HAL
open science

Développement et caractérisations de fibres piézoélectriques à âme métallique pour applications aéronautiques

Aurélien Dolay

To cite this version:

Aurélien Dolay. Développement et caractérisations de fibres piézoélectriques à âme métallique pour applications aéronautiques. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Université de Valenciennes et du Hainaut-Cambresis, 2013. Français. NNT : 2013VALE0044 . tel-00991950

HAL Id: tel-00991950

https://theses.hal.science/tel-00991950v1

Submitted on 16 May 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université de Valenciennes et du Hainaut-Cambrésis

N° ordre : 13 / 38

Thèse de doctorat

Pour obtenir le grade de Docteur de l'Université de

VALENCIENNES ET DU HAINAUT-CAMBRESIS

Discipline et spécialités :

Mécanique - Energétique et Matériaux

Présentée et soutenue par Aurélien DOLAY

Le 17/12/2013, à l'ONERA – Lille

Ecole doctorale

Sciences pour l'Ingénieur (SPI)

Laboratoires

Laboratoire des Matériaux Céramiques et Procédés Associés (LMCPA)
Office National des Etudes et de la Recherche Aérospatiale (ONERA)

Développement et caractérisations de fibres piézoélectriques à âme métallique pour applications aéronautiques

JURY

Rapporteurs

BENKHOUJA, Khalil. Professeur. Université de Chouaib Doukkali. El Jadida (Maroc).
NOGAREDE, Bertrand. Professeur. INPT – ENSEEIHT, Université de Toulouse.

Examinateurs

COURTOIS, Christian. Professeur. LMCPA, UVHC. (*Directeur de thèse*)
LERICHE, Anne. Professeur. LMCPA, UVHC. (*Président du jury*)
PETITNIOT, Jean-Luc. Ingénieur d'études et de recherches. ONERA, Lille.
BERTON, Benoit. Docteur. Dassault Aviation, département DGT/DTA, Saint-Cloud.
SAUSSEREAU, Gérard. Ingénieur "Matériaux et Procédés". MBDA, Le Plessis-Robinson.
LEVASSEUR, Bénédicte. Responsable d'étude "Contrôle non destructifs". DGA, Balma.

Membres invités

ZOPPITELLI, Elio. Directeur de programmes de recherche. EUROCOPTER, Marignane.
LEFEBVRE, Laurent. Chef d'unité DADS/CRD. ONERA, Lille.
D'ASTORG, Sophie. Maître de conférences. LMCPA, UVHC.
RGUITI, Mohamed. Maître de conférences. LMCPA, UVHC.

Dédicaces

Lors de mes recherches, j'ai trouvé en particulier une chose à laquelle je ne m'attendais pas,
... l'amour.

Balzac a écrit :
"Mes parents m'ont donné un cœur, vous l'avez fait battre"

Je dédicace ce mémoire, du fond du cœur, à

Ma mère, Murielle,
Ma femme, Cindy.

Par l'expérience, la connaissance.

Heike Kamerlingh Onnes

La logique vous conduira d'un point A à un point B.
L'imagination et l'audace vous conduiront où vous le désirez.

Albert Einstein

Si c'est par la logique qu'on démontre, c'est par l'intuition qu'on invente.

Henri Poincaré

A l'échelle cosmique, l'eau est plus rare que l'or.

Hubert Reeves

Avant-propos

Les travaux de recherche présentés dans ce mémoire ont été réalisés à l'Office National des Etudes et Recherches Aérospatiales (ONERA) de Lille et au sein du "Laboratoire de Matériaux et Procédés Associés" (LMCPA) de l'antenne de Maubeuge de l'Université de Valenciennes et du Hainaut-Cambrésis (UVHC). Je remercie l'ONERA et la région Nord-Pas-de-Calais d'avoir cofinancé ces travaux.

Je remercie tout d'abord Anne Leriche, directrice du LMCPA, Jean-Pierre Grisval, directeur du Département d'Aéroélasticité et Dynamique des Structures (DADS) et Laurent Lefebvre, chef de l'unité Conception et Résistance Dynamique des structures (CRD) de l'ONERA, pour m'avoir accueilli et pour m'avoir accordé leur confiance durant ces trois années.

Je remercie tous mes encadrants qui ont assuré le suivi et la direction scientifique de cette étude : Christian Courtois (directeur de thèse), Jean-Luc Petitniot (co-encadrant) de l'ONERA ainsi que Sophie d'Astorg et Mohamed Rguiti du LMCPA.

J'ajoute un clin d'œil particulier à Mohamed Rguiti (LMCPA) et Didier Joly (ONERA) pour les cheveux que nous avons perdus ensemble lors des travaux de caractérisation et de modélisation.

J'exprime ma sincère reconnaissance à Monsieur Khalil Benkhouja et à Monsieur Bertrand Nogarede pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail.

J'exprime également mes remerciements aux différents acteurs qui nous ont permis d'avancer au sein des différentes collaborations : Pascal Mosbah et Bertrand Dubus de l'ISEN – Lille qui nous ont assister sur les travaux de modélisation, Laurent Charlet du département "Technologie des Polymères et Composites et Ingénierie Mécanique" de l'Ecole des Mines de Douai qui a participé aux travaux de coextrusion, Ghislain Louis du département "Génie Civil et Environnemental" de l'Ecole des Mines de Douai qui a participé aux essais de micro-traction, Grégory Stoclet de l'équipe "Ingénierie des Systèmes Polymères" de l'unité Matériaux et Transformation (UMET) de l'université de Lille 1 qui a participé à d'autres essais de micro-traction, Enrique Juste et Stéphane Hocquet de l'INISMa de Mons avec qui nous avons expérimenté le frittage laser, et enfin Etienne Savary maintenant au LMCPA qui nous a permis de réaliser les essais de frittage micro-ondes au laboratoire CRISMAT de l'université de Caen.

J'adresse mes remerciements d'une manière générale à tous mes collègues et personnels qui ont partagé ma route durant ces trois années, en particulier mon collègue du LMCPA et maintenant ami fidèle, Kurt. Je n'oublie pas non plus mes amis, ma famille et ma femme sans qui rien n'aurait été possible.

Table des matières

Introduction générale.....1

CHAPITRE I
BIBIOGRAPHIE : LES CERAMIQUES PIEZOELECTRIQUES DANS L'AERONAUTIQUE

I.1. CONTEXTE ET ENJEUX.....**3**

I.2. GENERALITES SUR LA PIEZOELECTRICITE.....**7**

I.2.1. A la découverte de la piézoélectricité.....*7*

I.2.2. L'effet piézoélectrique.....*8*

I.2.3. Les équations de la piézoélectricité.....*10*

I.2.4. Les matériaux piézoélectriques.....*12*

I.2.4.1. Généralités.....12

I.2.4.2. Les matériaux PZT.....14

I.2.4.3. Le dopage par le lanthane.....16

I.2.5. Les céramiques ferroélectriques.....*18*

I.3. ACTIONNEURS A FIBRES PIEZOELECTRIQUES.....**21**

I.3.1. AFC et MFC (Active and Macro Fibres Composite).....*21*

I.3.2. HFC (Hollow Fibre Composite).....*24*

I.3.3. MCPF (Metal Core Piezoelectric Fibre).....*29*

I.3.3.1. Elaboration.....30

I.3.3.2. Caractérisations.....33

I.3.3.3. Applications.....36

I.3.3.4. Modèle analytique.....42

I.4. CONCLUSION.....**46**

Bibliographie du Chapitre I.....*49*

CHAPITRE II
ELABORATION DE MCPF PAR ENDUCTION

II.1. BIBLIOGRAPHIE SUR L'ENDUCTION 53

II.1.1. Principe et applications 53

II.1.2. Quelques données sur l'enduction avec des suspensions PZT 53

II.1.3. Eléments pour estimer l'épaisseur déposée 54

II.1.3.1. Modèle de Landau, Levich et Deryaguin 54

II.1.3.2. Application au cas étudié 55

II.2. MATIERES PREMIERES 56

II.2.1. Poudre synthétisée au laboratoire (LMCPA) 57

II.2.1.1. Synthèse 57

II.2.1.2. Résultats 57

II.2.2. Poudre commerciale 62

II.3. ENDUCTION MULTICOUCHE 66

II.3.1. Préparation de la barbotine 66

II.3.2. Préparation des âmes métalliques 67

II.3.3. Procédure d'enduction 67

II.3.4. Premiers résultats et optimisation de la procédure 69

II.3.4.1. Dimensions du récipient 69

II.3.4.2. Interaction avec la poudre d'enrobage 69

II.3.4.3. Interaction entre couches et drainage 71

II.3.5. Enduction basse température 74

II.4. EPAISSEURS DEPOSEES 75

II.4.1. Procédure standard 75

II.4.2. Procédure optimisée 77

II.4.2.1. Fibres 2 couches frittées 950°C/2h – 1200°C/6h 77

II.4.2.2. Fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h – 1200°C/6h 77

II.4.3. Influence de la température sur l'épaisseur déposée 80

II.5. CONCLUSION 81

Bibliographie du Chapitre II 82

CHAPITRE III
CARACTERISTIQUES DES MCPF

III.1. RAPPEL DE LA PROBLEMATIQUE 84

III.2. CARACTERISTIQUES DES MASSIFS EQUIVALENTS 84

III.2.1. Diffraction des rayons X 84

III.2.2. Microstructure (microscopie électronique à balayage) 88

III.2.3. Densité 90

III.2.4. Caractéristiques ferroélectriques 90

III.2.4.1. Poudre synthétisée (LMCPA) 91

III.2.4.2. Poudre commerciale 93

III.2.4.3. Bilan 96

III.2.5. Caractéristiques piézoélectriques 97

III.2.6. Bilan des différents traitements thermiques 98

III.3. FIBRES INDIVIDUELLES 99

III.3.1. Diffractogrammes 99

III.3.1.1. Fibres 2 couches frittées à 950°C/2h – 1200°C/6h 99

III.3.1.2. Fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h – 1200°C6h 99

III.3.2. Microstructures 100

III.3.2.1. Fibres 2 couches frittées 950°C/2h – 1200°C/6h 100

III.3.2.2. Fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h – 1200°C/6h 101

III.3.3. Cycles d'hystérésis 102

III.3.3.1. Fibres 2 couches frittées 950°C/2h – 1200°C/6h 102

III.3.3.2. Fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h – 1200°C/6h 105

III.3.4. Conclusion : caractéristiques microstructurales 111

III.4. CARACTERISATIONS ELECTROMECANIQUES DES FIBRES 111

III.4.1. Vibrométrie laser 111

III.4.1.1. Fibres seules 111

III.4.1.2. Patchs multifibres 115

III.4.2. Micro-traction 120

III.4.2.1. Principe 120

III.4.2.2. Equipements 122

III.4.2.3. 1ère gamme d'essais (UMET) 123

III.4.2.4. 2nd gamme d'essais (EDM).....130
III.4.3. Conclusion : caractéristiques électromécaniques 130

III.5. CONCLUSION 132

Bibliographie du Chapitre III.....133

CHAPITRE IV
MODELISATION DES MCPF

IV.1. MODELISATION ANALYTIQUE 134

IV.1.1. Tube piézoélectrique 135

IV.1.2. Fibre piézoélectrique à cœur métallique 137

IV.1.3. Intégration uniforme dans une matrice 139

IV.1.4. Conclusions 144

IV.2. INTRODUCTION A LA METHODE DES ELEMENTS FINIS 145

IV.2.1. Généralités 145

IV.2.2. Types d'analyses avec le code ATILA 146

IV.2.2.1. Analyse statique 147

IV.2.2.2. Analyse modale 147

IV.2.2.3. Analyse harmonique 147

IV.2.2.4. Analyse transitoire 148

IV.3. MODELISATION PAR LA METHODE DES ELEMENTS FINIS 148

IV.3.1. Données d'entrées 148

IV.3.1.1. Version 148

IV.3.1.2. Données matériaux 148

IV.3.1.3. Repères locaux 149

IV.3.2. Stratégie de discrétisation 150

IV.3.2.1. Type d'éléments 150

IV.3.2.2. Maillage 151

IV.3.3. Conditions limites 154

IV.3.3.1. Potentiels électriques 154

IV.3.3.2. Force 154

IV.3.3.3. Déplacements 155

IV.3.3.4. Effets de bords 156

IV.3.4. Etudes réalisées : comportement actionneur 159

IV.3.4.1. Fibres seules 159

IV.3.4.2. Fibres intégrées 162

IV.3.4.3. Utilisation sous forme de patchs 172

IV.3.4.4. Déformation anisotrope 173

Liste des figures

Figure I.1. Exemple de winglets sur un gros porteur d'Airbus (www.airbus.com).....4

Figure I.2. Falcon 7X de Dassault (www.dassault-aviation.com). 4

Figure I.3. Légèreté, souplesse et efficacité : l'aile d'oiseau (pygargue à tête blanche ici). 5

Figure I.4. Commandes de vols sur un A380 [DELEHELLE 2008]. 5

Figure I.5. Organigrammes des différentes classes cristallines. 8

Figure I.6. Existence d'une polarisation induite dans les groupes non centrosymétriques.....9

Figure I.7. Influence de la direction de la contrainte appliquée sur l'existence d'un moment dipolaire dans une maille hexagonale.....9

Figure I.8. Représentation d'une structure pérovskite ABO_3.....10

Figure I.9. Liens entre les différentes grandeurs physiques. 11

Figure I.10. Convention d'axes en piézoélectricité. 11

Figure I.11. Diagramme de phases du système PZT [ZACHARIASZ 2007]. 15

Figure I.12. Diagramme de phases du système PLZT, d'après [KONG 2008]. 17

Figure I.13. Cycle d'hystérésis d'une céramique ferroélectrique. 19

Figure I.14. Comparaison de différents matériaux pour des applications d'actionneurs dynamiques [NOGAREDE 2005].....21

Figure I.15. Représentation schématique d'un dispositif AFC. 22

Figure I.16. Distribution du champ électrique dans un AFC en fonctionnement 33 [WILKIE 2000].....22

Figure I.17. Représentation schématique d'un dispositif MFC.....23

Figure I.18. MFC en fonctionnement longitudinal ou transverse. 24

Figure I.19. Modes de déformation possibles avec l'utilisation des MFC.....24

Figure I.20. Evolution du champ électrique sur les parois internes et externes en fonction du rapport d'aspect [BREI 2004].....25

Figure I.21. Evolution du rapport d_{31}^{eff} / d_{31} en fonction du rapport d'aspect α.....26

Figure I.22. Représentation schématique d'intégration des HFC.....27

Figure I.23. Différents cas de figures pour un composite HFC, d'après [BREI 2004].....27

Figure I.24. Evolution du coefficient $d_{31}^{eff,lam}$ normalisé pour des fibres en matériau PZT-5H en fonction de différents paramètres [BREI 2004].....28

Figure I.25. Section d'une MCPF réalisée par synthèse hydrothermale sur un fil de titane de 150 µm [SATO 2009]. 30

Figure I.26. Fil de NiCr revêtu de PZT par électrophorèse [NG 2005].....31

Figure I.27. Dispositif d'extrusion, d'après Qiu et al. [QIU 2003].....32

Figure I.28. Section d'une fibre obtenue par coextrusion [SATO 2004]. 32

Figure I.29. Excentricité du fil métallique (à droite) et enroulement de la fibre (à gauche) [QIU 2003].....33

Figure I.30. Mesure de déplacement longitudinal d'une fibre individuelle [SATO 2005a].....33

Figure I.31. Fabrication d'une *smart-board* CFRP/MCPF [SATO 2004, SHIMOJO 2007]. 34

