

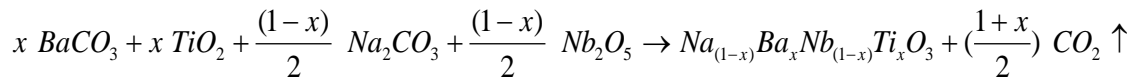
III.1 Introduction

De nombreuses études structurales, chimiques et physiques ont été consacrées aux matériaux ferroélectriques de structure pérovskite de formule ABO_3 ou $(A',A'')(B',B'')O_3$ présentant des octaèdres d'anions. L'existence de la ferroélectricité dans ces composés est liée à l'apparition d'une polarisation spontanée due aux déplacements des atomes en site A et en site B hors du barycentre de l'octaèdre d'oxygène.

Cette étude porte sur le système quaternaire $Ba_{0,90}Na_{0,10}Ti_{0,90}Nb_{0,10}O_3$ (BTNN10/90), le remplacement des cations Ti^{4+} en site B par Nb^{4+} entraîne un abaissement très rapide de la température de Curie ferroélectrique. On s'intéresse de simuler les paramètres et les coefficients des propriétés piézoélectrique de la composé $Ba_{0,90}Na_{0,10}Ti_{0,90}Nb_{0,10}O_3$ (BTNN10/90).

III.2 Elaboration des monocristaux

Les compositions initiales ont été obtenues à partir des produits chimiques $BaCO_3$, TiO_2 , Na_2CO_3 et Nb_2O_5 de haute pureté (>99.9%) par réaction à l'état solide selon l'équation suivante :



$Na_{(1-x)}Ba_xNb_{(1-x)}Ti_xO_3$ ($x=0.10$) (soluté) est mélangé à une quantité de borate de sodium $Na_2B_4O_7$ (solvant) correspondant à un rapport en poids $\frac{\text{soluté}}{\text{solvant}} = \frac{2}{3}$, à température 1400°C et à l'air.

L'observation de cristaux BTNN10/90 à l'aide d'un microscope électronique illustré dans la La figure III.1. La distribution granulométrie est assez resserrée autour d'une taille moyenne de 5 μm environ.

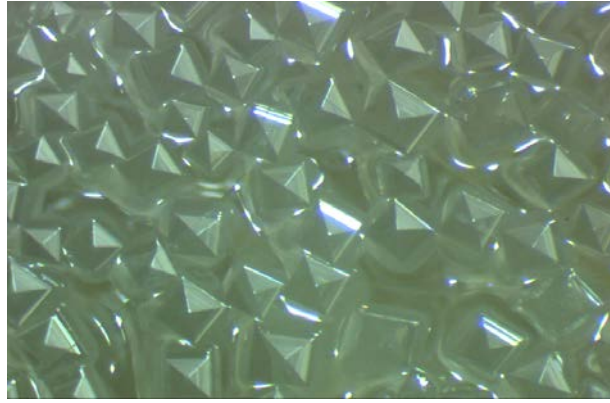


Figure III.1: Photo des cristaux BTNN10/90 en microscope électronique

III.3 Diffraction X

Pour analyser le monocristal en choisissant un bon monocristal de BTNN10/90, pour l'enregistrement des données de diffraction à l'aide d'un diffractomètre automatique Nonius Kappa CCD utilisant la radiation Mo-K α ($\lambda = 0,71073 \text{ \AA}$) et un monochromateur en graphite. Par l'utilisation des programmes SCALEPACK [11] et SHELXLS 97 et SHELXL 97 [1] ont été utilisés respectivement pour la résolution et l'affinement structural. Le cristal de groupe est de P4bm ($a = b = 5,6 \text{ \AA}$, $c = 3,9 \text{ \AA}$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$).

III.4 Mesures diélectriques

III.4-a Mesures de capacité et de facteur de pertes diélectriques

Les mesures ont été réalisées à l'aide d'un impédance mètre HP4194. L'échantillon a été soumis à une chauffe avec un taux de 0,80K/mn suivie d'un refroidissement à 0,50K/mn. La programmation thermique utilise un appareil Eurotherm type 902. Les valeurs de la capacité et du facteur de pertes ont été enregistrées à l'aide d'un PC.

