# Table des matières du chapitre III

1- Introduction	52	
2- Synthèse	52	
3- Phases cristallographiques		
4- Évolution de la densité en fonction du pourcentage de dopants		
5- Taille des grains: Analyse par microscopie électronique à balayage (MEB)	57	
6- Evolution des paramètres de maille en fonction du pourcentage de dopants	60	
7- Etude des propriétés diélectriques	61	
7-1- La constante diélectrique ( $\varepsilon_r$ )	61	
7-1-1 Evolution de $\varepsilon_r$ en fonction du pourcentage de dopants	61	
7-1-2- Evolution de $\varepsilon_r$ en fonction de la température	65	
7-2- L'angle des pertes (tg $\delta$ )	66	
7-2-1- Evolution de tg $\delta$ en fonction de la température	66	
7-2-2- Evolution de tg $\delta$ en fonction du pourcentage de dopants	68	
7-3- La résistivité ( $\rho$ ) et la conductibilité ( $\gamma$ ) électrique	69	
7-3-1- Evolution de la résistivité et de la conductibilité en	69	
fonction de la température		
7-3-2- Evolution de la résistivité et de la conductibilité en	71	
fonction du pourcentage de dopants		
8- La rigidité électrique	75	
9- Etude des propriétés piézoélectriques	75	
9-1- Le facteur de couplage électromécanique planaire K <sub>p</sub>	75	
9-1-1- Évolution de $K_P$ en fonction du pourcentage de dopants	75	
9-1-2- Évolution de K <sub>P</sub> en fonction de la température	76	
9-2- Le coefficient piézoélectrique de charge d <sub>31</sub>	77	
9-2-1- Évolution de $d_{31}$ en fonction du pourcentage de dopants	77	
9-2-2- Évolution de d <sub>31</sub> en fonction de la température	78	
9-3- Le coefficient piézoélectrique de tension g <sub>31</sub>	78	
9-3-1- Évolution de $g_{31}$ en fonction du pourcentage de dopants	87	
9-3-2- Évolution de $g_{31}$ en fonction de la température	79	

10- Etude des propriétés mécaniques		
10-1- Le facteur de qualité mécanique Q <sub>m</sub>	80	
10-1-1- Évolution de Q <sub>m</sub> en fonction du pourcentage de dopants	80	
10-1-2- Évolution de Q <sub>m</sub> en fonction de la température	81	
10-2- Le module de Young E	82	
10-2-1- Le module de Young E en fonction du pourcentage de dopants	82	
10-2-2- Le module de Young E en fonction de la température	82	
11- Conclusion	83	
Références bibliographiques	85	

# Chapitre III: l'effet de l'addition de Nd<sup>3+</sup> sur les propriétés diélectriques et piézoélectriques du système Pb[Zr<sub>0.45</sub>Ti<sub>0.45</sub>(Zn<sub>1/3</sub>, Sb<sub>2/3</sub>)<sub>0.1</sub>]O<sub>3</sub>

## **1-Introduction**

L'étude et l'utilisation des céramiques de type PZT sont devenues d'un intérêt majeur parce qu'elles possèdent des propriétés diélectriques importantes. Ces propriétés sont généralement améliorées par l'ajoute d'un ou plusieurs cations qui vont se substituer au  $Pb^{2+}$  en site A et/ou couple ( $Zr^{4+}/Ti^{4+}$ ) en site B de la structure pérovskite [1].

Les propriétés électromécaniques de ces céramiques sont maximales autour de la frontière morphotropique de phase (FMP) séparent les deux phases ferroélectriques : quadratique (T) et rhomboédrique (R) [2-5]. Des études menées ces dernières années ont montré que les dopants conduisent au déplacement de cette frontière. Un changement quelconque par dopage déplace la frontière morphotropique vers la droite ou vers la gauche.

Ce chapitre présente l'influence de l'addition de Nd<sup>3+</sup> sur la microstructure, la densité et les paramètres de maille. Ainsi sur certains coefficients diélectriques ( $\epsilon_r$ , pertes diélectriques) et plusieurs coefficients piézoélectriques ( $K_p$ ,  $Q_m$ ,  $g_{31}$ ,  $d_{31}$ , E) du système Pb[Zr<sub>0.45</sub>Ti<sub>0.45</sub>(Zn<sub>1/3</sub>, Sb<sub>2/3</sub>)<sub>0.1</sub>]O<sub>3</sub>.