Figure I.32. Caractérisation du comportement en tant que capteur (a) et actionneur (b) d'une smart-board CFRP/MCPF×6 [SATO 2003a]. 35

Figure I.33. Mesure de l'amplitude du déplacement de flexion en extrémité du démonstrateur en condition encastrée-libre sous une tension de 20 V en fonction de la fréquence [SATO 2004, SHIMOJO 2007]. 35

Figure I.34. Circuit RL *shunt* pour l'amortissement passif de vibration, d'après [SATO 2003c]. 36

Figure I.35. Relation entre la fréquence de l'excitation appliquée et le déplacement mesuré en extrémité de poutre avec 1 MCPF en court-circuit ou connectée au circuit RL [SATO 2003c]. 37

Figure I.36. Montage expérimental pour l'amortissement actif de vibrations [TAKAGI 2004]. 37

Figure I.37. Mise en application du contrôle actif de vibrations. 38

Figure I.38. Réponse en fréquence du système avec ou sans contrôle actif des vibrations [TAKAGI 2004].....39

Figure I.39. Principe de montage utilisé pour l'étude de l'endommagement [TAKAGI 2005]..39

Figure I.40. Type d'endommagement modélisé [TAKAGI 2005].....40

Figure I.41. Diagrammes de Bode pour la structure saine (▬) et endommagée (▪ ▪ ▪, •••, ▪▪▪) [TAKAGI 2005].....40

Figure I.42. Contrôle actif de vibrations sans endommagement des fibres (l_d = 150 mm) [TAKAGI 2005].....41

Figure I.43. Contrôle actif de vibrations avec endommagement des fibres (l_d = 30 mm) [TAKAGI 2005].....42

Figure I.44. Illustration de l'effet piézoélectrique. 43

Figure I.45. Evolution du coefficient piézoélectrique d_{31} d'une fibre à âme métallique en fonction du rapport d'aspect α et du module d'élasticité $Y_{métal}$ de l'âme centrale. 44

Figure I.46. Evolution du coefficient piézoélectrique d_{31} d'un composite à fibres à âme métallique en platine ($Y_{métal}$ = 170 GPa) intégrées dans une matrice souple (type époxyde) en fonction de la fraction volumique de fibres. 45

Figure I.47. Evolution du coefficient piézoélectrique d_{31} d'un composite à fibres à âme métallique en platine ($Y_{métal}$ = 170 GPa) intégrées dans une matrice rigide (type époxyde renforcé) en fonction de la fraction volumique de fibres. 45

Figure II.1. Ménisques créés par les effets capillaires en statique et en dynamique. 54

Figure II.2. Schéma de principe et grandeurs caractéristiques du procédé d'enduction. 54

Figure II.3. Synoptique de la synthèse de poudre PLZT 7/60/40. 57

Figure II.4. Analyse granulométrique de la poudre synthétisée (LMCPA). 58

Figure II.5. Diffractogramme-X de la poudre synthétisée (LMCPA).....58

Figure II.6. Analyse thermomécanique sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA). 59

Figure II.7. Microstructure sur fracture d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) après un frittage standard à 1200°C/6h. 60

Figure II.8. Diffractogramme-X sur un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre synthétisée et fritté à 1200°C pendant 6h. 60

Figure II.9. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) fritté à 1200°C/6h. 61

Figure II.10. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) fritté à 1200°C/6h. .61

Figure II.11. Analyse granulométrique de la poudre commerciale.....62

Figure II.12. Diffractogramme-X de la poudre commerciale.....63

Figure II.13. Analyse thermomécanique d'un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale. 63

Figure II.14. Microstructure sur fracture sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre après frittage standard à 1200°C/6h. 64

Figure II.15. Diffractogramme-X sur un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 1200°C pendant 6h (les massifs entre 40 et 50° sont perturbés par la détection du porte-échantillon). 64

Figure II.16. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale fritté à 1200°C/6h.....65

Figure II.17. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale fritté à 1200°C/6h. 65

Figure II.18. Synoptique de la procédure de dégraissage des fils métalliques avant enduction. 67

Figure II.19. Photographie du système d'enduction dans la procédure standard.....67

Figure II.20. Cycle de frittage des fibres dans la procédure standard ($\dot{T}$ = 1°C.min^{-1}).....68

Figure II.21. Synoptique de la procédure standard d'enduction. 68

Figure II.22. Photographie du système d'enduction dans la procédure modifiée. 69

Figure II.23. Mousse d'alumine avant (en haut) et après frittage (en bas). 70

Figure II.24. Montage pour le frittage en position verticale.....70

Figure II.25. Ondulation de la surface (observation au M.E.B.) lors du dépôt multicouche. .71

Figure II.26. Ondulation de la surface (observation au microscope confocal) lors du dépôt multicouche. 71

Figure II.27. Synoptique de la procédure optimisée d'enduction. 72

Figure II.28. Analyse thermodilatométrique (retrait-température) sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée pour la détermination du temps de traitement de consolidation. 73

Figure II.29. Analyse thermodilatométrique (retrait-temps) à 950°C pour la détermination du temps de traitement de consolidation. 73

Figure II.30. Comparaison des traitements thermiques pour des fibres 2 couches (▪▪▪ cycle standard, ▬ cycle modifié). 74

Figure II.31. Diagrammes de phases des systèmes binaires H_2O-NaCl et H_2O-$CaCl_2$ [C-SHRP 2000]. 75

Figure II.32. Evolution de l'épaisseur moyenne du dépôt (mesures au M.E.B) après frittage à 1200°C en utilisant la procédure standard d'enduction. 76

Figure II.33. Evolution du rapport d'aspect moyen (mesures au M.E.B) après frittage à 1200°C en utilisant la procédure standard d'enduction. 76

Figure II.34. Epaisseurs mesurées sur une série de 5 fibres après les différents cycles enduction/consolidation à 950°C. 78

Figure II.35. Epaisseurs mesurées sur une série de 5 fibres 5 couches après le frittage final à 1200°C (■ mesures au microscope confocal, □ mesures au M.E.B). 78

Figure II.36. Evolution de l'épaisseur moyenne du dépôt (● mesures au microscope confocal, ○ mesures au M.E.B) avec les différentes étapes d'enduction et traitements thermiques. 79

Figure II.37. Evolution du rapport d'aspect moyen (● mesures au microscope confocal, ○ mesures au M.E.B) avec les différentes étapes d'enduction et traitements thermiques. 80

Figure III.1. Diffractogramme-X sur un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre synthétisée et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h. 85

Figure III.2. Diffractogramme-X d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h. 85

Figure III.3. Diffractogramme-X d'un massif mis en forme par CIP à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) et fritté à 950°C/2h+1200°C/6h. 86

Figure III.4. Diffractogramme d'un massif mis en forme par CIP à partir de la poudre commerciale et fritté 950°C/2h+1200°C/6h. 86

Figure III.5. Diffractogramme-X d'un massif mis en forme par CIP à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) et fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h. 87

Figure III.6. Diffractogramme d'un massif mis en forme par CIP à partir de la poudre commerciale et fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h. 87

Figure III.7. Evolution de la densité absolue avec les différents traitements thermiques pour les échantillons mis en forme à partir de la poudre commerciale (PC) et la poudre synthétisée (PS). 90

Figure III.8. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h. 91

Figure III.9. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h. 91

Figure III.10. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) frittée à 950°C/2h+1200°C/6h. 92

Figure III.11. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) fritté à 950°C/2h+1200°C/6h. 92

Figure III.12. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) frittée 4×950°C/2h+1200°C/6h.....93

Figure III.13. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h. 93

Figure III.14. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h. 94

Figure III.15. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h. 94

Figure III.16. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté 950°C/2h+1200°C/6h.....95

Figure III.17. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale fritté 950°C/2h+1200°C/6h. .95

Figure III.18. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h.....96

Figure III.19. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h. 96

Figure III.20. Diffractogramme-X mesuré sur 5 fibres alignées (fibres 2 couches frittées 950°C/2h - 1200°C/6h). 99

Figure III.21. Diffractogramme mesuré sur 5 fibres alignées (fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h - 1200°C/6h). 100

Figure III.22. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt1000-PC-Ag F1) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h. 102

Figure III.23. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt1000-PC-Ag F1) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.....102

Figure III.24. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt1000-PC-Ag F2) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h. 103

Figure III.25. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt1000-PC-Ag F2) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.....103

Figure III.26. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt1000-PC-Ag F3) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h. 104

Figure III.27. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt1000-PC-Ag F3) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.....104

Figure III.28. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F1) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 105

Figure III.29. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F1) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 106

Figure III.30. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F2) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 106

Figure III.31. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F2) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 107

Figure III.32. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F3) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 107

Figure III.33. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F3) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 108

Figure III.34. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F4) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 108

Figure III.35. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F4) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 109

Figure III.36. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F5) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 109

Figure III.37. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F5) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h. 110

Figure III.38. Schéma de principe de caractérisation par vibrométrie laser dans la configuration la plus simple. 112

Figure III.39. Evolution du déplacement transverse dans 2 positions de mesures proches de la résonance.....112

Figure III.40. Déplacement global non longitudinal dû aux écarts par rapport à une fibre parfaitement rectiligne. 113

Figure III.41. Schéma de principe de caractérisation du déplacement longitudinal par vibrométrie laser. 113

Figure III.42. Evolution de la déformation longitudinale avec le champ électrique appliqué (MCPF α = 0,38). 114

Figure III.43. Evolution de la déformation longitudinale avec le champ électrique appliqué (MCPF α = 0,38) et ajustement quadratique (degré 2). 115

Figure III.44. Préparation d'un patch sur la première feuille de Kapton®. 116

Figure III.45. Photographie d'un patch avec 3 fibres terminé. 116

Figure III.46. Schéma de principe de la mesure de déplacement par vibrométrie laser sur un patch encastré-libre. 117

Figure III.47. Evolution du déplacement transverse en fonction de la fréquence pour un patch composé de 3 fibres alignées (α = 0,05). 117

Figure III.48. Evolution du déplacement U_y (flèche) du patch composé de 3 fibres (α = 0,05) en fonction de la tension appliquée à une fréquence de 10 Hz. 118

Figure III.49. Schéma de principe de la caractérisation du patch en fonctionnement capteur. 119

Figure III.50. Photographie du montage expérimental pour la caractérisation en fonctionnement capteur. 119

Figure III.51. Evolution de la tension mesurée aux bornes des fibres en fonction de l'amplitude du déplacement de l'extrémité libre du patch.....120

Figure III.52. Principe de fonctionnement d'une machine de traction.....121

Figure III.53. Courbe de fonctionnement d'une MCPF obtenue à l'aide d'une machine de micro-traction.....122

Figure III.54. Dispositif de micro-traction de l'UMET.....122

Figure III.55. Dispositif de micro-traction de l'école des Mines.....123

Figure III.56. Schéma de mise en place des fibres dans le système de micro-traction.....123

Figure III.57. Essai de traction contrainte-déformation sur une fibre 5 couches (α = 0,38). 124

Figure III.58. Essais de traction sur 5 MCPF avec une machine de pull-out [SATO 2005a].125

Figure III.59. Evolution de la force mesurée en fonction du temps sous différentes tensions d'activation.....126

Figure III.60. Représentation idéalisée en considérant les valeurs moyennes de l'essai d'activation des fibres sous différentes tensions.....126

Figure III.61. Evolution de la force développée par la fibre en fonction de la tension. 127

Figure III.62. Evolution du déplacement équivalent en fonction de la tension appliquée....128

Figure III.63. Evolution de la déformation équivalente en fonction du champ électrique. ..128

Figure III.64. Evolution de la force mesurée avec le temps lors d'essai d'activation avec différents taux de déformation initiaux.....129

Figure III.65. Evolution de la variation de force due à l'activation de la fibre en fonction du taux de déformation initial.....129

Figure IV.1. Schéma et convention d'axes pour l'établissement du modèle analytique.....135

Figure IV.2. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{tube} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α. 136

Figure IV.3. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{MCPF} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour des cœurs de rigidités différentes.....137

Figure IV.4. Différentielles des courbes $d_{31}^{MCPF} / d_{31}^{th} = f(\alpha)$ pour la détermination des rapports d'aspect optimums.....138

Figure IV.5. Evolution des maxima du coefficient piézoélectrique corrigé et des rapports d'aspect optimums avec le module d'élasticité longitudinal du cœur.....138

Figure IV.6. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{MCPF} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et du module d'élasticité du cœur Y_c.....139

Figure IV.7. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques v_f dans le cas d'un cœur "souple" et d'une matrice "souple".....140

Figure IV.8. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différents rapport d'aspect α dans le cas d'un cœur "souple" et d'une matrice "souple".....140

Figure IV.9. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques v_f dans le cas d'un cœur "souple" et d'une matrice "rigide".....141

Figure IV.10. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différents rapport d'aspect α dans le cas d'un cœur "souple" et d'une matrice "rigide"..141

Figure IV.11. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques v_f dans le cas d'un cœur "rigide" et d'une matrice "souple".....142

Figure IV.12. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différents rapports d'aspect α dans le cas d'un cœur "rigide" et d'une matrice "souple". 142

Figure IV.13. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques v_f dans le cas d'un cœur "rigide" et d'une matrice "rigide".....143

Figure IV.14. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différents rapports d'aspect α dans le cas d'un cœur "rigide" et d'une matrice "rigide". 143

Figure IV.15. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différentes rigidités de matrice.....144

Figure IV.16. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et du module d'élasticité de la matrice. 144

Figure IV.17. Synoptique de la mise en œuvre de la MEF, d'après [OÑATE 2009].....146

Figure IV.18. Définition d'un vecteur polarisation au niveau d'un nœud à l'aide d'un repère local en coordonnées cylindriques. 150

Figure IV.19. Fonctions d'interpolation linéaire et quadratique pour des éléments de surface à 4 côtés pour la discrétisation d'une surface à frontières non linéaires.....150

Figure IV.20. Surfaces à mailler à partir d'une section d'une fibre à cœur métallique. 151

Figure IV.21. Maillage par des éléments à 4 côtés d'un quart de fibre. 152

Figure IV.22. Maillage par des éléments triangulaires d'un quart de fibre. 153

Figure IV.23. Potentiels appliqués dans le cas de l'activation d'une fibre.....154

Figure IV.24. Application d'une force pour la détermination des forces de blocage.....155

Figure IV.25. Degrés de libertés représentatifs des symétries dans le cas d'une fibre seule. 156

Figure IV.26. Déplacements imposés pour des conditions d'encastrement.....156

Figure IV.27. Illustration des effets de bords sur le calcul de déformation d'une MCPF en conditions E-L. 157

Figure IV.28. Mailles déformées et champs de déplacements suivant z pour l'étude de la traction d'un barreau de 1×1×10 mm^3 en appliquant des forces au niveau des nœuds (à gauche) ou des pressions sur les surfaces des éléments (à droite). 158

Figure IV.29. Evolution du déplacement suivant z (Uz) le long d'une arrête et long de la diagonale pour une sollicitation de traction imposée à l'aide de forces (-- ●) ou de pressions (--◆).....159

Figure IV.30. Maillage déformé d'une fibre seule sous E=-1kV/mm et champ de déformation longitudinal Sz (amplification $\times 10^9$). 160

Figure IV.31. Courbe de fonctionnement d'une fibre tubulaire de 250 µm de diamètre avec un rapport d'aspect de 0,7. 160

Figure IV.32. Courbes de fonctionnement de fibres à cœur métallique (platine) de 250 µm de diamètre à rapports d'aspect variables. 161

Figure IV.33. Evolution du déplacement libre (à gauche) et de la force de blocage (à droite) en fonction du rapport d'aspect pour les MCPF à cœur en platine.....161

