of Alloys*”, Cambridge International Science Publishing, UK, 2006.
- [58] R. Lardé, *thèse de doctorat*, Université du Rouen, 2005.
- [59] C. Janot, « *L'effet Mössbauer et ses applications à la physique du solide et à la métallurgie physique* », édition MASSON & Cie, 1972.
- [60] D. Rancourt, Mosmod software, Physics Department, University of Ottawa 1990.
- [61] K. Lagarek, D. Rancourt, Recoil Software, Physics Department, University of Ottawa, 1998.
- [62] M. Pękala, D. Oleszak, E. Jartych, J. K. Żurawicz, *Nanostruct Mater.* 11(6) (1999) 789.
- [63] J. F. Valderruten, G. A. Pérez Alcázar, J. M. Greneche, *Hyperfine Interactions.* 195 (2010) 219.
- [64] E. Lima Jr, V. Drago, J. C. de Lima, P. Fernando, P. Fichtner, *J. Alloys. Compd.* 396 (2005) 10.
- [65] I. Vincze, L.A. Campbell, *J. Phys. F: Metal Phys.* 3 (1973) 647.

وقد درس المواد النانوية $Fe_{80}Ni_{20}$ نطاق واسع في السنوات الأخيرة بسبب خواصها المغناطيسية ملحوظا. قمنا بتطوير البنية النانومترية من مساحيق $Fe_{80}Ni_{20}$ باستخدام pulverisette فارينو الكواكب مطحنة فريتش P4 ، لطحن مرات تتراوح 3-25 ساعة. تم دراسة الخصائص الهيكلية التي حيود الأشعة السينية (XRD) ، وانها جلبت الى ضوء تشكيل حل الصلبة من 6 ساعات من الطحن ، وتدريب ما مجموعه 10 ساعة من الطحن. وكان الحد الأدنى لحجم الحبوب التي تم الحصول عليها 11 نانومتر لمدة 25 ساعة طحن. تم رصد مورفولوجية مساحيق باستخدام المجهر الإلكتروني الماسح (SEM) ، ورسم خرائط لـ EDX الحديد والنيكل، وأكدت تشكيل $Fe_{80}Ni_{20}$ مجمع من 10 ساعة من الطحن. كشفت مطياف موس باوير تشكيل $Fe_{80}Ni_{20}$ سبيكة من 3 ساعات من طحن مع حقل مغناطيسي فائق الدقة من 33,55 T. من 10 ساعة من الطحن ، واكتشفنا المكون حدود الحبوب مع الحقل المغناطيسي فائق الدقة من 31.17 T ، الذي يزيد من كثافة متزايدة مع مرور الوقت الطحن.

Résumé

Les nanomatériaux $Fe_{80}Ni_{20}$ ont été intensivement étudiés ces dernières années en raison de leurs propriétés magnétiques remarquables. Nous avons élaboré des poudres nanostructurées de $Fe_{80}Ni_{20}$ à l'aide du vario broyeur planétaire pulverisette de fritsch le P4, pour des temps de broyage allant de 3 à 25 h. L'étude des propriétés structurales a été faite par la Diffraction des Rayons X (DRX), elle a mit en évidence la formation de la solution solide à partir de 6 h de broyage, et sa formation total à 10 h de broyage. La taille des grains minimale obtenue était de 11 nm pour 25 h de broyage. La morphologie des poudres a été suivie à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB) et des cartographies par EDX des éléments Fe et Ni, ont confirmé la formation du composé $Fe_{80}Ni_{20}$ à partir de 10 h de broyage. La spectroscopie Mössbauer a mis en évidence la formation de l'alliage $Fe_{80}Ni_{20}$ à partir de 3 h de broyage avec un champ magnétique hyperfin de 33.55 T. A partir de 10 h de broyage, nous avons détecté la composante joints de grains ayant un champ magnétique hyperfin de 31.17 T dont l'intensité augmente avec l'augmentation du temps de broyage.

Abstract

Nanomaterials $Fe_{80}Ni_{20}$ was intensively studied these last years because of their remarkable magnetic properties. We worked about out nanostructured powders $Fe_{80}Ni_{20}$ using the vario planet milling gear pulverisette of fritsch P4, for times of milling from 3 to 25 h. the study of the structural properties was made by use the Diffraction of X-rays (DRX), it A highlighted the formation of the solid solution from 6 h of milling, and its formation total to 10 h of milling. The minimal size of the grains obtained was of 11 Nm for 25 h of milling. The morphology of the powders was followed using an electron microscope to sweeping (MEB) and cartographies by EDX of the elements Fe and Ni, confirmed the formation of composed $Fe_{80}Ni_{20}$ from 10 h of milling. The Mössbauer spectroscopy highlighted the formation of the alloy $Fe_{80}Ni_{20}$ from 3 h of milling with a hyperfine magnetic field of 33.55 T from 10 h of milling; we detected the component grain boundary having a hyperfine magnetic field of 31.17 T whose intensity increases with the increase in the time of milling.