# 2- Synthèse

Les céramiques que nous avons choisis pour cette étude ont une formule chimique :  $Pb_{1-Z} Nd_Z [Zr_{0.45}Ti_{0.45}(Zn_{1/3}, Sb_{2/3})_{0.1}]_{1-Z/4} O_3$ . Les compositions étudiées sont résumées dans le tableau III. 1. Toutes les conditions de stabilité de la structure pérovskite sont vérifiées. La synthèse de nos échantillons a été détaillée au chapitre II.

N° de composition	Formule
1	Pb $[Zr_{0.45}Ti_{0.45}(Zn_{1/3}, Sb_{2/3})_{0.1}] O_3$
2	Pb <sub>0.99</sub> Nd <sub>0.01</sub> [ $Zr_{0.45}Ti_{0.45}(Zn_{1/3}, Sb_{2/3})_{0.1}$ ]1-0.01/4 O <sub>3</sub>
3	$Pb_{0.98} Nd_{0.02} [Zr_{0.45}Ti_{0.45}(Zn_{1/3}, Sb_{2/3})_{0.1}]_{1-0.02/4} O_3$

Tableau. III. 1 : Compositions choisies pour notre étude

# **3-** Phases cristallographiques

Les spectres de diffraction typiques d'une structure PZT sont illustrés par la figure III. 1- (a), (b), (c). Nous pourrons comparer par la suite aux spectres de diffractions obtenues des différents mélanges. Nous tiendrons compte dans nos comparaisons, les réflexions notées par **T** sont attribuées à la phase quadratique, celles notées **R** sont attribuées à la phase rhomboédrique. Un triplet de raies (figure III. 1. c) autour de  $2\theta = 22^\circ$  et 45° indique qu'il s'agit d'échantillons d'un mélange de phases quadratique et rhomboédrique (**T+R**) [6].

Il n'est pas toujours facile de la détecter puisque les raies se chevauchent et se présentent sous forme d'une seule raie large. Cela est dû à la différence entre les valeurs des paramètres deux réseaux tétragonale ( $a_T$  et  $c_T$ ) et rhomboédrique ( $a_R$  et  $\alpha_R$ ) de la structure pérovskite, ils sont d'autant plus proches que la différence de composition des deux phases est plus faible.

Les allures des raies de (T+R) peuvent être représentées de plusieurs façons selon la figure III.2. (a), (b), (c) [7].



Figure. III. 1. Spectres de diffraction typiques des phases : tétragonale (T), rhomboédrique (R) et la phase tétragonale-rhomboédrique (T+R)



Figure. III. 2. Les différentes allures des pics caractéristiques de la coexistence de la phase (T+R)

Les résultats des rayons X concernant les trois échantillons frittés à 1180°C sont illustrés sur la figure III. 3. D'après cette figure, les échantillons dopés avec 0.01 et 0.02 d'oxyde  $Nd_2O_3$  présentent une coexistence des deux phases tétragonale et rhomboédrique. Tendis que l'échantillon non dopés en site A présente une structure tétragonale.





Figure. III. 3. Les diagrammes de DRX pour les trois échantillons frittés à 1180°C

# 4- Évolution de la densité en fonction du pourcentage de dopants

La densité du système Pb[Zr<sub>0.45</sub>Ti<sub>0.45</sub>(Zn<sub>1/3</sub>, Sb<sub>2/3</sub>)<sub>0.1</sub>]O<sub>3</sub> dopée avec trois taux de Néodyme différents est donnée sur la figure III. 4. La densité augmente avec l'addition de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et elle fait une pointe à 0.01 puis elle est diminue. Dans les céramiques de type PZT les lacunes d'oxygène sont les espèces mobiles les plus lentes et commandent le taux de densification en ces matériaux. Car le Nd<sup>3+</sup> a un rayon ionique de 1.04 Å qui est relativement prés de celui du Pb<sup>2+</sup> (1.32 Å) ainsi il semble que Nd<sup>3+</sup> va la plus part du temps à l'emplacement de A dans le système pérovskite ABO<sub>3</sub> de la PZT.