Figure IV.34. Volume élémentaire représentatif pour des fibres uniformément intégrées dans une structure. 162

Figure IV.35. Maillage déformé sous E=-1kV/mm et champ de déformation longitudinal Sz (amplification $\times 10^9$).....163

Figure IV.36. Courbes de fonctionnements de MCPF avec différents α intégrées uniformément dans une matrice époxyde. 164

Figure IV.37. Evolution du déplacement et de la force de blocage en fonction du rapport d'aspect pour des MCPF uniformément distribuées dans une matrice époxyde. 164

Figure IV.38. Courbes de fonctionnements de MCPF avec différents α intégrées uniformément dans une matrice CFRP UD. 165

Figure IV.39. Evolution du déplacement et de la force de blocage en fonction du rapport d'aspect pour des MCPF uniformément distribuées dans une matrice CFRP UD. 165

Figure IV.40. Déformée dans le plan XY d'une fibre intégrée à la surface d'une structure (amplification $0{,}1\times 10^9$).....166

Figure IV.41. Déformée dans le plan YZ d'une fibre intégrée à la surface d'une structure (amplification $0{,}1\times 10^9$).....166

Figure IV.42. Résultats en déplacements pour une matrice époxyde de 0,5 mm d'épaisseur. 167

Figure IV.43. Résultats en déplacements pour une matrice époxyde de 0,5 mm d'épaisseur et de 20 mm de longueur. 167

Figure IV.44. Résultats en déplacements pour une matrice époxyde de 1 mm d'épaisseur. .168

Figure IV.45. Résultats en déplacements pour une matrice CFRP UD de 0,5 mm d'épaisseur. 169

Figure IV.46. Résultats en déplacements pour une matrice CFRP UD de 1 mm d'épaisseur. 169

Figure IV.47. Schéma d'intégration d'une fibre active à la surface d'un stratifié formé de 3 plis en CFRP UD orientés 0°/90°/0°. 170

Figure IV.48. Résultats en déplacements pour une matrice CFRP UD (3 plis orientés à 0°) de 1,5 mm d'épaisseur. 171

Figure IV.49. Résultats en déplacements pour une matrice CFRP UD (3 plis orientés à 0°/90°/0°) de 1,5 mm d'épaisseur. 171

Figure IV.50. Déformée de flexion dans le plan YZ d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur en collant un patch époxyde/MCPF à sa surface (amplification $\times 0{,}5.10^9$).....172

Figure IV.51. Déformée de flexion dans le plan YZ d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur en collant deux patchs époxyde/MCPF sur ses surfaces (amplification $\times 0{,}5.10^9$). 173

Figure IV.52. Déformée longitudinale dans le plan YZ d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur en collant deux patchs époxyde/MCPF sur ses surfaces (amplification $\times 2.10^9$). 173

Figure IV.53. Déformée d'une structure avec fibre intégrée soumise à une flexion (amplification $\times 10^9$).....174

Figure IV.54. Répartition des potentiels créés aux nœuds de la surface interne d'une MCPF intégrée à la surface d'une structure soumise à de la flexion. 175

Figure IV.55. Déformée d'une structure (plan XZ) dans laquelle 5 fibres alignées sont intégrées et seule la fibre centrale est activée sous un champ électrique de -1 kV/mm (amplification $\times 10^9$).....175

Figure IV.56. Déformations et potentiels sur les fibres non actives lorsque la fibre centrale est activée par un champ électrique de -1 kV/mm (résultats sur les nœuds de l'axe médian [x, 0, L/2]). 176

Figure IV.57. Utilisation des MCPF en tant que capteur de défaut local. 177

Figure IV.58. Structure modélisée pour simuler le fonctionnement de capteur de défauts...177

Figure IV.59. Distribution des potentiels sur la surface interne de la fibre en présence d'un défaut proche de celle-ci. 178

Figure IV.60. Evolution des potentiels et de la déformation longitudinale aux nœuds de coordonnées [$x=R_{int}$, 0, z]. 179

Figure IV.61. Différence des potentiels calculés aux nœuds de coordonnées [$x=R_{int}$, 0, z] pour les calculs avec et sans défaut. 180

Figure IV.62. Comparaison entre l'évolution du coefficient piézoélectrique équivalent de la fibre, normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique, des calculs numériques et analytiques. 181

Figure IV.63. Comparaison entre l'évolution du coefficient piézoélectrique équivalent des fibres intégrées, normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique, des calculs numériques et analytiques. 182

Figure V.1. Représentation du dispositif d'extrusion imaginé avec l'extrudeuse, l'alimentation en fil et la filière de coextrusion. 188

Figure V.2. Vue de l'arrière de la filière avec le passe fil. 189

Figure V.3. Vue de l'avant de la filière. 189

Figure V.4. Vue de la sortie de l'extrudeuse vers le bac de refroidissement. 190

Figure V.5. Vue d'ensemble du dispositif de coextrusion. 191

Figure V.6. Fil d'Inconel 600® de 0,5 mm de diamètre. 195

Figure V.7. Fils d'Inconel 600® traités à 950°C pendant 4 heures en contact (à gauche) et sans contact (à droite) avec la poudre PZT. 196

Figure V.8. Diagramme binaire du système Cu_2O:PbO, d'après [CORKER 2000]. 198

Figure V.9. Analyse thermomécanique d'un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale. 199

Figure V.10. Analyse thermomécanique d'un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3. 200

Figure V.11. Analyse thermomécanique d'un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire de CP3. 200

Figure V.12. Photographie d'un échantillon massif carotté avec additifs (ajoutés par voie liquide au planétaire) frittés à 950°C pendant 6 heures. 201

Figure V.13. Diffractogramme d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 fritté à 950°C/6h. 202

Figure V.14. Diffractogramme d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire de CP3 fritté à 950°C/6h. 202

Figure V.15. Diffractogramme d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale et d'additifs préalablement broyés par attrition et ajoutés au mortier fritté à 950°C/6h. 203

Figure V.16. Microstructure d'un échantillon sans additifs frittés à 950°C pendant 6 heures. 205

Figure V.17. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale sans additifs fritté à 950°C/6h. 206

Figure V.18. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale sans additifs fritté à 950°C/6h. 206

Figure V.19. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 et fritté à 950°C/6h. 207

Figure V.20. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 et fritté à 950°C/6h. 207

Figure V.21. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon "clair" mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire (EtOH-2h) de CP3 et fritté à 950°C/6h. 208

Figure V.22. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon "clair" mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire (EtOH-2h) de CP3 et fritté à 950°C/6h. 208

Figure V.23. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon "foncé" mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire (EtOH-2h) de CP3 et fritté à 950°C/6h. 209

Figure V.24. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon "foncé" mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire (EtOH-2h) de CP3 et fritté à 950°C/6h. 209

Figure V.25. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 préalablement broyés et fritté à 950°C/6h. 210

Figure V.26. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 préalablement broyés et fritté à 950°C/6h. 210

Figure V.27. Evolution de la permittivité et des pertes diélectriques avec la température pour un échantillon élaboré à partir de poudre commerciale fritté à 1200°C. 212

Figure V.28. Evolution de la permittivité et des pertes diélectriques avec la température pour un échantillon élaboré à partir de poudre commerciale avec 3m% de CP préalablement broyés par attrition. 212

Figure V.29. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-Ag) 2 couches déposées à basse température frittées à 750°C/2h - 950°C/6h. 214

Figure V.30. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-Ag) 2 couches déposées à basse température frittées à 750°C/2h - 950°C/6h. 215

Figure V.31. Fil de $Ni_{80}Cr_{20}$ revêtu d'or avant (en haut) et après (en bas) dépôt d'une couche de PZT avec additifs et traité à 750°C pendant 2 heures. 215

Figure V.32. Fil de $Ni_{80}Cr_{20}$ revêtu d'or après dépôt d'une couche de PZT avec additifs et traité à 750°C pendant 2 heures, zooms sur l'interface fil nu/dépôt (à gauche) et sur une partie écaillée (à droite). 216

Figure V.33. Fil d'argent après le dépôt d'une couche de PZT avec additifs et consolidation à 750°C pendant 2 heures. 216

Figure V.34. Fil d'argent après le dépôt de 2 couches de PZT avec additifs et frittage à 950°C pendant 6 heures. 218

Figure V.35. Illustration du traitement laser d'un échantillon de bande PZT. 220

Figure V.36. Diffractogrammes-X obtenus sur des échantillons de bandes PZT crues et traitées au laser (60% P_{max}, v = 50 ou 100 mm/s, d = 40 µm). 224

Figure V.37. Microstructure observée en microscopie électronique à balayage d'une bande PZT traitée au laser à 300 W à une vitesse de 5 mm/s et une défocalisation de 85mm. 225

Figure V.38. Les différents types d'interactions avec les micro-ondes : de gauche à droite, transparent, opaque et absorbant. 227

Figure V.39. Schéma des profils de température pour des échantillons frittés par des méthodes coventionnelles (à gauche), par micro-ondes (au centre), par des méthodes "hybrides" (à droite) [OGHBAEI 2010]. 228

Figure V.40. Cavité micro-onde pour frittage hybride [XIE 1999]. 228

Figure V.41. Microstructure sur fracture d'un échantillon de bande PZT traité par micro-ondes à 950°C pendant 20 minutes. 230

Figure V.42. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon de bande PZT traité en micro-ondes à 950°C pendant 20 minutes. 231

Figure V.43. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon de bande PZT traité en micro-ondes à 950°C pendant 20 minutes. 231

Liste des tableaux

Tableau I.1. Exemples de matériaux actifs, d'après [LENGLET 2003].....6

Tableau I.2. Quelques grands noms associés à la piézoélectricité.....7

Tableau I.3. Eléments de symétrie des différentes classes [HAUSSONNE 2002].....8

Tableau I.4. Applications de composants piézoélectriques [HAUSSONNE 2002].....13

Tableau I.5. Valeurs typiques de quelques matériaux piézoélectriques, d'après [MOULSON 2003].....14

Tableau I.6. Substituants aliovalents courants [MOULSON 2003].....15

Tableau I.7. Propriétés modifiées par la substitution aliovalente dans le système PZT [JAFFE 1971].....16

Tableau I.8. Comportement pendant le frittage à 1200°C de céramique PLZT en fonction du site privilégié pour la formation des lacunes, d'après [KUSCER 2007].....17

Tableau I.9. Comparaison des céramiques PZT dites douces et dures [CHARON 2010].....19

Tableau I.10. Procédés d'élaboration des MCPF développés par différents auteurs. 30

Tableau II.1. Epaisseurs de dépôts PZT réalisés par différentes techniques.....53

Tableau II.2. Caractéristiques diélectriques et piézoélectriques mesurées sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) et fritté à 1200°C/6h. 62

Tableau II.3. Caractéristiques diélectriques et piézoélectriques mesurées sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 1200°C/6h. 66

Tableau II.4. Composition de la barbotine pour le procédé d'enduction. 67

Tableau II.5. Evolution de l'épaisseur déposée par la procédure standard d'enduction.....75

Tableau II.6. Epaisseurs moyennes et rapports d'aspect moyens obtenus sur des fibres bicouches réalisées sur deux diamètres d'âme différents avec la procédure modifiée.....77

Tableau II.7. Epaisseurs déposées en utilisant des barbotines à différentes températures. 80

Tableau III.1. Comparaison des indexations pour les échantillons massifs frittés dans des conditions de frittage identiques à celles des fibres. 88

Tableau III.2. Microstructures sur fracture des échantillons massifs mis en forme à partir de la poudre commerciale (PC) et de la poudre synthétisée (PS) dans les différentes conditions de frittage.....89

Tableau III.3. Comparaisons des valeurs atteintes par la polarisation rémanente et le champ coercitif mesurés sur des échantillons élaborés à partir de poudre synthétisée (PS) et commerciale (PC) dans différentes conditions de frittage après polarisation sous un champ électrique de 3 kV/mm.....97

Tableau III.4. Evolution des coefficients piézoélectriques (d_{33} et d_{31}) pour des échantillons élaborés à partir de poudre synthétisée (PS) et de poudre commerciale (PC) dans les différentes conditions de frittage.....97

Tableau III.5. Evolution de caractéristiques piézoélectriques (k_p et s_{11}^E) pour des échantillons élaborés à partir de poudre synthétisée (PS) et de poudre commerciale (PC) dans les différentes conditions de frittage. 97

Tableau III.6. Evolution des caractéristiques diélectriques (ϵ_r et $tan\ \delta$) pour des échantillons élaborés à partir de poudre synthétisée (PS) et de poudre commerciale (PC) dans les différentes conditions de frittage. 97

Tableau III.7. Microstructure d'une section de dépôt d'une fibre 2 couches après une consolidation à 950°C et frittage final à 1200°C. 100

Tableau III.8. Microstructure d'une section de dépôt d'une fibre 5 couches après quatre consolidations à 950°C et frittage final à 1200°C. 101

Tableau III.9. Valeurs des caractéristiques ferroélectriques mesurées à champ électrique équivalent voisin de 3 kV/mm pour les massifs et champ électrique maximal appliqué pour les fibres. 105

Tableau III.10. Valeurs des caractéristiques ferroélectriques mesurées à champ électrique équivalent voisin de 3 kV/mm. 110

Tableau IV.1. Eléments de dimensionnement issus du modèle analytique pour garantir 50% du coefficient piézoélectrique théorique. 145

Tableau IV.2. Propriétés mécaniques des matériaux élastiques utilisés. 149

Tableau IV.3. Propriétés du matériau piézoélectrique considéré. 149

Tableau IV.4. Comparaisons des algorithmes de maillage dans le cas du maillage d'une surface carrée. 153

Tableau IV.5. Données pour l'application d'une sollicitation identique en force et en pression. 158

Tableau IV.6. Comparaison de différents maillages sur le calcul des forces de blocage (cas d'une MCPF de 250 µm de diamètre avec α = 0,7). 162

Tableau IV.7. Déplacements U_y et U_z à mi-longueur en fonction de l'épaisseur et du matériau à déformer. 169

Tableau IV.8. Déplacements U_y et U_z à mi-longueur en fonction de l'épaisseur et du matériau à déformer. 172

Tableau IV.9. Résultats comparés des calculs numériques et analytiques pour les MCPF. . 181

Tableau IV.10. Résultats comparés des calculs numériques et analytiques pour les MCPF intégrées. 182

Tableau V.1. Caractéristiques techniques de l'extrudeuse. 192

Tableau V.2. Propriétés de matériaux potentiels pour l'âme centrale des fibres. 195

Tableau V.3. Evolution de la taille de grains après broyage par attrition des précurseurs utilisés comme additifs de frittage. 199

Tableau V.4. Densités mesurées sur des échantillons massifs frittés à 950°C/6h mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout de CP3 au mortier et au planétaire. 201

Tableau V.5. Microstructures des échantillons massifs sans et avec aides de frittage (CP3) observées au microscope électronique à balayage. 204

Tableau V.6. Grandeurs ferroélectriques mesurées à 3kV/mm pour les échantillons sans et avec additifs de frittage (CP3) frittés à 950/6. 205

Tableau V.7. Evolution des coefficients piézoélectriques (d_{33} et d_{31}) pour des échantillons avec et sans aditifs de frittage. 211

Tableau V.8. Evolution de caractéristiques piézoélectriques (k_p et s_{11}^E) pour des échantillons avec et sans aditifs de frittage. 211

Tableau V.9. Evolution des caractéristiques diélectriques (ϵ_r et $tan\ \delta$) pour des échantillons avec et sans aditifs de frittage. 211