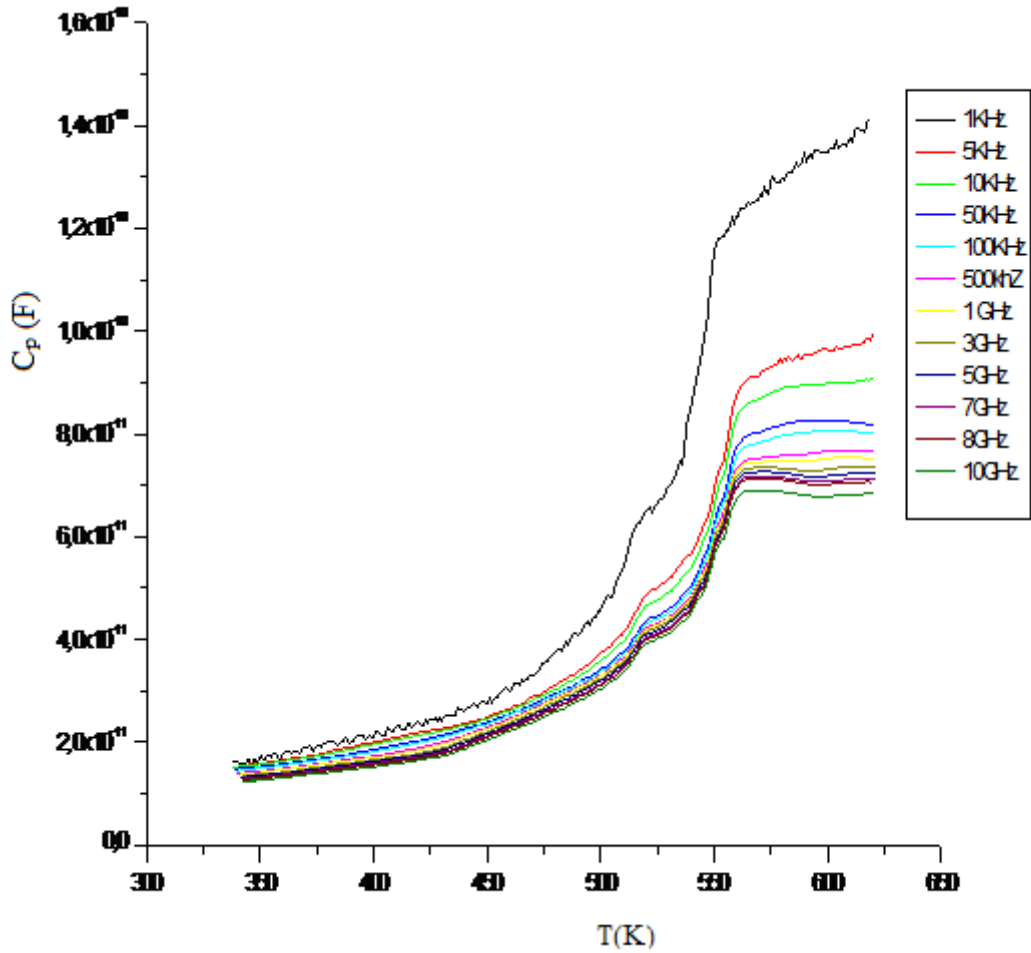


Figure. III. 1 : Cristal BTNN10/90 variation thermique C_p (F)

Les valeurs de la capacité varient entre 350-560 K sont linéaires et au-dessus de 560 sont constantes, sachant que C est diminué quand la fréquence augmente.

Les variations thermiques de ϵ_r en fonction de la fréquence montrent des pertes importantes pour les basses fréquences liées certainement à la conductivité ionique engendrée par la mobilité sodium (figures III.2).