La compensation de charge se produira par la création des lacunes dans le site A et peut également se produire par diminution du nombre de lacunes d'oxygène déjà actuelles dans le système PZT dû à l'évaporation de Pb. Ainsi il semble que l'augmentation de l'addition de  $Nd_2O_3$  mène aux diminutions des lacunes d'oxygènes qui augmentent le taux de densification. La diminution de la densité au-dessus de 0.01 peut être attribuée à la raison

pour la quelle  $Nd_2O_3$  avait atteint sa limite de la solubilité solide dans la solution PZT et précipité aux frontières de grain [8].



Figure. III. 4. Évolution de la densité en fonction du pourcentage de dopants

# 5- Taille des grains : Analyse par microscopie électronique à balayage (MEB)

La microscopie électronique à balayage apporte des informations sur la forme et la taille des grains. Cette technique permet d'estimer la distribution granulométrique, la taille moyenne des grains après frittage et évaluer qualitativement la présence de porosité. La figure III. 5, présente les photographies prises par le microscope électronique à balayage (MEB) pour les deux compositions  $Pb[Zr_{0.45}Ti_{0.45}(Zn_{1/3}, Sb_{2/3})_{0.1}]O_3$  et  $Pb_{0.98}$   $Nd_{0.02}[Zr_{0.45}Ti_{0.45}(Zn_{1/3}, Sb_{2/3})_{0.1}]_{1-0.02/4}O_3$ .

La taille moyenne des grains est  $3.98 \ \mu m$  pour un échantillon dopé avec 2% de Nd<sup>+3</sup>. Par contre, pour l'échantillon non dopé la taille moyenne des grains et plus petite (2.43  $\mu m$ ). Dans les PZT dopés en site A et en site B la compensation de charge peut se produire par diminution du nombre de lacunes d'oxygène. Donc l'addition de  $Nd_2O_3$  mène aux diminutions des lacunes d'oxygènes qui entraîne le grossissement des grains pendant le frittage.





Figure. III. 5. Les photographies prises par le microscope électronique à balayage pour les deux compositions : (a)- Pb<sub>0.98</sub> Nd<sub>0.02</sub>[Zr<sub>0.45</sub>Ti<sub>0.45</sub>(Zn<sub>1/3</sub> Sb<sub>2/3</sub>)<sub>0.1</sub>]<sub>1-0.02/4</sub>O<sub>3</sub> (b)- Pb[Zr<sub>0.45</sub>Ti<sub>0.45</sub>(Zn<sub>1/3</sub>, Sb<sub>2/3</sub>)<sub>0.1</sub>]O<sub>3</sub>

# 6- Evolution des paramètres de maille en fonction du pourcentage de dopants

Les paramètres de maille  $a_T$ ,  $c_T$  et le rapport  $c_T/a_T$  de la structure tétragonale ainsi que le paramètre  $a_R$  de la structure rhomboédrique des PZT dopés avec 0.00, 0.01 et 0.02 de Nd<sup>3+</sup> ont été calculés à partir des angles de diffraction (2 $\theta$ ). Nous remarquons d'après l'allure que les paramètres de maille sont très sensibles aux variations du taux de pourcentage de Nd<sup>3+</sup>. Le paramètre  $a_T$  croit jusqu'à 0.01 de Nd<sup>3+</sup> et ensuite diminue, tendis que le paramètre  $c_T$  et le rapport  $c_T/a_T$ \_décroîent avec l'augmentation du taux de Nd<sup>3+</sup> jusqu'à 0.01 et ensuite augmentent. Dans la phase rhomboédrique le paramètre  $a_R$  augmente quand le taux de Nd<sup>3+</sup> augmente.



Figure. III. 6. Evolution des paramètres de maille et du rapport de distorsion en fonction du taux de néodyme

# 7- Etude des propriétés diélectriques

### 7-1- La constante diélectrique ( $\varepsilon_r$ )

Lorsqu'on prend uniquement en considération les propriétés diélectriques, on choisit de préférence un matériau non polarisé, car cela permet d'obtenir une haute résistivité et une faible perte diélectrique.