Tableau V.10. Microstructure d'un dépôt de 2 couches de poudre céramique commerciale avec additifs de frittage (CP3) sur un fil de platine de 500µm après consolidation à 750°C et frittage à 950°C. 214

Tableau V.11. Microstructure d'un dépôt de 2 couches de poudre céramique commerciale avec additifs de frittage (CP3) sur un fil d'argent de 1000 µm après consolidation à 750°C et frittage à 950°C. 217

Tableau V.12. Résultats de modélisation de la déformation libre de MCPF à cœur en argent ou en platine avec des propriétés piézoélectriques équivalentes à un frittage à 1200°C ou 950°C. 219

Tableau V.13. Résumé des premiers tests effectués en frittage laser.....221

Tableau V.14. Microstructures observées sur les bandes traitées par laser à différentes vitesses (P = 100%P_{max}, d = 40µm).....222

Tableau V.15. Microstructures observées sur les bandes traitées par laser avec différents taux de recouvrement (P = 70%P_{max}, v = 500mm/s).....223

Tableau V.16. Microstructures observées sur les bandes traitées par laser avec différents vitesses à basse puissance (P = 60%P_{max}, d = 40 µm).....223

Tableau V.17. Quelques références sur l'application du frittage micro-ondes à des céramiques PZT. 229

Glossaire

Notations utilisées

PZT : $Pb(Zr, Ti)O_3$, titano zirconate de plomb

PLZT : $(Pb, La)(Zr, Ti)O_3$, titano zirconate de plomb dopé au lanthane

PZ : $PbZrO_3$, zirconate de plomb

PT : $PbTiO_3$, titanate de plomb

CP : mélange eutectique Cu_2O:PbO, additifs de frittage

CFRP UD : composite unidirectionnel carbone-époxyde

MCPF : fibres piézoélectriques à âme métallique (*metal core piezoelectrique fibres*)

AFC : *active fibre composite*

MFC : *macro fibre composite*

HFC : *hollow fibre composite*

PC : poudre commerciale

PS : poudre synthétisée au LMCPA

i m% : pourcentage massique du composé *i*

i mol% : pourcentage molaire du composé *i*

i vol% : pourcentage volumique du composé *i*

Grandeurs utilisées

Indices utilisés pour les matériaux :

- *c*, pour le cœur (métallique) des fibres ;
- *p*, pour la coque piézoélectrique ;
- *m*, pour la matrice dans laquelle sont intégrées les fibres (époxyde, composite carbone/époxyde, aluminium…).

S : tenseur des déformations, exprimé en unité de microdéformation, le µdef soit $\times 10^{-6}$

U : champ de déplacements, exprimé en m

T : tenseur des contraintes, exprimé en N/m²

F : vecteur des forces appliquées, exprimé en N

D : vecteur des déplacements électriques (de l'induction électrique), exprimé en C/m²

E : vecteur du champ électrique, exprimé en V/m

V : potentiel électrique, exprimé en V

Y_i : module d'élasticité (longitudinal) du matériau i, exprimé en N/m²

s^E : tenseur des constantes d'élasticités à champ électrique constant, exprimé en m²/N

d : tenseur des coefficients piézoélectriques, exprimé en C/N ou en m/V

k : tenseur des coefficients de couplage piézoélectrique

ϵ_r^T : tenseur des permittivités diélectriques relatives à contrainte constante

$tan\ \delta$: pertes diélectriques (tangente de l'angle de pertes), exprimées en %

P_r : polarisation rémanente, exprimée en C/m²

P_s : polarisation à saturation, exprimée en C/m²

E_c : champ coercitif, exprimé en V/m

Introduction générale

Introduction générale

Les actionneurs et les capteurs à base de céramiques piézoélectriques sont déjà largement utilisés dans de nombreuses applications, en particulier dans l'aéronautique. Pour subvenir aux nouveaux besoins qui sont apparus dans ce secteur suite aux contraintes économiques et environnementales, les recherches sur les matériaux électrocommandables redoublent d'intérêts : le développement d'actionneurs performants pour le contrôle structurel local de la forme d'une structure afin d'optimiser l'aérodynamique et de réduire les vibrations, le complément ou le remplacement des gouvernes, ou encore le développement de capteurs intégrables permettant d'avoir une connaissance précise et locale de l'état d'une structure pour augmenter la fiabilité et réduire les opérations de maintenance. Pour ces applications, les dispositifs à fibres piézoélectriques, et en particulier les fibres piézoélectriques à âme métallique, peuvent apporter une réponse adéquate pour les applications de contrôle de forme, de micro-positionnement, de contrôle actif de vibrations, de contrôle santé intégré, de récupération d'énergie *et cetera*.

L'objectif de la thèse sera de développer un procédé d'élaboration de fibres piézoélectriques à cœur métallique, de caractériser et de modéliser ces fibres pour évaluer l'intérêt pour leurs utilisations en tant qu'actionneur et/ou capteur, et de donner des pistes pour un développement à plus grande échelle de ce type de fibres.

Ce mémoire s'articule autour de 5 chapitres.

Le **chapitre I** explicite avec plus de détails le contexte et les enjeux du développement de nouveaux dispositifs électrocommandables pour l'industrie aéronautique (civile et militaire), avant de donner quelques notions de piézoélectricité pour introduire l'état de l'art sur les dispositifs à fibres piézoélectriques développés depuis les années 1990.

Le **chapitre II** s'intéresse particulièrement au développement d'un procédé d'élaboration de ces fibres. Le procédé d'enduction a été retenu pour sa rapidité et son faible coût de mise en œuvre. Ce procédé consiste à plonger l'âme métallique dans une suspension de particules céramiques piézoélectriques et de l'en retirer à vitesse constante pour y déposer une épaisseur de liquide. Un procédé multicouche a dû être développé pour atteindre les épaisseurs nécessaires au fonctionnement en tant qu'actionneur. Des recherches sont ainsi menées sur un traitement thermique adapté aux différentes couches pour ne pas dégrader le matériau piézoélectrique et sur la rhéologie de la barbotine pour réduire le nombre d'étapes d'enduction. L'optimisation du procédé avec les limitations introduites par le matériel et la composition de la barbotine utilisée permet de montrer qu'il fallait réaliser environ 8 couches à température ambiante pour atteindre l'épaisseur optimale sur un fil de platine.

Les caractérisations microstructurales et électromécaniques font l'objet du **chapitre III**. Dans un premier temps, des massifs piézoélectriques traités dans les mêmes conditions thermiques que les fibres sont caractérisés pour servir de référence, d'autant que leur caractérisation par des techniques usuelles est possible. Dans un second temps, les fibres sont caractérisées en termes de diffraction des rayons X, de microstructures et de cycles d'hystérésis. Il est montré que le comportement des fibres et des massifs est semblable, ce qui permet *a priori* d'espérer avoir les mêmes caractéristiques piézoélectriques, difficilement mesurables sur les fibres. C'est pour cela que des essais de caractérisations électromécaniques par vibrométrie laser et par micro-traction sont réalisés.

Le **chapitre IV** est dédié à la modélisation des fibres piézoélectriques à cœur métallique. Au vu de la difficulté d'obtenir les caractéristiques intrinsèques des fibres, la modélisation permet d'avoir un aperçu des propriétés atteignables par ces fibres. Dans un premier temps, un modèle analytique pour la déformation longitudinale est présenté pour dégager les facteurs importants qui vont conditionner les propriétés des fibres, à savoir :

- L'épaisseur du matériau céramique : il est nécessaire d'avoir suffisamment de matériau actif pour obtenir des déformations/efforts importants. Au-delà d'une certaine épaisseur, le gradient de champ électrique dans la couche céramique dû à la géométrie cylindrique fait chuter les propriétés. Il existe des épaisseurs optimales en fonction des propriétés élastiques du cœur de la fibre ;
- Les propriétés mécaniques du matériau structurel dans lequel les fibres actives vont être intégrées : l'utilisation d'une structure de plus en plus rigide réduit la capacité de déformation des fibres et/ou nécessite des fractions volumiques de fibres importantes pour avoir un effet suffisant.

Dans un second temps, la modélisation par éléments finis (code de calcul ATILA) permet d'estimer numériquement les propriétés des fibres en dehors des hypothèses simplificatrices du modèle analytique. La modélisation par éléments finis permet surtout d'envisager des configurations particulières pour estimer le potentiel de ces fibres, comme leur utilisation dans des composites typiques de l'industrie aéronautique.

Enfin, le **chapitre V** est consacré à la recherche des moyens à mettre en œuvre pour imaginer un développement à plus grande échelle de ce type de fibre. Dans ce sens, des travaux sont menés sur :

- la recherche d'un procédé continu : le procédé d'enduction est viable en continu, mais la recherche d'une seule opération de dépôt par procédé de coextrusion en utilisant un mélange de polymère et de particules céramiques est étudié ;
- la substitution du platine par d'autres matériaux : alliages hautes températures et métaux nobles. Il s'avère nécessaire de réduire la température de frittage pour limiter l'oxydation de la plupart des matériaux dans les conditions usuelles de frittage des céramiques PZT (>1000°C en atmosphère oxydante). L'utilisation d'additifs de frittage comme le mélange eutectique Cu_2O:PbO permet de réduire la température de frittage à 950°C et ce, en conservant 50% des propriétés piézoélectriques ;
- la réduction du temps de frittage. Le frittage de la céramique PZT en four conventionnel nécessite quelques heures de frittage. Pour réduire cette durée et espérer réaliser un traitement thermique en ligne, des procédés de frittage plus rapides comme le frittage laser et le frittage micro-ondes sont étudiés. Ces traitements s'accompagnent souvent d'une réduction de la température de frittage par l'accélération des mécanismes de frittage ou l'apparition de nouveau(x) mécanisme(s) ("effet micro-ondes").

Chapitre I

Les céramiques piézoélectriques dans l'aéronautique

Chapitre I BIBLIOGRAPHIE : LES CERAMIQUES PIEZOELECTRIQUES DANS L'AERONAUTIQUE

I.1. Contexte et enjeux

Une question relativement simple permet de rendre compte du contexte et des enjeux dans lesquels s'inscrivent ces recherches :

"A quoi ressembleront les aéronefs de demain ?"

Enverrons-nous dans le ciel des engins plus gros pour transporter plus de cargaisons ou de passagers, des engins plus rapides, des engins plus performants ou plus économiques ?

Pour répondre à ces questions, l'ONERA a été mandaté par l'EREA (Association des Etablissements de Recherche Aéronautiques Européens) pour être le coordinateur d'une étude sur l'avenir du transport aérien : l'étude ATS 2050 (Air Transport System) [ONERA 2012].

Par ailleurs, en 2013, le gouvernement français, par l'intermédiaire du ministère du redressement productif, a publié 34 plans susceptibles de relancer l'économie française parmi lesquels [MRP 2013]:

- l'avion électrique et la nouvelle génération d'aéronefs ;
- les nouveaux dirigeables et le transport de charges lourdes.

Le secteur aéronautique est encore et toujours un secteur porteur d'emplois, de recherches et d'innovations.

Il est intéressant de revenir sur l'histoire de l'aéronautique pour comprendre les développements futurs dans ce domaine. Depuis que l'homme a regardé le ciel et a vu les oiseaux voler, son désir de les rejoindre n'a jamais cessé. D'abord en tentant d'imiter les volatiles avec les ailes légères en toiles (XVIème siècle) puis en élaborant les premières structures plus légères que l'air (aérostats des frères Mongolfier au XVIIIème siècle et les ballons dirigeables au XIXème siècle). Le développement industriel qui intervient à la fin du XIXème et au début du XXème siècle permet l'avènement de l'aéronautique tel que cela est conçu aujourd'hui, c'est à dire des engins motorisés à carlingues "lourdes".

Le développement de l'aviation avec les conflits mondiaux du XXème siècle a permis d'envoyer des engins de plus en plus gros avec des moteurs de plus en plus puissants. Le contexte économique et écologique dans lequel se trouve ce secteur depuis les années 2000 a provoqué une inversion de tendance sur la recherche aéronautique : au lieu d'axer les recherches sur des engins plus rapides et/ou de plus grosses capacités, l'objectif numéro 1 est devenu l'économie et la rentabilité. Ainsi, de nombreux projets ont été abandonnés : l'avion de ligne supersonique de Boeing, le Sonic Cruiser, trop gourmand en kérosène. De même pour le cousin japonais du concorde, NEXST-1 ou encore les ailes volantes BWB (*Blended Wing Body*) de la NASA [NOUZILLE 2008].

Tous les projets s'orientent maintenant vers les économies de carburant : construire des avions plus légers en augmentant la part de matériaux composites, augmenter les performances des moteurs, consommer des biocarburants, travailler sur de nouveaux designs *et cetera* [BLANC 2013, NOUZILLE 2008, ONERA 2011]. Par exemple, le développement par Airbus des winglets, parties recourbées à l'extrémité des ailes (Figure I.1), depuis l'A300 et maintenant sur l'A380 permet de "casser" les tourbillons qui se forment en bout d'ailes

pendant le vol créant ainsi une trainée aérodynamique. La suppression de ces tourbillons permet de réduire la consommation de l'avion et également de réduire les émissions sonores.

Figure I.1. Exemple de winglets sur un gros porteur d'Airbus (www.airbus.com).

L'ONERA a participé au développement des winglets de l'avion d'affaires Falcon 7X de Dassault (Figure I.2), ce qui a permis de porter la distance franchissable à 11 000 kilomètres [GATARD 2011].

Figure I.2. Falcon 7X de Dassault (www.dassault-aviation.com).

Aujourd'hui, de nouveaux projets concernent par exemple le design de la gouverne (projet Sharklets® d'Airbus) ou le *morphing* des winglets pour imiter les extrémités des ailes des volatiles comme illustré sur la Figure I.3.

Figure I.3. Légèreté, souplesse et efficacité : l'aile d'oiseau (pygargue à tête blanche ici).

Plus généralement, l'utilisation du *morphing* pour le pilotage de la géométrie des surfaces est une voie importante d'optimisation énergétique dans les différentes phases de vol et de réduction des sources acoustiques [ONERA 2011]. La Figure I.4 présente les parties mobiles des commandes de vols actuelles sur un gros porteur. L'utilisation de matériaux intelligents pour modifier le profil d'une aile permet de gérer en temps réel l'écoulement sur la voilure en la déformant à l'aide de microdéformations locales. Ainsi, le rendement aérodynamique peut être optimisé dans les différentes phases de vols, au bénéfice de la consommation ou de la contrôlabilité. Ce principe suppose de surveiller en temps réel l'état de forme d'une voilure, ce qui implique d'utiliser des capteurs intelligents également. C'est le principe du contrôle santé intégré, qui est également très intéressant pour limiter les opérations de maintenance en connaissant localement et en temps réel l'état de la structure.