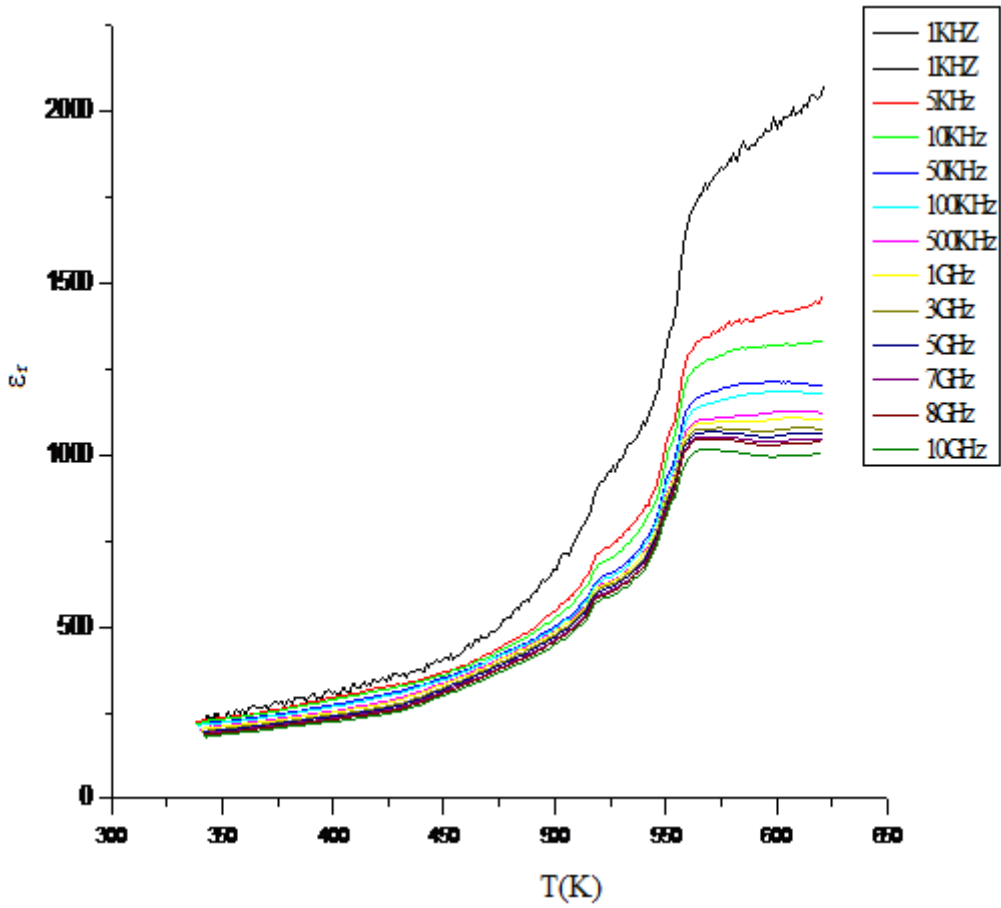


Figure III.2 : Cristal BTNN10/90 variation thermique ϵ_r

La figure.III.3 illustre la variation de $tg\delta$ en fonction de la température pour 1 kHz. On constate que les courbes expérimentales s'identifient à la température du maximum de $tg\delta$.