#### 7-1-1- Evolution de $\varepsilon_r$ en fonction du pourcentage de dopants

Les courbes de la figure III. 7, montrent la variation de la constante diélectrique en fonctions du pourcentage de dopants et de la fréquence de l'ambiante à 400°C.\_On remarque d'après les allures de cette figure que la constante diélectrique augmente avec l'augmentation du pourcentage de Nd<sup>3+</sup>, atteint un maximum pour un échantillon dopé avec 1% de Nd<sup>3+</sup>, c'est à dire au point où la densité est maximale et ensuite elle est diminue. A partir de cette figure aussi, on constate que  $\varepsilon_r$  montre une diminution quand la fréquence augmente.

D'après la figure III. 7. a, il est clair que les courbes des différents échantillons on pratiquement la même forme, elles diffèrent les unes des autres seulement par la position de leur sommet. L'introduction de 1% de Nd<sup>3+</sup>, augmente fortement la valeur de la constante diélectrique jusqu'à 6171.231 à la température de transition 315°C et à la fréquence de mesure 1kHZ. En revanche, l'introduction de 2% de Nd<sup>3+</sup> fait abaisser la valeur de la constante diélectrique à 2248.82 et décale T<sub>c</sub> à 310°C pour la même fréquence de mesure.





Figure. III. 7. La variation de la constante diélecrique en fonctions du pourcentage de dopants et de la température à : a- 1kHZ b- 10kHZ

La variation de la constante diélectrique en fonction du taux de dopages mesuré à  $T= 25^{\circ}C$  est illustrée sur la figure III.8, pour des échantillons polarisés et non polarisés. Il peut voir que cette constante à des valeurs plus élevée après polarisation qu'avant polarisation pour les échantillons dopés avec le Nd<sup>+3</sup> par contre pour l'échantillon non dopé elle est diminuée. L'augmentation de la constante diélectrique après polarisation pour des échantillons dopés avec 1% et 2% de Nd<sup>+3</sup> est dû à la présence de lacunes de plomb et l'absence de lacunes d'oxygène qui entraînent une augmentation de la taille des grains donc facilitent le mouvement de mur de domaine. Les murs sont tout à fait librement dans le grain très grand et sont empêchés dans leur mouvement pendant que la taille de grain est diminuée (l'échantillon non dopé avec le Nd<sup>+3</sup>) [9].



Figure. III. 8. Variation de la constante diélectrique en fonction du taux de dopages pour des échantillons polarisés et non polarisés à T =25°C

#### 7-1-2- Evolution de $\varepsilon_r$ en fonction de la température

Le suivi de la variation de la constante diélectrique en fonction de la température pour quatre différentes fréquences de mesure: 1, 10, 100, 200 kHZ, a abouti aux résultants que nous avons présenté respectivement sur les courbes de la figure III. 9 ci- dessous. Elles gardent pratiquement la même allure quelque soit la fréquence, c'est à dire augmentent avec la température dans le domaine de la ferroélectricité en passant par un maximum à la température de Curie ; puis diminuent dans la zone où la céramique n'est plus ferroélectrique.



*Figure.III. 9. La variation de la constante diélectrique en fonction de la température et de la fréquence pour une composition dopée avec 1% de Nd*<sup>3+</sup>.

En dessous de la température de transition ( $T_c$ ), la distorsion de la structure pérovskite sous l'influence de la température est accompagnée d'un déplacement relatif des ions. Ceci engendre la majeur partie de la polarisation spontanée à l'échelle de la maille. Ainsi, les ions  $Ti^{4+}$ ,  $Zr^{4+}$  et Pb<sup>2+</sup> n'occupent plus respectivement le centre et les sommets de la maille, ils sont décalés dans l'une des directions principales du réseau cristallin. Ceci donne lieu à une polarisation spontanée de plus en plus importante jusqu'à atteindre une valeur maximale à T<sub>c</sub>. Ces évolutions de la polarisation avec  $T_c$  permettent d'expliquer la valeur de  $\epsilon_r$  à cette température.

On constate aussi que  $\varepsilon_r$  montre une diminution quand la fréquence augmente. Le tableau ci-dessous donne les valeurs de la constante diélectrique à T<sub>c</sub> en fonction de la fréquence. A partir de ce tableau on constate que la température de transition diminue avec l'augmentation de la fréquence.