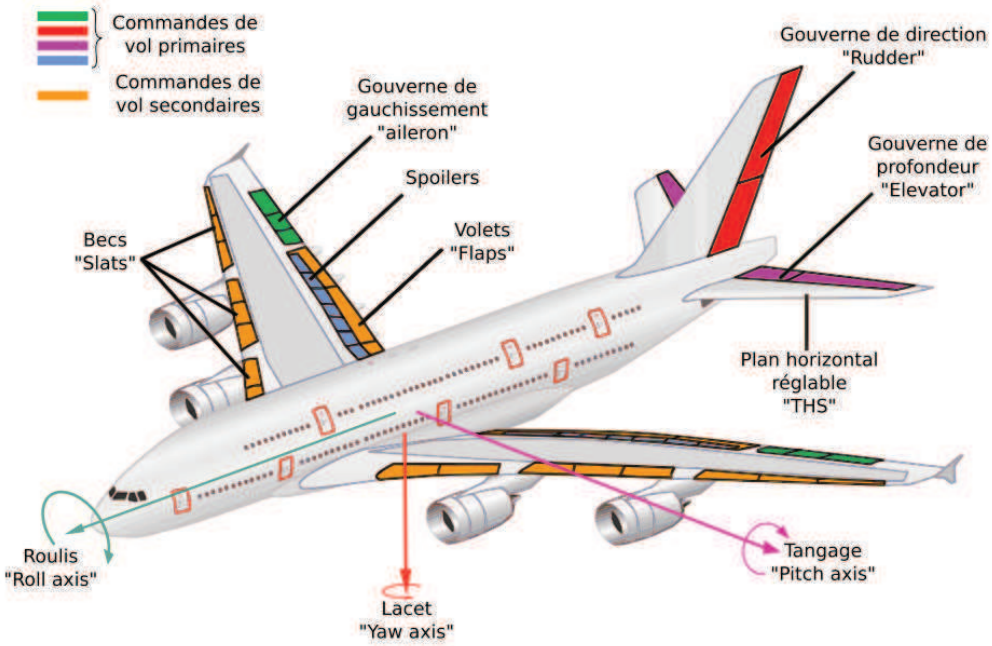


Figure I.4. Commandes de vols sur un A380 [DELEHELLE 2008].

Le développement d'un avion tout électrique fait également partie des préoccupations du secteur aéronautique. Outre la substitution des énergies fossiles pour la propulsion, le remplacement, total ou partiel, du système hydraulique dans les appareils permettrait de

nouvelles avancées en termes de gain de masse et d'optimisation globale du vol : les gouvernes actives distribuées, les commandes de trains d'atterrissage (dont le système de secours est déjà électrique), l'entrainement électrique des roues pendant les phases de roulage, le *morphing* local déjà évoqué, la réduction de vibration (gain aérodynamique, confort des passagers, furtivité…), la récupération d'énergie *et cetera*.

Tous ces sujets nécessitent d'utiliser des matériaux électrocommandables intégrables dans la structure. Il existe de nombreux matériaux utilisables comme matériau actif. Le Tableau I.1 présente une liste de certains d'entre eux avec leurs propriétés respectives.

Tableau I.1. Exemples de matériaux actifs, d'après [LENGLET 2003].

	PZT5H	**PVDH**	**Composite piézo-polymère**	**PMN**	**Terfenol D**	**Nitinol**
Matériau	Céramique piézoélectrique	Polymère piézoélectrique	Composite à fibres actives	Electrostrictif	Magnétostrictif	AMF
Masse volumique ($kg.m^{-3}$)	7500	1780	4650	7800	9250	7100
Rigidité (GPa)	61	2	35	65	30	28 m** 90 a**
Déformation maximale	0,13%	0,07%	0,18%	0,10%	0,20%	2% 8%
Densité d'énergie*	6,83	0,28	12,20	4,13	6,42	252 4032
Hystérésis	10%	>10%	15%	<1%	<2%	≫
Température de fonctionnement	-20 → 200°C	-70 → 70°C	0 → 200°C	0 → 40°C	-20 → 180°C	-100 → 200°C
Bande passante	100 kHz	100 kHz	>10 kHz	100 kHz	<10 kHz	<5 Hz

* unité non indiquée
** m : phase martensitique ; a : phase austénitique

Les matériaux piézoélectriques, et en particulier sous forme de composite à fibres actives, représentent donc un intérêt majeur : ce sont des matériaux électrocommandables susceptibles d'être utilisés comme actionneur ou comme capteur. Leur densité d'énergie importante avec un encombrement réduit, fonctionnant sur une large gamme de températures et de fréquences font des matériaux piézoélectriques des candidats de choix pour les applications telles que la déformation de structures, le positionnement, l'amortissement de vibrations et le contrôle de santé intégré.

Le point suivant va donc traiter plus particulièrement de la piézoélectricité avant d'examiner les différents dispositifs utilisant des fibres piézoélectriques.

I.2. Généralités sur la piézoélectricité

La place du matériau dans le développement des fibres piézoélectriques à âme métallique étant fondamental, les points qui suivent permettent d'aborder quelques aspects historiques, fondamentaux et pratiques des matériaux piézoélectriques.

I.2.1. A la découverte de la piézoélectricité

La première observation de l'effet piézoélectrique date de 1817. C'est l'abbé René Just Haüy, fondateur avec Jean-Baptiste Romé de la cristallographie géométrique, qui l'observe en travaillant sur les propriétés électriques que possédaient certains minéraux lorsqu'ils sont soumis à des contraintes extérieures (contrainte mécanique dans le cas de la piézoélectricité).

L'étude de la piézoélectricité se poursuit aussi bien sur le plan théorique qu'expérimental avec les frères Curie en 1880. Leur étude sur la symétrie des cristaux a permis de déterminer les conditions nécessaires pour qu'un matériau puisse être piézoélectrique. C'est à eux que l'on attribue la découverte de l'effet piézoélectrique direct définit comme suit :

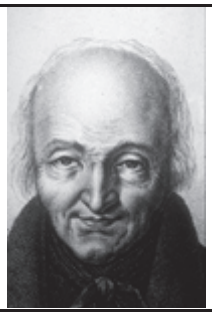
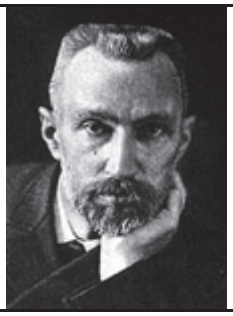
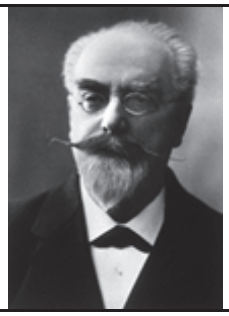
- effet direct : l'action d'une contrainte mécanique selon une direction d'un cristal piézoélectrique génère une/des charge(s) électrique(s).

En 1881, en s'appuyant sur les travaux des frères Curie, le physicien français Gabriel Lippmann suppose l'existence de l'effet réciproque. Cette hypothèse est confirmée expérimentalement la même année par les frères Curie. Cet effet peut se définir comme suit :

- effet inverse : l'application d'un champ électrique au sein d'un cristal piézoélectrique génère un déplacement mécanique (ou une déformation).

La formalisation précise de la piézoélectricité fut introduite en 1910 grâce au physicien allemand Waldemar Voigt dont l'écriture tensorielle permet de décrire les comportements électrique et élastique des cristaux.

Tableau I.2. Quelques grands noms associés à la piézoélectricité.

			
R.J. Haüy	P. Curie	J. Curie	G. Lippmann

L'utilisation de la piézoélectricité date de la première guerre mondiale. En effet, Paul Langevin a utilisé la piézoélectricité pour l'émission sous-marine d'ultrasons afin de détecter des sous-marins. Quelques temps après, W.P. Mason (USA) utilise les cristaux piézoélectriques comme filtres fréquentiels dans la téléphonie et la radio diffusion.

C'est en 1944 qu'Arthur Robert Von Hippel (USA) montre que le titanate de barium ($BaTiO_3$) est à la fois ferroélectrique et piézoélectrique, suite à l'étude des propriétés diélectriques de celui-ci. Cette découverte conduira à la réalisation des premiers transducteurs piézoélectriques en polarisant des céramiques ferroélectriques.

Par la suite, le champ d'applications et les recherches sur les céramiques piézoélectriques n'ont cessé de croître. Le domaine de la recherche sur ce sujet est encore aujourd'hui très actif. Les dispositifs à caractère piézoélectrique se trouvent de nos jours dans les appareils ménagers, la téléphonie, l'électronique, l'automobile, l'aéronautique, l'équipement médical *et cetera*.

I.2.2. L'effet piézoélectrique

L'effet piézoélectrique macroscopique provient en réalité de la structure cristalline du matériau considéré, c'est-à-dire de l'agencement spatial des ions constitutifs du matériau. La cristallographie recense tous les agencements possibles et elle permet de classer n'importe quel matériau parmi 32 classes cristallines reprises dans la Figure I.5. Il est ainsi possible de constater que seulement 20 de ces 32 classes sont piézoélectriques.

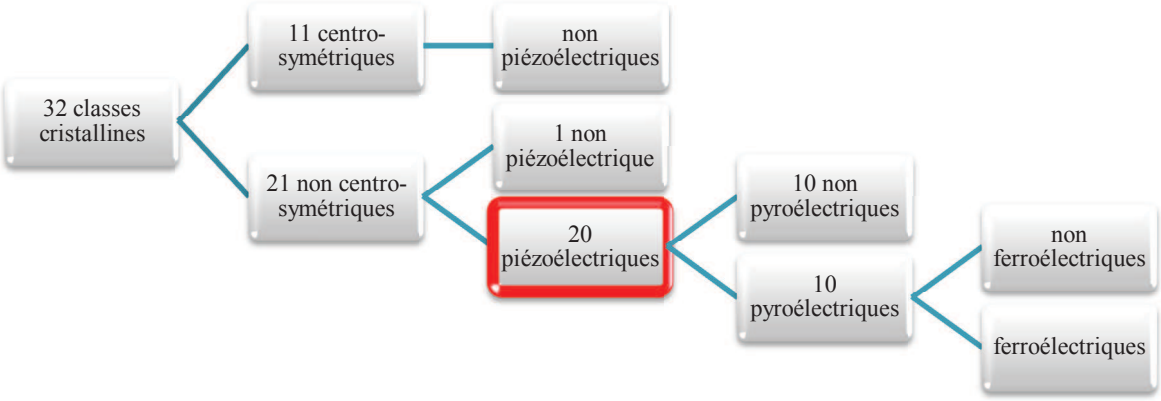


Figure I.5. Organigrammes des différentes classes cristallines.

De manière plus rigoureuse, ce classement fait appel à toutes les combinaisons distinctes possibles entre les éléments de symétrie que sont les plans, les axes et les centres de symétries [HAUSSONNE 2002]. En utilisant la notation d'Hermann-Mauguin, on peut qualifier chaque classe par rapport aux éléments de symétrie qui la composent comme le montre le Tableau I.3.

Tableau I.3. Eléments de symétrie des différentes classes [HAUSSONNE 2002].

Axes optiques	Système cristallin	Classes de symétries centrosymétriques		Classes de symétrie non centrosymétriques				
				Polaires		Non polaires		
2 axes	Triclinique	$\bar{1}$		1		Aucune classe		
	Monoclinique	2 ou m		2	m	Aucune classe		
	Orthorhombique	mmm		2mm		222		
1 axe	Quadratique	4 ou m	4 ou mmm	4	4mm	$\bar{4}$	$\bar{4}\bar{2}m$	22
	Rhomboédrique	$\bar{3}$	$\bar{3}m$	3	3m	32		
	Hexagonal	6 ou m	6 ou mmm	6	6mm	$\bar{6}$	$\bar{6}m2$	622
Isotrope optiquement	Cubique	m3	m3m	Aucune classe		432	$\bar{3}m$	23
Nombre total de groupes		11 groupes		10 groupes		11 groupes		

Puisque l'apparition de l'effet piézoélectrique est liée à l'existence de propriétés polaires, on comprend alors que les classes centrosymétriques sont de fait non piézoélectriques. La Figure I.6 permet de mieux appréhender la limitation imposée par les groupes centrosymétriques : l'application d'une contrainte sur un système "carré" ne génère aucune polarité alors que dans le cas d'un système "triangulaire", les déplacements des barycentres des charges positives et négatives donnent naissance à un moment dipolaire.

Il faut bien noter que l'apparition de moments dipolaires dépend de la direction de la contrainte appliquée. Si on imagine le même cas de figure sur un système hexagonal, l'application d'une contrainte sur deux côtés opposés ne génère pas de dissymétrie alors que si elle est appliquée entre deux sommets de l'hexagone, il y aura apparition d'un dipôle, comme représenté sur la Figure I.7.

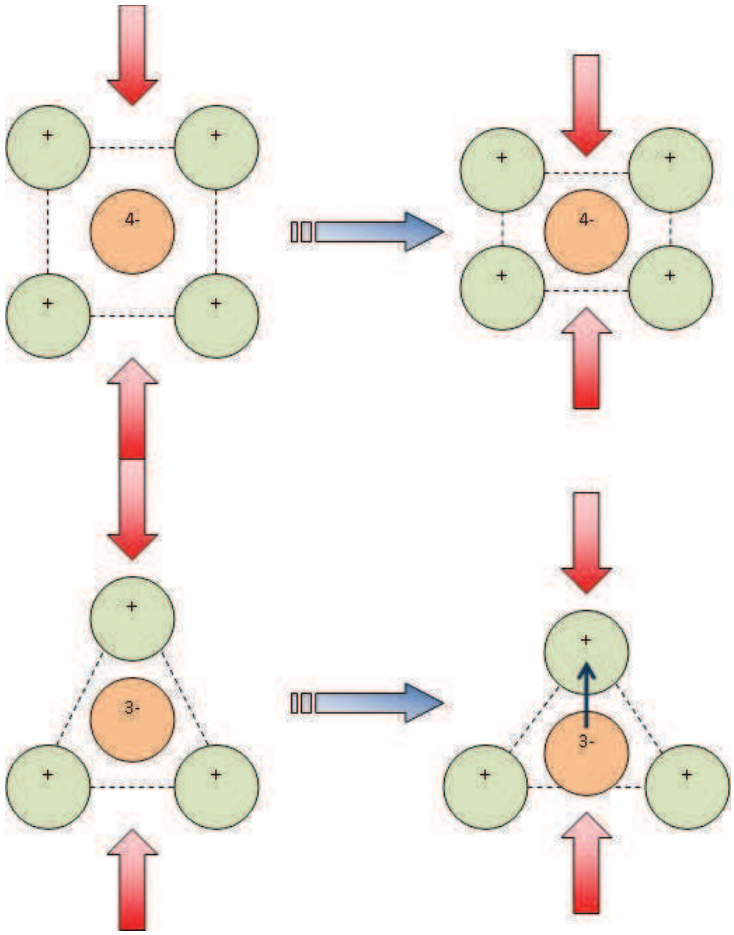


Figure I.6. Existence d'une polarisation induite dans les groupes non centrosymétriques.

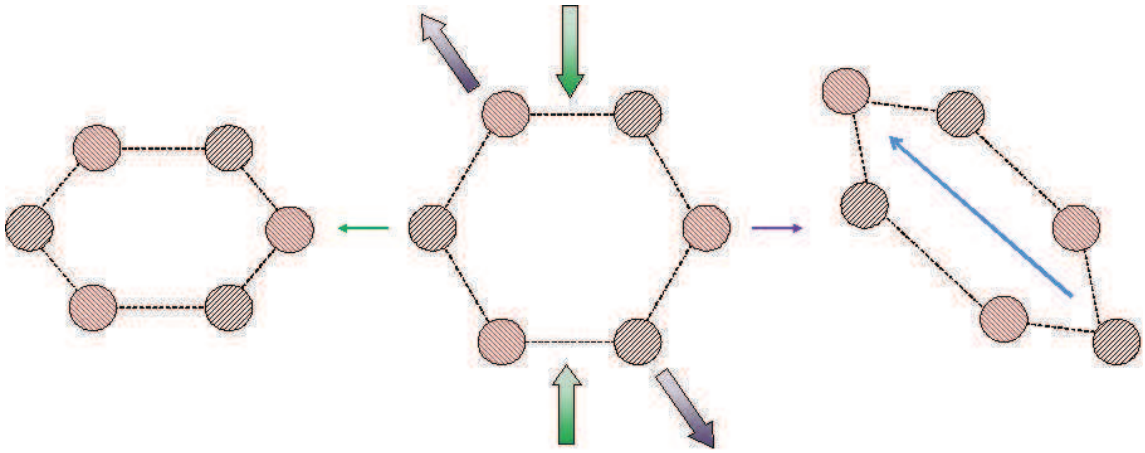


Figure I.7. Influence de la direction de la contrainte appliquée sur l'existence d'un moment dipolaire dans une maille hexagonale.