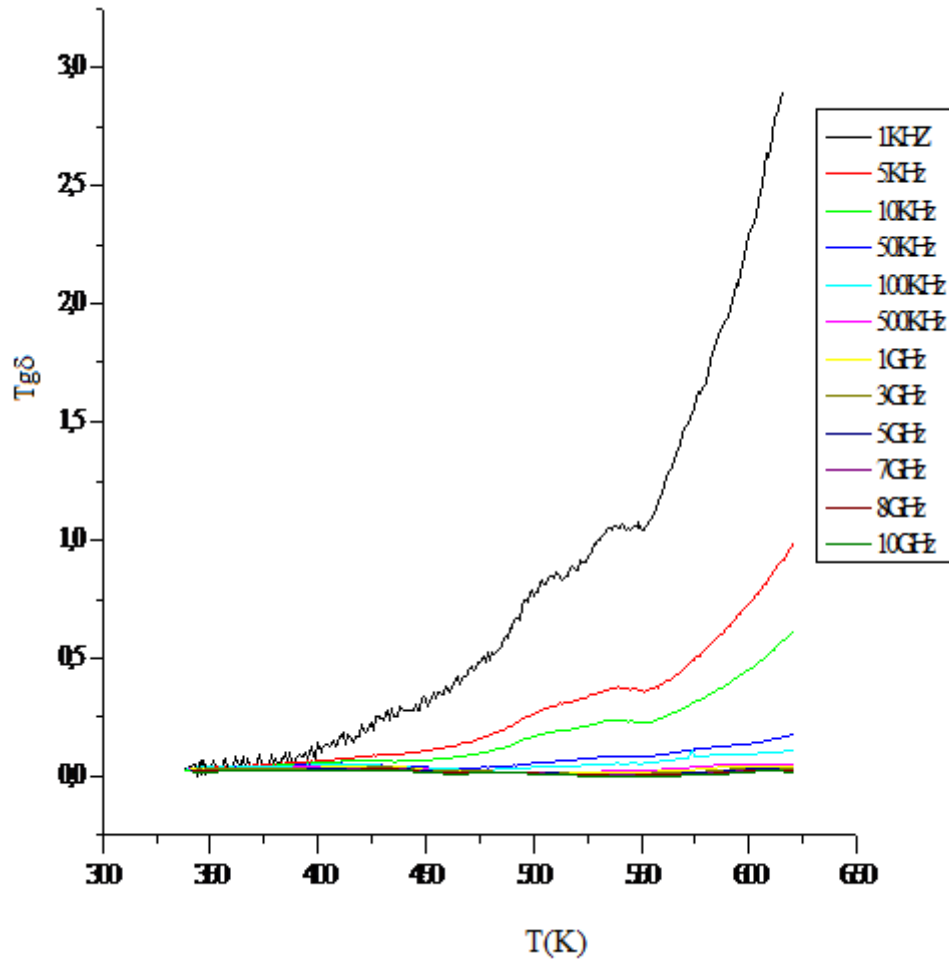


Figure III.3 : Cristal BTNN10/90 variation thermique $tg\delta$

On peut dire que la variation thermique $tg\delta$ diminue quand on augmente la fréquence, c'est-à-dire pour $f=1\text{KHz}$, $tg\delta$ est maximale et vice versa pour $f=10\text{GHz}$, $tg\delta$ est minimale.

III.5 Mesures piézoélectriques

Les mesures de l'effet piézoélectrique ont été réalisées sur des céramiques polarisées avec un pont d'impédance HP4194A. La résonance électromécanique radiale a été enregistrée pour différentes températures. Des calculs quantitatifs selon les standards IEEE ont été effectués pour obtenir les paramètres de l'effet piézoélectrique [2- 9].

Les variations de la susceptance B et de l'admittance G avec la fréquence au voisinage du mode radial fondamental et les cercles d'admittance correspondants sont enregistrés à la température ambiante pour les céramiques de compositions frittées à 1400°C (figures III.4).

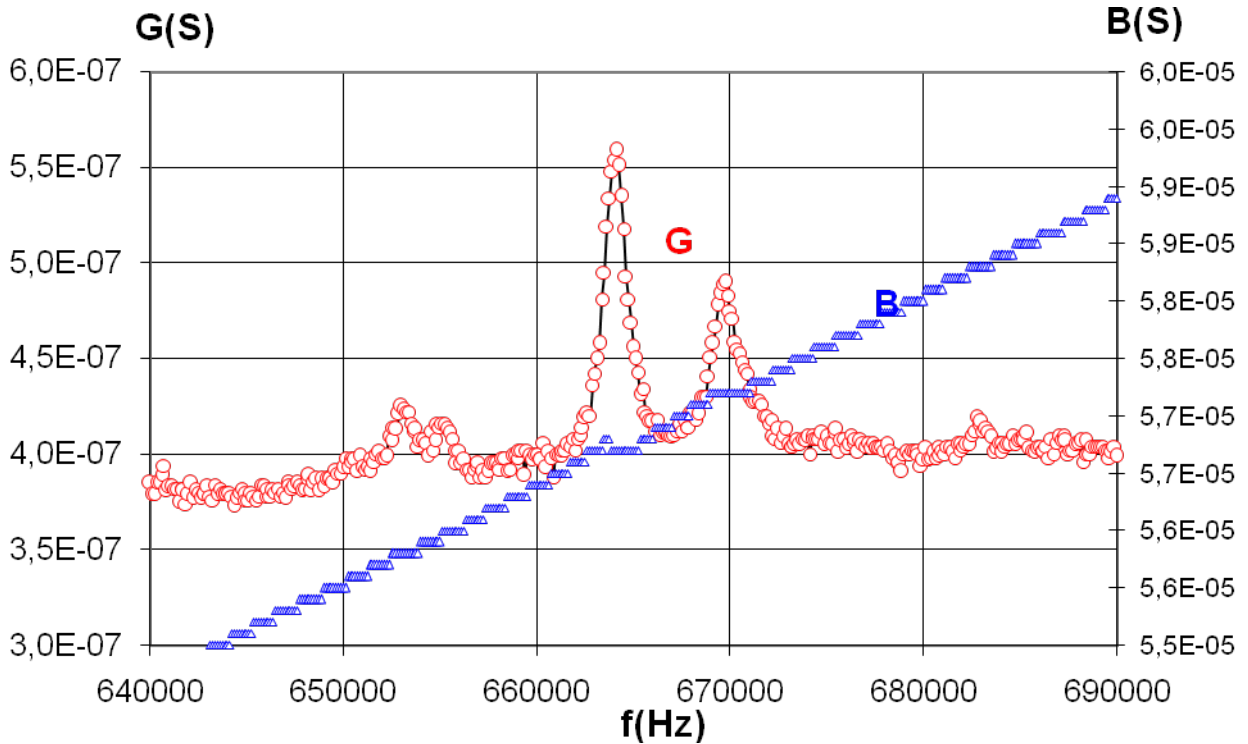


Figure III.4 : Résonances piézoélectriques dans un cristal BTNN10/90 polarisé à 300 K :
(évolution de l'admittance (G) et de la susceptance (B) au voisinage des résonances)