Fréquence (kHZ)	1	10	100	200
ε <sub>r</sub>	6171.231	5824.062	5681.646	3305.622
T <sub>c</sub> (°C)	315	315	312	256

# Tableau. III. 2. Les valeurs de la constante diélectrique à Tcen fonction de la fréquence

#### 7-2- L'angles des pertes (tg $\delta$ )

#### 7-2-1- Evolution de tg $\delta$ en fonction de la température

Ce facteur qui varie selon la température et la fréquence, joue un rôle important particulièrement dans les circuits à hautes fréquences. La figure III. 10, montre la variation de l'angle des pertes en fonction de la température et de la fréquence pour une composition dopée avec 1% de Nd<sup>3+</sup>. Les courbes donnant les variations de tg  $\delta$  gardent la même forme quand on fait varier la fréquence de mesure. L'angle des pertes croit avec l'augmentation de la température jusqu'à atteindre une valeur maximale qui traduit un maximum des pertes diélectriques du mélange puis il diminue. Cette diminution causée de l'augmentation de la température qui entraîne une détérioration des propriétés du matériau. On remarque aussi une diminution de l'angle des pertes à 10 kHZ, puis une augmentation au fur et à mesure que la fréquence augmente.

La température correspondant au pic de dissipation  $(T_d)$  est inférieure à celui de la constante diélectrique pour une même fréquence sauf à 200 kHZ elle reste la même. Le tableau III. 3, regroupe quelques résultats.



*Figure. III. 10. La variation de l'angle des pertes en fonction de la température et de la fréquence pour une composition dopée avec 1% de Nd*<sup>3+</sup>.

Fréquence (kHZ)	1	10	100	200
T <sub>c</sub> (°C)	315	315	312	256
T <sub>d</sub> (°C)	312	312	305	256
tg ð	0.049	0.0368	0.068	0.087

#### 7-2-2- Evolution de tg $\delta$ en fonction du pourcentage de dopants

La figure III. 11, représente la variation de l'angle des pertes en en fonction du pourcentage de dopants lorsque la fréquence est maintenue constante (1kHZ). Pour les trois courbes de tg  $\delta$  on remarque une diminution de l'angle des pertes diélectriques a partir de 280°C et lorsque le taux de Nd<sup>+3</sup> égale à 1%.

En revanche, l'introduction de 2% de  $Nd^{+3}$  fait augmenté la valeur de tg  $\delta$ .



Figure. III. 11. La variation de l'angle des pertes en fonction de la température et du pourcentage de dopants à 1kHZ

Ainsi la température correspondant au pic de dissipation est inférieure à celui de la constante diélectrique pour le même taux de dopage sauf lorsque le taux de Nd<sup>3+</sup> égale à 2% elle reste la même. Le tableau. III.4, regroupe quelques résultats.

% Nd <sup>3+</sup>	1	0.00	2
T <sub>c</sub> (°C)	315	306	310
T <sub>d</sub> (°C)	312	300	310
tg ð	0.049	0.058	0.066

Tableau. III.4. La variation de Td en fonction dupourcentage de dopants

#### 7-3- La résistivité ( $\rho$ ) et la conductibilité électrique ( $\gamma$ )

#### 7-3-1- Evolution de la résistivité et de la conductibilité en fonction de la température

L'étude de la variation de la résistivité et de la conductibilité en fonction de la température et de la fréquence est illustrée par la figure III. 12 pour une composition dopée avec 1% de Nd<sup>3+</sup>. Les deux courbes de cette figure montrent qu'il y a une relation relative entre la variation de la température et les deux facteurs électriques (résistivité et conductibilité). Plus la température où la fréquence croit, la résistivité de chaque échantillon décroît de plus en plus. Elle diminue à 1kHZ de 91.76 \*10<sup>+5</sup>  $\Omega$ .cm lorsque T= 100°C jusqu'à atteindre la valeur 07.09\*10<sup>+5</sup>  $\Omega$ .cm à 310°C. D'autre part la résistivité à 200kHZ diminue de 2.8\*10<sup>+5</sup>  $\Omega$ .cm à 100°C jusqu'à atteindre une valeur minimale 07.09\*10<sup>+5</sup>  $\Omega$ .cm à 270°C. Ce ci est dû qu'à haute température l'énergie thermique peut être suffisante pour rompre quelques liaisons ioniques ou covalentes et entraîne une certaine mobilité des ions.

En revanche, la conductibilité électrique varie en sens inverse de la résistivité, elle croit avec l'augmentation de la température où de la fréquence. Elle peut atteindre une valeur maximale de  $50.50*10^{-6} (\Omega.cm)^{-1}$  lorsque la fréquence est égale à 200kHZ et la température 270°C.