Sur les 21 classes restantes, toutes sont piézoélectriques à l'exception de la classe cubique (432) dont les éléments de symétries ne permettent pas de présenter de caractéristiques polaires. Ainsi, les 20 classes restantes possèdent au moins un axe polaire et ces matériaux

peuvent alors présenter des propriétés polaires telles la piézoélectricité, la pyroélectricité et la ferroélectricité.

La structure cristalline la plus représentative des matériaux piézoélectriques est la structure pérovskite qui se décrit par une maille cubique dont les coins sont occupés par de larges cations (A), les cations les plus petits sont au centre de la maille (B) et les anions oxygènes (ou autres comme des fluorures, des chlorures, des carbures, des nitrures, des sulfures…) occupent le centre des faces, comme représenté sur la Figure I.8.

Le réseau est formé par des liaisons entre les ions oxygènes des différentes mailles tels qu'ils définissent des octaèdres. Les cations les plus petits sont alors en site octaédrique et les plus gros en site dodécaédrique.

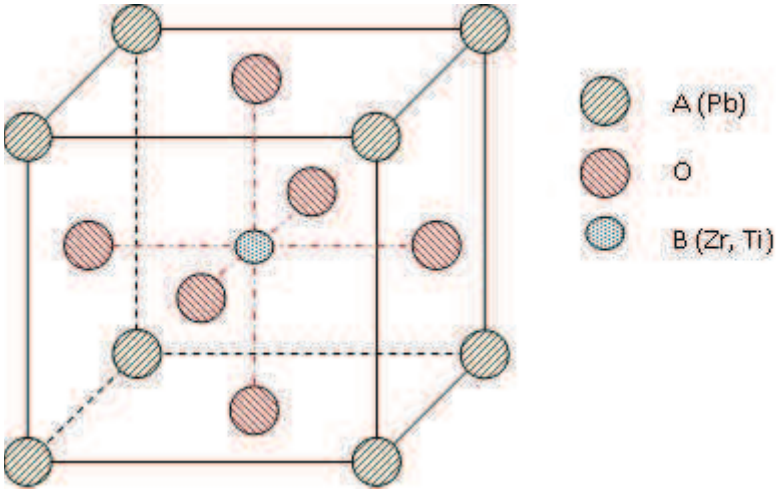


Figure I.8. Représentation d'une structure pérovskite ABO_3.

Une représentation équivalente consiste à représenter la maille avec les petits cations aux coins et les gros cations au centre de la maille. Dans ce cas, les oxygènes sont aux centres des arêtes. Cette représentation nécessite plusieurs mailles pour rendre compte de l'agencement des ions, notamment des octaèdres formés les anions oxygènes.

De ce fait, pour que la structure pérovskite soit non centrosymétrique, il est nécessaire que la maille soit déformée pour supprimer certaines symétries du réseau cubique. Le facteur de tolérance de Goldschmidt permet d'évaluer l'écart par rapport à cette structure idéalisée pour laquelle ce facteur vaut 1 en considérant la formule suivante :

$$t = \frac{R_A + R_O}{(R_B + R_O)\sqrt{2}} \qquad (I.1)$$

En pratique, un facteur t variant entre 0,95 et 1 décrit les structures cubiques. Des structures plus distordues mais non ferroélectriques correspondent à des valeurs plus faibles alors que des valeurs de t supérieures à 1 décrivent des structures à tendance ferroélectrique.

I.2.3. Les équations de la piézoélectricité

Les propriétés d'un cristal sont gouvernées par des grandeurs physiques telles que la contrainte T, la déformation S, le champ électrique E, l'induction électrique D, l'entropie Γ et la température Θ. Leurs interactions, responsables de certains effets (comme l'effet piézoélectrique), sont représentées sur la Figure I.9.

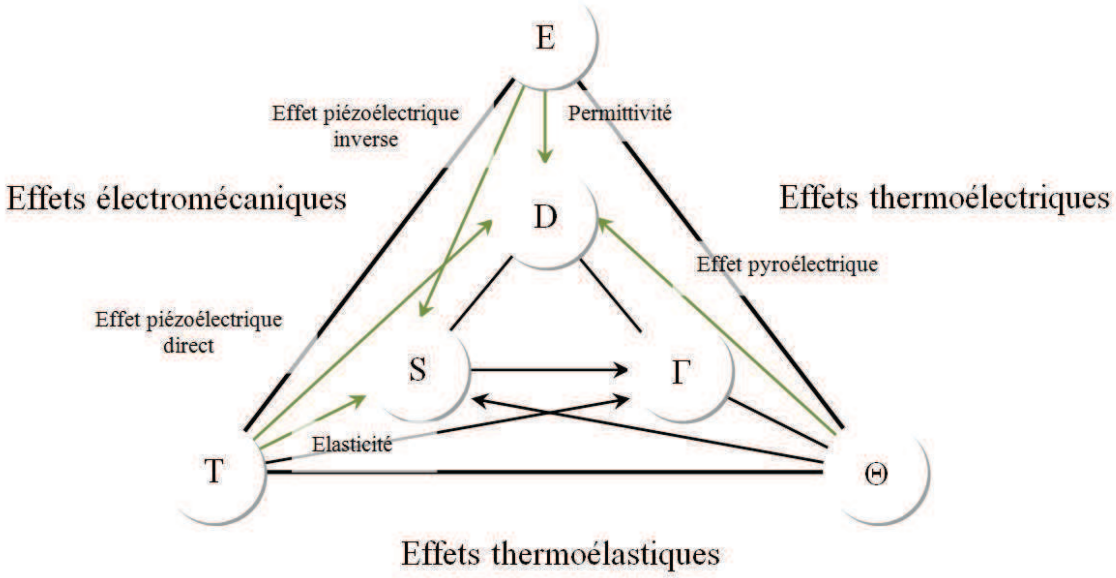


Figure I.9. Liens entre les différentes grandeurs physiques.

En négligeant les effets de l'entropie et de la température, les interactions entre les grandeurs électriques et mécaniques décrivant la piézoélectricité donnent lieu aux équations d'états suivantes :

$$D = d.T + \varepsilon^T.E$$
$$S = s^E.T + d.E \qquad (I.2)$$

On peut également écrire les équations d'états en termes d'induction électrique et de contrainte, selon l'usage :

$$E = -g.T + \frac{D}{\varepsilon^T}$$
$$S = s^D.T + g.D \qquad (I.3)$$

Par ailleurs, les coefficients piézoélectriques d et g sont liés par la relation :

$$\frac{d}{g} = \varepsilon^T \qquad (I.4)$$

Ces équations font intervenir des grandeurs tensorielles dont les indices font références à la convention d'axes suivante dans laquelle l'axe 3 est orienté selon le vecteur polarisation :

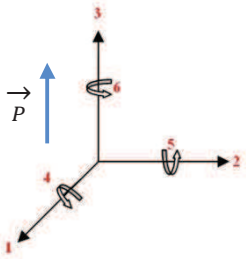


Figure I.10. Convention d'axes en piézoélectricité.

Ainsi, pour une céramique polycristalline polarisée selon l'axe 3 (classe de symétrie ∞mm), la relation I.2 s'écrit (en utilisant les indices contractés de Voigt) [BENT 1994] :

$$\begin{vmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \\ S_4 \\ S_5 \\ S_6 \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} s_{11}^E & s_{12}^E & s_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ s_{12}^E & s_{11}^E & s_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ s_{13}^E & s_{13}^E & s_{33}^E & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & s_{55}^E & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & s_{55}^E & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & s_{66}^E \end{vmatrix} \times \begin{vmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{vmatrix} + \begin{vmatrix} 0 & 0 & d_{31} \\ 0 & 0 & d_{31} \\ 0 & 0 & d_{33} \\ 0 & d_{15} & 0 \\ d_{15} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \times \begin{vmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{vmatrix} \qquad (\text{I.5})$$

$$\begin{vmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_3 \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{vmatrix} \times \begin{vmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{vmatrix} + \begin{vmatrix} \varepsilon_{11}^T & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{11}^T & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33}^T \end{vmatrix} \times \begin{vmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{vmatrix} \qquad (\text{I.6})$$

Les coefficients piézoélectriques d_{ij} représentent ainsi la capacité de déformation du matériau sous un champ électrique donné ou réciproquement, la capacité du matériau à créer des charges électriques sous une contrainte mécanique. Les unités de ces coefficients sont le m/V ou le C/N.

La piézoélectricité provient donc d'un couplage électromécanique, c'est-à-dire d'une conversion de l'énergie mécanique (ou électrique) en énergie électrique (ou mécanique). Les coefficients de couplage expriment ainsi l'efficacité de cette conversion énergétique et sont définis d'après la relation I.7.

$$k_{ij}^2 = \frac{W_{restituée}}{W_{sollicitation}} \qquad (\text{I.7})$$

En termes de choix de matériau piézoélectrique pour des applications telles que les actionneurs, il convient donc d'opter pour des coefficients piézoélectriques et des coefficients de couplage les plus élevés possibles afin de maximiser l'efficacité du matériau.

I.2.4. Les matériaux piézoélectriques

I.2.4.1. Généralités

Les matériaux piézoélectriques, à l'état naturel comme le sel de Rochelle ou le quartz, ou les céramiques techniques comme les titano-zirconate de plomb (PZT), sont utilisés dans diverses gammes d'applications reprises dans le Tableau I.4.

Tableau I.4. Applications de composants piézoélectriques [HAUSSONNE 2002].

Générateurs (mV → kV)	Moteurs (µm → mm)
hydrophones microphones cellules de pick-up allume-gaz accéléromètres générateurs de puissance crayons piézoélectriques matériaux composites	macro et micro-actionneurs haut-parleurs, tweeters, buzzers obturateurs d'appareils photo moteurs d'objectifs autofocus imprimantes à jets d'encres sondeurs de bancs de poissons micropositionneurs commande de valves pompes positionneurs de têtes vidéo nébuliseurs moteurs ultrasons relais
Moteurs/Générateurs	**Résonateurs (kHz → MHz)**
sonar tests non destructifs ultrasons à applications médicales sondeurs de bancs de poissons filtres transformateurs piézoélectriques	nettoyage ultrasons soudage ultrasons transformateurs lignes à retard

Le Tableau I.5 présente quelques valeurs caractéristiques de matériaux piézoélectriques. Il présente notamment la température de Curie T_c, au-delà de laquelle le matériau perd ses propriétés piézoélectriques suite à une transition de phase vers un état paraélectrique, les propriétés diélectriques (ϵ_r et $tan\ \delta$), les constantes de couplages k_{ij} qui traduisent le rapport entre l'énergie restituée (mécanique ou électrique) et l'énergie reçue (électrique ou mécanique respectivement), les constantes piézoélectriques d_{ij} qui traduisent la réponse du matériau sous une sollicitation, le facteur de qualité mécanique Q_m qui traduit l'influence des pertes électriques et mécaniques dans le matériau, et enfin, les constantes élastiques s^E_{ij}.

Tableau I.5. Valeurs typiques de quelques matériaux piézoélectriques, d'après [MOULSON 2003].

Propriété	Unité	α-Quartz[a]	$BaTiO_3$	PZT A[b]	PZT B[b]	$PbNb_2O_6$	$Na_{1/2}K_{1/2}NbO_3$	$PbTiO_3$
Densité	$kg.m^{-3}$	2,65	5,7	7,9	7,7	5,9	4,5	7,12
Tc	°C		130	315	220	560	420[d]	494
ε_{r33}^{X}		4,6	1900	1200	2800	225	400	203
ε_{r11}^{X}			1600	1130	-	-	600	-
tan δ	10^{-3}		7	3	16	10	10	22
k_p			0,38	0,56	0,66	0,07	0,45	-
k_{31}			0,21	0,33	0,39	0,045	0,27	0,052
k_{33}			0,49	0,68	0,72	0,38	0,53	0,35
k_{15}			0,44	0,66	0,65	-	-	0,36
k_{jk}		(11)[c] 0,1 (14)[c] 0,05						
d_{31}			-79	-119	-234	-11	-50	-7,4
d_{33}	$pC.N^{-1}$		190	268	480	80	160	47
d_{15}			270	335	-	-	-	-
d_{jk}		(11)[c] 2,3 (14)[c] 0,67						
Q_m		$> 10^6$	500	1000	50	11	240	326
s_{11}^{E}		12,8	8,6	12,2	14,5	29	9,6	11
s_{12}^{E}	μm^2N^{-1}	-1,8	-2,6	-4,1	-5,0	-	-	-
s_{13}^{E}		-1,2	-2,9	-5,8	-6,7	-5 à -8	-	-
s_{33}^{E}		9,6	9,1	14,6	17,8	25	10	11
s_{44}^{E}		20,0	23	32	-	-	-	-

[a] Monocristal.
[b] PZT A et PZT B sont deux compositions PZT illustrant en particulier, la gamme Q_m pouvant être obtenue.
[c] Les nombres entre parenthèses indiquent les directions jk.
[d] La dépolarisation se produit néanmoins à 180°C.

Bien que cette liste ne soit pas exhaustive, elle met en évidence le caractère particulier des matériaux PZT. D'une part, les coefficients de couplage et les constantes piézoélectriques sont bien plus élevés que la plupart des autres matériaux, et d'autre part, les propriétés peuvent être modifiées en fonction des applications en modifiant la composition du matériau. Le point suivant s'intéresse de plus près à la famille des matériaux PZT.

I.2.4.2. Les matériaux PZT

Les matériaux PZT sont en réalité des solutions solides des composés $PbZrO_3$ (PZ) et $PbTiO_3$ (PT). Ces solutions solides cristallisent dans le système pérovskite avec les ions Pb^{2+} en site A et les ions Ti^{4+} et Zr^{4+} en site B.

La Figure I.11 présente le diagramme de phases de ce système. Les phases qui y sont recensées sont abrégées comme suit :

- A_o : phase orthorhombique antiferroélectrique (Pba2) ;
- $F_{R(LT)}$: phase rhomboédrique ferroélectrique à basse température (R3c) ;
- $F_{R(HT)}$: phase rhomboédrique ferroélectrique à haute température (R3m) ;
- F_T : phase quadratique ferroélectrique (P4mm) ;
- P_C : phase cubique paraélectrique (Pm3m).

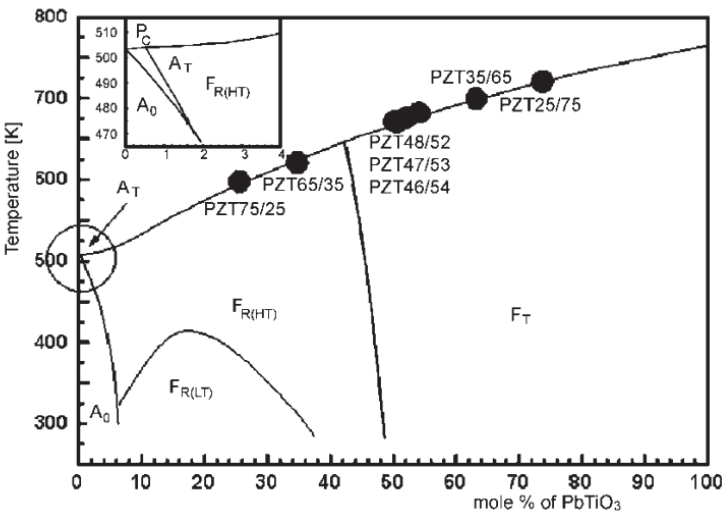


Figure I.11. Diagramme de phases du système PZT [ZACHARIASZ 2007].