On peut voir qu'on a quatre pics correspondants aux fréquences [(653000, $4,250 \cdot 10^{-7}$), (655125, $4,160 \cdot 10^{-7}$), (664125, $5,590 \cdot 10^{-7}$), (669750, $4,900 \cdot 10^{-7}$)], on considère que la fréquence de résonance à l'amplitude maximale de $G_{max} = 5,590 \cdot 10^{-7}$ est 664125. En réalité pour un bon résonateur il doit avoir uniquement un seul pic, dans notre cas on a négligé les autres pics.

On peut simuler les coefficients piézoélectriques du système $Ba_{0,90}Na_{0,10}Ti_{0,90}Nb_{0,10}O_3$. Dans ce cas, on a représenté les propriétés du monocristal BTNN10/90 à la fréquence de résonance par le tableau II-1.

Symbole	Description de constant	Valeur
ϵ_{33}^T	Permittivité relative	1700
$\tan\delta$	Tangente diélectrique (%)	1.0
k_{31}	Constant électromécanique	0.35
k_{33}	Constant électromécanique	0.69
Y_{11}^E	Module de Young (10^{10} N/m)	8.5
Y_{33}^E	Module de Young (10^{10} N/m)	7
d_{31}	Constant piézoélectrique (10^{-12} m/N)	122
d_{33}	Constant piézoélectrique (10^{-12} m/N)	273
g_{31}	Constant piézoélectrique (10^{-3} Vm/N)	11.3
g_{33}	Constant piézoélectrique (10^{-3} Vm/N)	25.5
Q_m	Constant de qualité mécanique	2000
ρ	Densité (kg/m^3)	4800

Tableau III-1 : Constants du monocristal BTNN1199

III.1 Conclusions

Dans ce troisième chapitre, a été présenté l'ensemble des résultats expérimentaux qui servent de base de simuler les coefficients piézoélectrique de BTNN10/90. Le calcul prend notamment en compte l'influence de la contrainte structurelle BTNN10/90, la température de curie et d'autres paramètres à la fréquence de résonance.

Suivant la procédure mis en œuvre, le mode de calcul peut être utilisé soit comme un moyen de calcul les coefficients piézoélectriques et en même temps d'analyser de phénomènes physiques dont le monocristal BTNN10/90.

Références

- [1] G.M. Sheldrick, SHELXS-97 and SHELXL-97, University of Göttingen, Germany, (1997).
- [2] A. Aydi, « Élaboration et caractérisations diélectriques de céramiques ferroélectriques et/ou relaxeur de formule $MSnO_3 - NaNbO_3$ ($M = Ba, Ca$) », thèse, Université Bordeaux 1. (2005).
- [3] H.Abdelkefi, H. Khemakhem, G. Vélou, J. C. Carru, R. Von der Mühl, J. Alloys and Compounds 399 (2005) 1.
- [4] " IEEE standards on piezoelectric crystals", box A, Lenox hall station NY 10021 NY-USA (1961).
- [5] N. Abdelmoula, H.Khemakhem, R. Von der Mühl, A.Simon, J. Alloys and Compounds 417 (2006) 264.
- [6] N. Abdelmoula, H. Khemakhem, A. Simon, M. Maglione, J. Solid State Chemistry 179 (2006) 4011.
- [7] O. Elkechai. «Céramiques ferroélectrique dans les systèmes $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3 - K_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3, Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3 - PbTiO_3, K_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3 - PbTiO_3$ » thèse, Université de Limoges, (1995).
- [8] A. Aydi, « Élaboration et caractérisations diélectriques de céramiques ferroélectriques et/ou relaxeur de formule $MSnO_3 - NaNbO_3$ ($M = Ba, Ca$) », thèse, Université Bordeaux 1. (2005).
- [9] Von Der Mühl R, Khemakhem H, Ravez J and Simon A Chim Sci Mater 22(1997).