*Figure. III. 12. La variation de la résistivité (a) et de la conductibilité (b) en fonction de la température et de la fréquence pour une composition dopée avec 1% de Nd*<sup>3+</sup>

# 7-3-2- Evolution de la résistivité et de la conductibilité en fonction du pourcentage de dopants

Pour voir l'effet de Nd<sup>+3</sup> sur la résistivité et la conductibilité on présente sur la figure III. 13, les courbes relatives aux échantillons dopés par trois taux de Nd<sup>+3</sup> différents.









Figure. III. 13. la variation de la résistivité (a, b, c, d) et de la conductibilité (a`, b`, c`, d`) en fonction de la température et du pourcentage de dopants : (a, a`) à - 1kHZ (b, b`) à - 10kHZ (c, c`) à - 100kHZ (d, d`) à - 200kHZ

Il est clair que la résistivité peut être abaisser quant le taux de dopage passe de 1% à 2%. Ce ci est dû à la non stœchiométrie du matériau après dopage qui engendre l'apparition des sites vacants. Ces sites vacants augmentent le nombre de charges dans le matériau ce qui décroît la résistivité du matériau et par conséquent augmente sa conductibilité.

# 8- La rigidité électrique

La tension augmente progressivement (de 0 à 10 kV) jusqu'au claquage. Pour les échantillions dopés de 0%, 1% et 2% de  $Nd^{+3}$  la tension augmente continument est on arrive pas à la dégradation de ces matériau dans tous l'intervalle de la tension.

# 9- Etude des propriétés piézoélectriques

Après 24 heures de l'opération de la polarisation les constantes piézoélectriques sont déterminées par la méthode de résonance– antirésonance pour une fréquence de mesure 1kHZ.

# 9-1- Le facteur de couplage électromécanique planaire K<sub>p</sub>

## 9-1-1- Évolution de K<sub>P</sub> en fonction du pourcentage de dopants

L'influence de dopage sur le facteur de couplage est présenté sur la figure III. 14. Ce facteur qui traduit l'aptitude d'une céramique à transformer l'énergie électrique en énergie mécanique est le facteur piézoélctrique le plus important. La courbe de la figure III. 14 montre que ce facteur atteint un maximum pour Nd% = 1% puis il est diminue. Quand les sites vacants en Pb dominent ou la dimension du grain est grande les murs du domaine déplacent facilement et K<sub>p</sub> peut atteindre une valeur maximale.



Figure. III. 14. Évolution de K<sub>P</sub> en fonction du pourcentage de dopants

# 9-1-2- Évolution de K<sub>P</sub> en fonction de la température



Figure. III. 15. La variation du K<sub>P</sub> en fonction de la température pour une composition dopée avec 1% de Nd<sup>3+</sup>

La variation du  $K_P$  en fonction de la température pour une composition dopée avec 1% de Nd<sup>3+</sup> est illustrée sur la figure III. 15.

Lorsque la température est inférieur à 200°C, le facteur de couplage augmente progressivement. A partir de 200°C on observe une diminution du ce facteur. Cette diminution est due au fait que l'augmentation de la température favorise la mobilité des ions, ceci engendre un bouleversement progressif des moments dipolaires qui s'orientent au hasard.

# 9-2- Le coefficient piézoélectrique de charge d<sub>31</sub>

### 9-2-1- Évolution de d<sub>31</sub> en fonction du pourcentage de dopants

La figure III. 16, montre l'évolution du coefficient piézoélectrique de charge  $d_{31}$ , en fonction du pourcentage de dopants. Le coefficient piézoélectrique de charge  $d_{31}$  augmente avec l'augmentation du taux de pourcentage de Nd<sup>3+</sup>, atteint un maximum pour un échantillon dopé avec 1% de Nd<sup>3+</sup> (241.43\* 10<sup>-12</sup> C/N) puis il est diminue (161.02\*10<sup>-12</sup> C/N).