Les propriétés piézoélectriques varient de part et d'autre de la zone de transition entre le domaine rhomboédrique et quadratique. Dans cette zone, appelée phase morphotropique, où deux systèmes cristallins différents coexistent (on parle également de l'existence d'une troisième phase monoclinique pour accommoder les deux systèmes cristallins [NOHEDA 2000]), l'accroissement significatif de l'énergie libre conduit à des propriétés piézoélectriques exceptionnelles.

Par ailleurs, il est possible de substituer les ions du système PZT par des ions de même valence (isovalents) ou de valences différentes (aliovalents). Les ions isovalents modifient uniquement les paramètres de la maille alors que les ions aliovalents créent en plus des lacunes. Le Tableau I.6 donne quelques ions aliovalents couramment utilisés pour la substitution dans le système PZT.

Tableau I.6. Substituants aliovalents courants [MOULSON 2003].

Donneur	Site A	La^{3+}, Ba^{3+}, Nd^{3+}
	Site B	Nb^{5+}, Ta^{5+}, Sb^{5+}
Accepteur	Site A	K^{+}, Rb^{+}
	Site B	Co^{3+}, Fe^{3+}, Sc^{3+}, Ga^{3+}, Cr^{3+}, Mn^{3+}, Mn^{2+}, Mg^{2+}, Cu^{2+}

D'après Jaffe, les lacunes créées par les ions aliovalents sont soit en site A, soit en site O [JAFFE 1971]. Ces deux types de lacunes sont à l'origine de propriétés distinctes, résumées dans le Tableau I.7.

Tableau I.7. Propriétés modifiées par la substitution aliovalente dans le système PZT [JAFFE 1971].

	Lacunes en site A	Lacunes en site O
Permittivité relative	↗	↘
Pertes diélectriques	↗	↘
Compliance élastique	↗	-
Facteur de qualité mécanique	↘	↗
Couplage électromécanique	↗	↗
Champ coercitif	↘	↗
Résistivité électrique	↗↗	↘
Vieillissement	↘	-
Coloration	jaune, translucide	noire, opaque
Photosensibilité	noircissement à la lumière	insensible

D'autre part, il a été constaté de manière générale que les additifs qui créent des lacunes en site O provoquent un effet d'inhibition de croissance de grains durant le frittage attribuable à la contraction du réseau qui rend plus difficile la diffusion des espèces [JAFFE 1971].

La composition et le dopage des céramiques PZT permet ainsi de moduler les propriétés en fonction des besoins rencontrés.

I.2.4.3. Le dopage par le lanthane

Les céramiques PZT dopées au lanthane, notées PLZT, sont largement utilisées pour leur propriétés électro-optiques : biréfringence fonction du gradient de tension, photoconductivité, renversement des domaines et phénomènes d'émission d'électrons activés par les photons, effets photochromiques, propriétés photomécaniques et photovoltaïques *et cetera* [HAUSSONNE 2002]. Pour ce type d'applications, le pourcentage de lanthane est relativement important. Néanmoins, pour des teneurs plus faibles (<9 mol.%), les propriétés piézoélectriques sont parmi les meilleures recensées à ce jour en termes de coefficients piézoélectriques (d_{33} jusque 800 $\times 10^{-12}$ m/V) et de couplage électromécanique (k_{33} ~ 75%) pour une formulation à 7 mol.% de lanthane et un rapport Zr/Ti égale à 0,60 [HAUSSONNE 2002, KONG 2008].

L'ion lanthane La^{3+} substitue l'ion Pb^{2+} en site A pour des pourcentages molaires de lanthane jusqu'à 10 mol.% [TANG 2007]. Les rayons cationiques étant similaires ($r_{(Pb2+)}$=1.19 Å et $r_{(La3+)}$=1.16 Å), c'est surtout la création de lacunes qui est responsable de la modification des propriétés du matériau.

La Figure I.12 présente le diagramme de phase à température ambiante du système PZT en fonction du pourcentage de lanthane introduit.

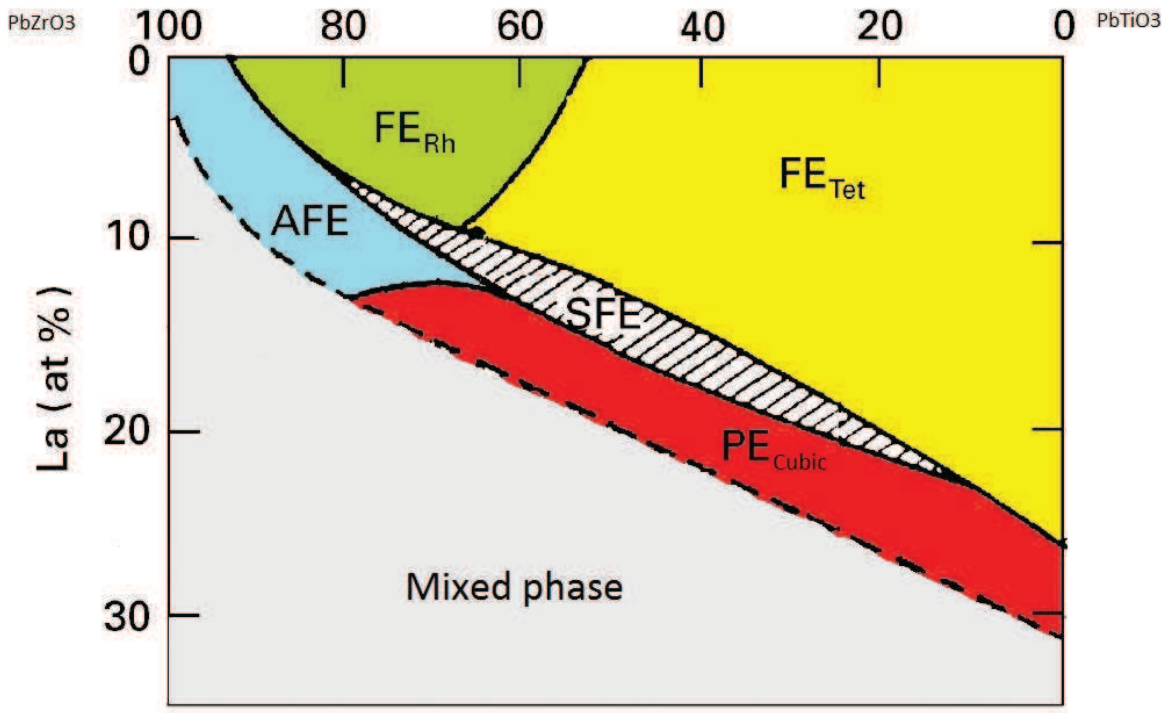


Figure I.12. Diagramme de phases du système PLZT, d'après [KONG 2008].

La présence du lanthane modifie la zone morphotropique et provoque l'apparition d'une phase *relaxor* (SFE) pour une certaine gamme de composition.

Le choix de la composition est donc primordial pour obtenir les propriétés désirées, d'autant que le choix de celle-ci influence le comportement au frittage du matériau en favorisant la formation des lacunes en site A ou B avec des formulations spécifiques [KUSCER 2007] :

- pour les lacunes en site A : $Pb_{1-\frac{3x}{2}}La_x\square_{\frac{x}{2}}(Ti_{1-y}Zr_y)O_3$
- pour les lacunes en site B : $Pb_{1-x}La_x\left[(Ti_{1-y}Zr_y)_{1-\frac{x}{4}}\square_{\frac{x}{4}}\right]O_3$

Danjela Kuscer *et al.* ont montré que ces formulations, et donc le site préférentiel où sont créées les lacunes, sont responsables de la modification du comportement au frittage (1200°C/1h) pour des compositions PZT à pourcentage de lanthane compris entre 6 et 10 mol.% avec un rapport Zr/Ti égale à 90/10. Le Tableau I.8 résume les différences observées dans les deux cas de figures.

Tableau I.8. Comportement pendant le frittage à 1200°C de céramique PLZT en fonction du site privilégié pour la formation des lacunes, d'après [KUSCER 2007].

Lacunes en site A	Lacunes en site B
Frittage par diffusion à l'état solide	Frittage en phase liquide PbO_{ss}
Densification à haute température	Début de densification à basse température
Densité plus faible	Densité élevée, porosité faible
Pas de phases secondaires	Ségrégation de PbO aux joints de grains
Paramètres de maille équivalents Porosité augmente avec le pourcentage de lanthane Comportement diélectrique équivalent (ε, 1/ε, tan δ)	

Favoriser la création de lacunes en site B permet donc d'obtenir une meilleure densification sans modifier les propriétés diélectriques du matériau.

Puisqu'il s'est avéré nécessaire d'élaborer de la poudre céramique piézoélectrique, la composition retenue est celle qui permet d'obtenir les coefficients piézoélectriques les plus élevés afin de maximiser la capacité de déformation du matériau, soit un dopage au lanthane à hauteur de 7 mol.% et un rapport Zr/Ti = 60/40, avec une formulation favorisant les lacunes en site B pour obtenir une meilleure densification.

I.2.5. Les céramiques ferroélectriques

A l'échelle de la maille cristalline, les matériaux ferroélectriques présentent une polarisation spontanée c'est-à-dire qu'au sein de celle-ci, les barycentres des charges positives et négatives ne sont pas confondus. Il en résulte un moment dipolaire permanent qui se définit comme :

$$\vec{\mu} = e \times \delta \times \vec{u} \qquad (I.8)$$

avec
- e : la charge élémentaire ;
- δ : la distance entre les barycentres des charges positives et négatives ;
- $\vec{u}$: vecteur unitaire dirigé du barycentre négatif vers le barycentre positif.

Il est alors possible de définir le vecteur polarisation en fonction du nombre de molécules par unité de volume N :

$$\vec{P} = N \times \vec{\mu} \qquad (I.9)$$

D'une manière générale, la direction du vecteur polarisation est celle de l'un des axes cristallographiques du cristal. La réversibilité de celui-ci en appliquant un champ électrique est caractéristique de la ferroélectricité.

Cependant, à l'échelle macroscopique ou même à l'échelle du grain, la polarisation globale est nulle. De ce fait, les propriétés piézoélectriques résultantes sont inexistantes. Ceci provient du fait qu'au sein d'un grain, il existe des régions dans lesquelles les vecteurs ne sont pas orientés dans les mêmes directions. Les régions cohérentes sont appelées domaines ferroélectriques (par analogie aux domaines de Weiss dans le ferromagnétisme) et elles sont séparées par des parois.

Sous l'action d'un champ électrique uniforme, les vecteurs de polarisation ont tendance à s'aligner dans le sens du champ électrique et de ce fait, les domaines orientés dans le même sens s'accroissent au détriment des autres domaines : c'est le phénomène de polarisation. L'intensité du champ électrique nécessaire pour orienter tous les domaines (un état d'orientation de 100% n'est jamais atteint) varie en fonction de la mobilité des parois des domaines ferroélectriques. Cette notion est très intéressante dans le cas des céramiques PZT qui possèdent différentes caractéristiques de polarisation en fonction de leur composition :

- des céramiques PZT plus riche en PZ qu'en PT (prédominance de la phase rhomboédrique) sont dites douces car faciles à polariser ;
- des céramiques PZT plus riche en PT qu'en PZ (prédominance de la phase quadratique) sont dites dures car plus difficiles à polariser.

Cette distinction comportementale vis-à-vis de la polarisation est à l'origine de propriétés différentes pour ces deux types de céramiques PZT résumées dans le Tableau I.9.

Tableau I.9. Comparaison des céramiques PZT dites douces et dures [CHARON 2010].

Propriété	PZT douce	PZT dure
Température de Curie	Basse	Elevée
Champ coercitif	Faible	Elevé
Constantes piézoélectriques	Elevées	Faibles
Permittivité	Elevée	Faible
Constantes diélectriques	Elevées	Faibles
Pertes diélectriques	Elevées	Faibles
Facteurs de couplage électromécanique	Elevés	Faibles
Résistance électrique	Elevée	Faible
Facteurs de qualité mécanique	Faibles	Elevés
Linéarité	Pauvre	Meilleure
Polarisation/Dépolarisation	Facile	Difficile

L'application d'un champ électrique alternatif permet de visualiser l'état de polarisation du matériau en fonction de celui-ci à l'aide d'un montage de type Sawyer-Tower (cf. Annexe 1) et donne lieu à un cycle d'hystérésis caractéristique de la ferroélectricité [JAFFE 1971] représenté sur la Figure I.13 :

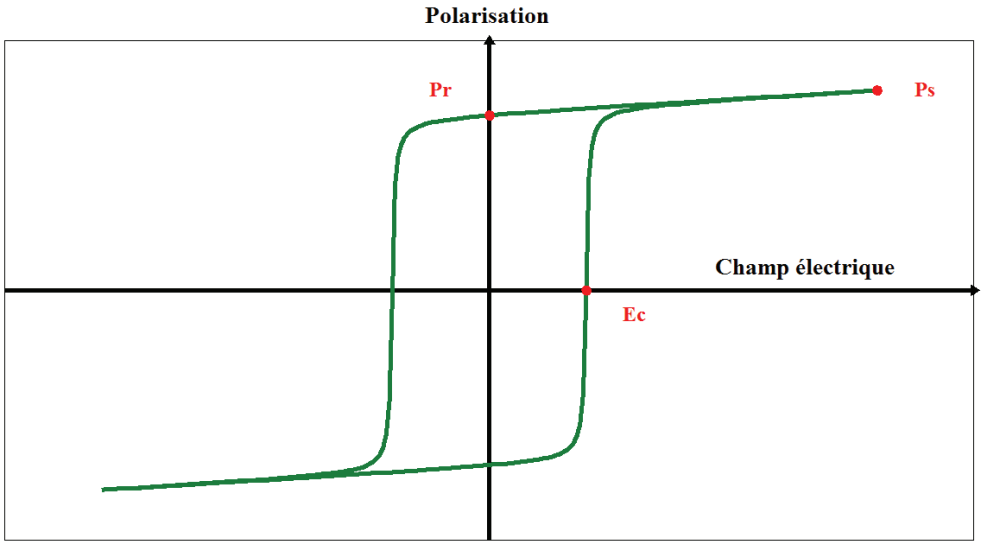


Figure I.13. Cycle d'hystérésis d'une céramique ferroélectrique.

Lorsque le champ électrique augmente, la polarisation commence par croître également et traduit l'orientation progressive des domaines. A partir d'un certain champ électrique, la polarisation montre un caractère asymptotique traduisant un état de saturation : tous les domaines sont orientés et l'augmentation de l'intensité du champ électrique n'influence plus cet état. On accède ainsi à la valeur de la polarisation à saturation P_s.

Le retour à zéro du champ électrique ne suit pas le même chemin et conduit à une polarisation rémanente P_r lorsque le champ électrique est nul. Une partie (car $P_r < P_s$) des domaines garde l'orientation induite par le champ électrique alors que d'autres retournent à leur état initial. Par ailleurs, ce phénomène de relaxation est toujours présent après la polarisation du matériau jusqu'à obtenir un état stable : c'est pour cela que les normes sur la

mesure des coefficients piézoélectriques (par exemple) imposent un délai de 24 heures entre l'étape de polarisation et la mesure.

Lorsque la direction du champ électrique change de sens et que son intensité dépasse une certaine valeur E_c appelée champ coercitif, la direction de polarisation au sein du matériau est inversée et conduira à un nouvel état de saturation et ce, de manière symétrique d'où l'observation d'un cycle.