*Figure. III. 16. L'évolution du coefficient piézoélectrique de charge d*<sub>31</sub> *en fonction du pourcentage de dopants* 

#### 9-2-2- Évolution de d<sub>31</sub> en fonction de la température

La figure III. 17 donne l'évolution du coefficient piézoélectrique de charge  $d_{31}$  en fonction de la température de la composition Pb<sub>0.99</sub> Nd<sub>0.01</sub>[Zr<sub>0.45</sub>Ti<sub>0.45</sub>(Zn<sub>1/3</sub>, Sb<sub>2/3</sub>)<sub>0.1</sub>]<sub>1-0.01/4</sub> O<sub>3</sub>. On remarque que ce coefficient diminue de 239.15\* 10<sup>-12</sup> C/N à 25°C quand la température augmente jusqu'à 115.36 \* 10<sup>-12</sup> C/N à 250°C. Cette dimunition est dûe aux agitations thermiques qui est résponsable du désordre dans le matériau.



*Figure. III. 17. L'évolution du coefficient piézoélectrique de charge d*<sub>31</sub> *en fonction de la température* 

# 9-3- Le coefficient piézoélectrique de tension g<sub>31</sub>

#### 9-3-1- Évolution de g<sub>31</sub> en fonction du pourcentage de dopants

La variation de taux de  $Nd^{+3}$  influe sur le coefficient piézoélectrique de tension  $g_{31}$ , cette dépendance est illustrée par la figure III. 18. Plus le taux de  $Nd^{+3}$  croit, le coefficient  $g_{31}$  décroît mais au- de là de 1% on constate une augmentation de ce coefficient.



Figure. III. 18. L'évolution du coefficient piézoélectrique de tension g<sub>31</sub> en fonction du pourcentage de dopants

9-3-2- Évolution de g<sub>31</sub> en fonction de la température



Figure. III. 19. L'évolution de  $g_{31}$  en fonction de la température pour une composition dopée avec 1% de  $Nd^{+3}$ 

La figure III. 19, donne l'évolution du coefficient de tension  $g_{31}$  en fonction de la température. On remarque que ce coefficient diminue quand la température augmente.

De manière générale les coefficients piézoélectriques évoluent contrairement en fonction de la température. Ce qui aurait conséquence une diminution des propriétés piézoélectriques des compositions.

# 10- Etude des propriétés mécaniques

## 10-1- Le facteur de qualité mécanique Q<sub>m</sub>

### 10-1-1- Évolution de Qm en fonction du pourcentage de dopants

La figure III. 20, montre la variation de facteur de qualité mécanique  $Q_m$  en fonction de taux de dopage. On observe une chute de  $Q_m$  jusqu'à atteindre une valeur minimale de 285.09 pour une composition dopée avec 0.02 de Nd<sup>+3</sup>.



Figure. III. 20. L'évolution de  $Q_m$  en fonction du pourcentage de dopants

Le facteur de qualité mécanique est défini en tant que réciproque du frottement interne. Le frottement interne dans la céramique piézoélectrique est dû à l'interaction entre le mouvement de mur de domaine et les domaines. Les sites vacants en Pb favorisent le mouvement des murs de domaine et augmentent le frottement interne à l'intérieur de la céramique diminuant ainsi le facteur de qualité mécanique [10].

### 10-1-2- Évolution de Q<sub>m</sub> en fonction de la température

L'influence de la température sur le facteur de qualité mécanique  $Q_m$  est présentée sur la figure III. 21. Cette courbe montre que l'augmentation progressive de la température est suivie d'une diminution continue du facteur  $Q_m$ .



Figure. III. 21. L'évolution de  $Q_m$  en fonction de la température pour une composition dopée avec 1% de  $Nd^{+3}$ 

#### **10-2-** Le module de Young E

#### 10-2-1- Le module de Young E en fonction du pourcentage de dopants

L'évolution du module de Young en fonction de taux de dopage est illustrée sur la figure. III. 22. Plus le taux de Nd<sup>+3</sup> croit, le module de Young E décroît, il atteint un minimum de  $1.57*10^{+10}$  N/m<sup>2</sup> mais au- delà de 1% on constate une augmentation de ce module.



Figure. III. 22. L'évolution du module de Young en fonction du pourcentage de dopants

#### 10-2-2- Le module de Young E en fonction de la température

La figure III. 23, montre la variation du module de Young en fonction de la température. Cette courbe indique qu'il y a une augmentation de ce module avec l'augmentation de la température ( de  $1.57*10^{+10}$  N/m<sup>2</sup> à  $25^{\circ}$ C jusqu'à  $2.05*10^{+10}$  N/m<sup>2</sup> à  $250^{\circ}$ C).



*Figure. III. 23. L'évolution du module de Young en fonction de la température pour une composition dopée avec 1% de Nd*<sup>+3</sup>

# **11-** Conclusion

Les composés de la solution solide de Zirconate- titanate de plomb, notée PZT, de formule générale  $Pb_{1-Z} Nd_Z [Zr_{0.45}Ti_{0.45}(Zn_{1/3}, Sb_{2/3})_{0.1}]_{1-Z/4} O_3$  tel que Z= 0, 1 et 2%, ont été préparés à partir d'un mélange d'oxydes par un procédé classique.

Les structures cristallographiques des céramiques PZT ont été caractérisées par la méthode habituelle pour ce genre d'étude : XRD. A partir de cette méthode nous avons montré la coexistence de la phase tétragonale- rhombohedrique (T+R) pour des échantillions dopée avec le Nd<sup>+3</sup>. Tendis que l'échantillon non dopés en site A présente une structure tétragonale.

L'étude de l'influence de l'addition de Nd<sup>3+</sup> a permis de dégager les résultats suivants :

- La densité, la constante diélectrique, la résistivité, le facteur de couplage, le coefficient piézoélectrique de charge, augmentent avec l'addition de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et ils font une pointe à 1% puis ils diminuent.
- La conductivité, le coefficient piézoélectrique de tension, le facteur de qualité mécanique, le module d'Young dininuent avec l'addition de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et ils font une pointe à 1% puis ils augmentent.
- Le facteur de qualité mécanique diminue de façon continue avec l'addition de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.
- L'addition de Nd<sup>+3</sup> favorisé la croissance des grains.
- Les coefficients piézoélectriques évoluent contrairement en fonction de la température. Ce qui aurait pour conséquence une diminution des propriétés piézoélectriques des compositions par contre les propriétés diélectriques augmentent avec l'augmentation de la température.

# **Références bibliographiques**

[1] H. Huang, P. Hing. The relationship between the mechanical properties and microstructure of sintered PZT. J. Mater.Proce. Tech. 89-90 (1999) 538-543.

[2] S. Takahashi. *Multilayer piezoceramic actuators and their applications.Ceramics. Switzerland (1993).* 

[3] S.K. Mishra, D. Pandey, A.R. Singh. *Effect of phase coexistence at morphotropique phase boundary on the properties of Pb*(Zr, Ti) $O_3$  ceramics. *Appl. Phys.Let* 69(1996)1707-09.

[4] J. H. Yoo, J. I. Hing, W. Cao. *Piezoelectric bimorph coupled to thin metal plate as cooling fan for electronic devices. Sensors and actuators, Vol 79 (2000)8-19.* 

[5] H. R. Rukmini, R. N. P. Choudhary, D. L. Habhakara. Sintering temperature dependent ferroelectric phase transition of  $Pb_{0.91}(La_{1-z/3} Li_z)_{0.09}(Zr_{0.65}Ti_{0.35})_{0.9775}O_3$ . Journal of physicsd chemistry of solids 61 (2000) 1735- 1743.

[6] H. Chen, J. Long, Z. Meng. Effect of Zr/ Ti rotio on the properties of PMMN- PZT ceramics near the morphotropic phase boundary. Materiels Science and Engeineering B 00 (2003) 1-4.

[7] A. Boutarfaia, C. Boudran, A. Monsser et al. Study of transition line of PZT ceramics by X- ray diffraction. Ceramics international, Vol 21, (1995) 391-394.

[8] A. Garg, T.C. Goel. Mechanical and electrical properties of PZT ceramics (Zr: Ti = 0.40:0.60) related to Nd<sup>+3</sup> addition. Materials Science and Engineering B60(1999) 128-132.

[9] W. Long, W. Chung-Chuang, W. Tein- Shou and L. His- Chuan. Dielectric properties of modified PZT ceramics. J. Phys.C: Solid State Phys., 16 (1983) 2803-2821.

[10] W. Long, W. Chung-Chuang, W. Tein- Shou and L. His- Chuan. *Piezoelectric* properties of modified PZT ceramics. J. Phys.C: Solid State Phys., 16 (1983) 2813-2821.