Après avoir passé en revue les notions de piézoélectricité, une attention particulière va maintenant être portée sur les actionneurs à fibres piézoélectriques.

I.3. Actionneurs à fibres piézoélectriques

L'utilisation des actionneurs à base de céramiques piézoélectriques est répandue dans une large gamme d'applications. En effet, les matériaux piézoélectriques sont très utilisés pour ce type d'applications car ils représentent le meilleur compromis pour développer des efforts/déplacements importants dans une large gamme de fréquences (de l'hertz jusqu'au mégahertz) avec un encombrement réduit et un temps de réponse très court, comme le montre le graphique de la Figure I.14.

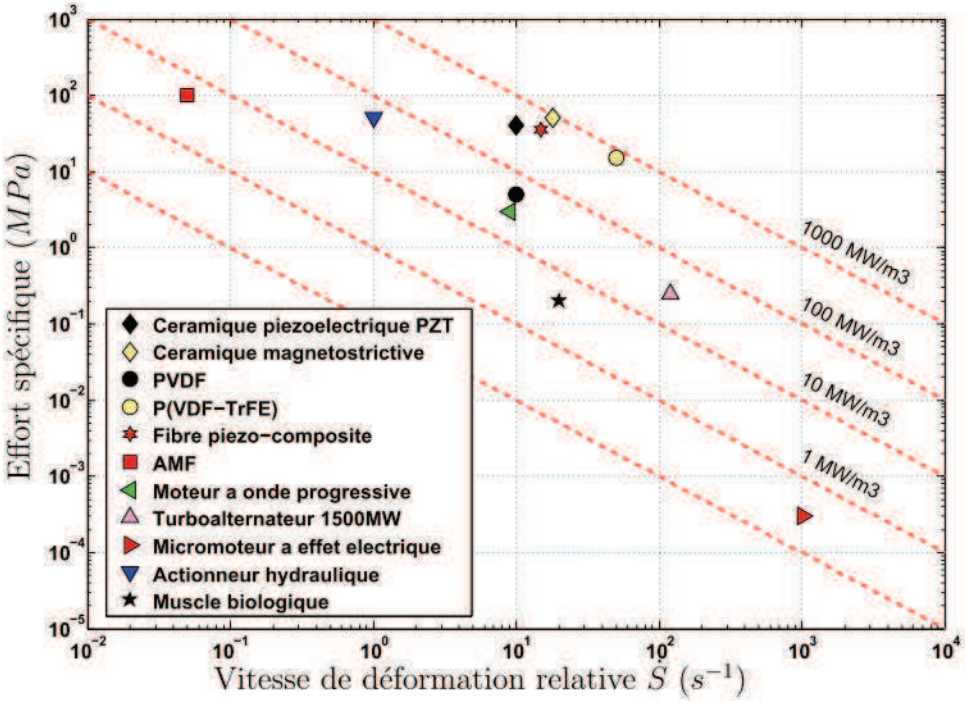


Figure I.14. Comparaison de différents matériaux pour des applications d'actionneurs dynamiques [NOGAREDE 2005].

Néanmoins, certaines limitations apparaissent quant à l'utilisation des matériaux piézoélectriques sous forme monolithique : d'une part, la fragilité intrinsèque de la céramique rend délicat les opérations de manipulations et d'intégrations aux structures et d'autre part, ils sont inadaptés à l'intégration à des profils de grandes dimensions ou de formes complexes sans compter le gain de masse important lié à l'utilisation de céramiques denses comme les PZT [BOWEN 2006, HELBIG 2003, KOVALOVS 2007, QIU 2003, WILLIAMS 2002].

Plus particulièrement, les actionneurs à fibres piézoélectriques prennent une place de plus en plus importante dans des applications comme le contrôle dynamique ou l'amortissement de vibrations car ils permettent de s'affranchir des nombreuses limitations imposées par les dispositifs utilisant des céramiques monolithiques [WILLIAMS 2002]. L'utilisation de matériaux composites à bases de fibres piézoélectriques noyées dans une matrice (polymère, polymère renforcé…) permet de répondre à un certain nombre de besoins industriels.

I.3.1. AFC et MFC (*Active and Macro Fibres Composite*)

Ce type de composite à fibres actives (*Active Fibres Composite*) a été développé au MIT (USA) dans les années 90 et étudié, notamment par A.A. Bent *et al* [BENT 1997, 1995]. Des fibres piézoélectriques de sections circulaires pleines sont alignées dans une même direction et enrobées dans une matrice polymère isolante. Cette matrice peut être renforcée par des fibres de verres par exemple. De chaque côté des fibres sont déposées des électrodes interdigitées qui permettent d'appliquer un champ électrique selon la longueur des fibres. La

Figure I.15 représente un tel dispositif assemblé et la Figure I.16 montre comment la disposition des électrodes interdigitées permet d'appliquer un champ électrique parallèle à la direction des fibres pour un fonctionnement longitudinal.

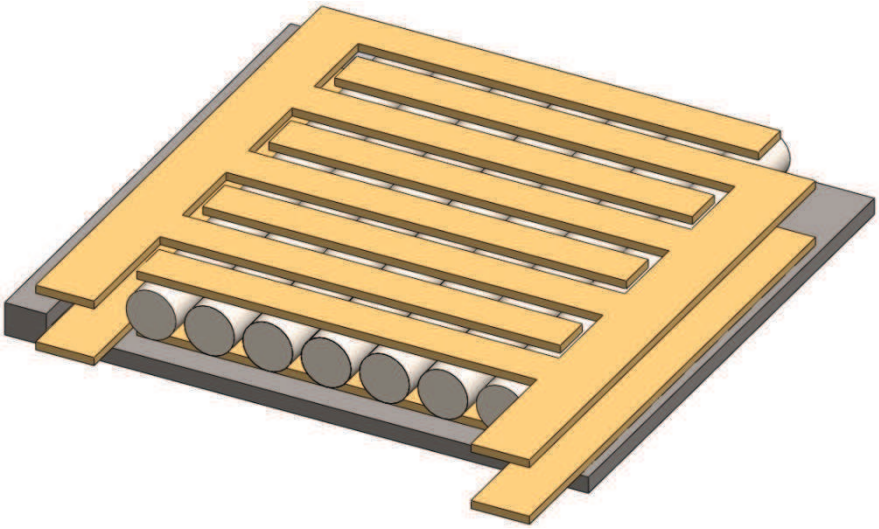


Figure I.15. Représentation schématique d'un dispositif AFC.

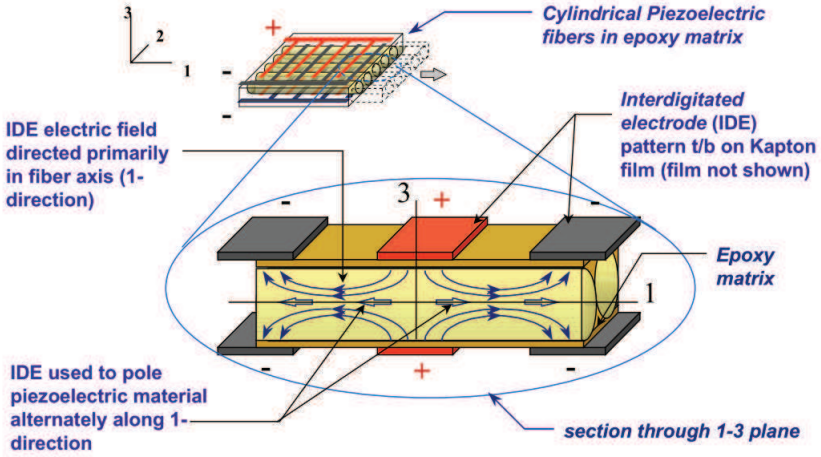


Figure I.16. Distribution du champ électrique dans un AFC en fonctionnement 33 [WILKIE 2000].

Les matrices utilisées sont souvent à base de résine époxyde du fait de leurs hautes propriétés mécaniques qui permet, lorsqu'il y a une bonne adhésion entre les fibres et la matrice, de transférer une partie des contraintes dans la matrice. Cependant, à cause de leur faible constante diélectrique, le champ électrique effectivement appliqué aux fibres est réduit [WILLIAMS 2002]. Des charges piézoélectriques (PZT) dispersées dans la matrice ou des polymères piézoélectriques comme le PVDF sont ainsi parfois utilisés pour homogénéiser les permittivités de la matrice et des fibres.

Les fibres peuvent être élaborées par plusieurs méthodes : par voie sol-gel [HELBIG 2003], par extrusion [DENT 2005], par des procédés textiles modifiés VSSP (*Viscose Suspension Spinning Process*) [DENT 2005] ou par procédé VPP (*Viscous Plastic Process*) qui est similaire à l'extrusion mais utilise une matière beaucoup plus visqueuse [BOWEN 2006, DENT 2005]. Ces différents procédés permettent généralement d'obtenir des fibres avec des géométries contrôlées, des microstructures adéquates et des propriétés piézoélectriques élevées, notamment dans le cadre du procédé VPP qui permet d'avoir des propriétés quasiment équivalentes à celles d'un matériau massif [BOWEN 2006].

La géométrie de ce type d'actionneur permet d'avoir une déformation totalement anisotrope, ce qui autorise le contrôle des mouvements de flexion et/ou de torsion, pour le contrôle de torsion des pâles d'hélicoptères par exemple [WILLIAMS 2002]. Par ailleurs, l'utilisation des électrodes interdigitées permet d'appliquer le champ électrique dans la direction des fibres générant ainsi des déformations/efforts importants grâce à l'utilisation du mode longitudinal (d_{33}) [BOWEN 2006, WILLIAMS 2002].

Cependant, il existe deux inconvénients majeurs à l'utilisation des AFC [WILKIE 2002]:

- la réalisation des dispositifs est relativement coûteuse : l'élaboration et l'assemblage de fibres individuelles, par ailleurs fragiles, conduit à un coût de production élevé. De plus, les contraintes apparaissant pendant l'assemblage entre les fibres et les électrodes conduisent à fragiliser le dispositif ;
- l'utilisation des électrodes interdigitées nécessite d'utiliser des tensions d'activation élevées [YOSHIKAWA 1999]. En plus de la géométrie intrinsèque des électrodes qui nécessite d'utiliser de hautes tensions, l'utilisation de matrices isolantes conduit à une atténuation du champ électrique effectif appliqué sur les fibres. Ceci conduit à utiliser des tensions encore un peu plus élevées pour éviter de réduire les capacités de déformations des AFC. Outre l'inconvénient d'utiliser de telles tensions dans des dispositifs embarqués, celles-ci provoquent parfois le claquage des dispositifs.

Après cette première génération d'actionneurs composites, l'équipe de Wilkie du *Langley Research Center* de la NASA a ensuite développé des dispositifs similaires utilisant des fibres à section rectangulaire plutôt que circulaire [KOVALOVS 2007, WILKIE 2000, WILLIAMS 2002].

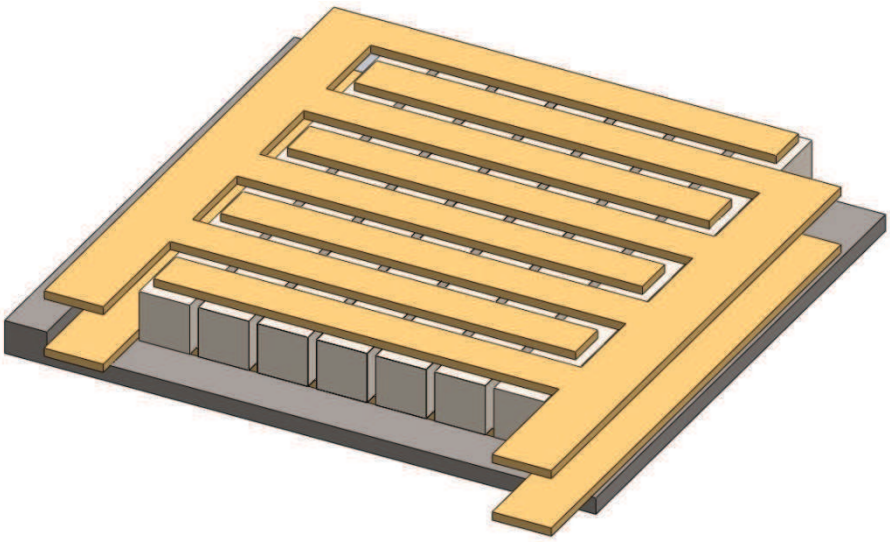


Figure I.17. Représentation schématique d'un dispositif MFC.

Ces dispositifs gardent les mêmes avantages et applications que la première génération d'AFC mais ils permettent d'augmenter l'efficacité et la robustesse du dispositif grâce un meilleur contact entre les électrodes et les fibres (contact plan/plan pour les MFC, cylindre/plan pour les AFC). Ceci permet d'une part de réduire les contraintes entre les fibres et les électrodes lors de l'assemblage et de l'utilisation, et d'autre part, de limiter les tensions d'activations qui tendaient à être augmentées pour compenser les pertes diélectriques entre les fibres et la matrice polymère [WILKIE 2002, 2000].

Les figures I.18 et I.19 présentent les modes de fonctionnement possibles en fonction de l'application du champ électrique et les différentes possibilités d'utilisation de ces patchs en déformation.

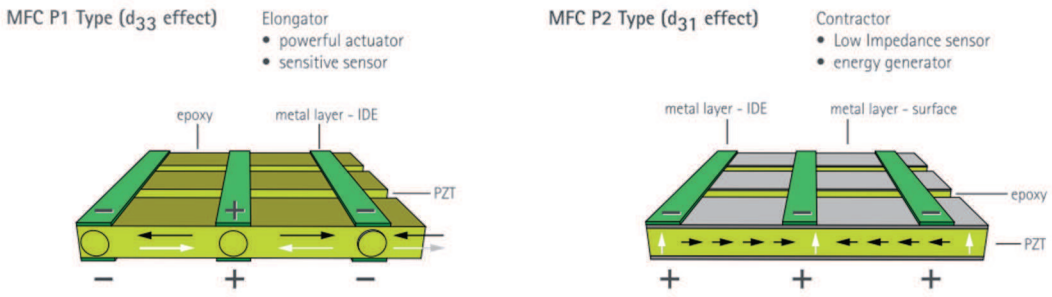


Figure I.18. MFC en fonctionnement longitudinal ou transverse.

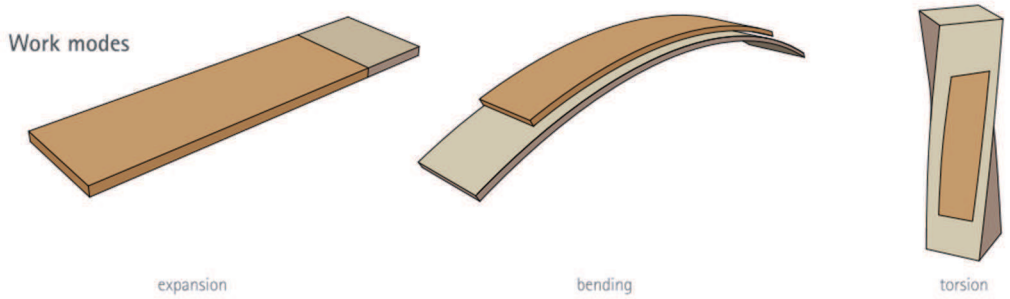


Figure I.19. Modes de déformation possibles avec l'utilisation des MFC.

Par ailleurs, pour diminuer le coût de production des fibres et pour faciliter l'obtention d'angle droit avec une très bonne répétabilité, les fibres sont usinées directement dans des céramiques massives [WILKIE 2002, 2000, WILLIAMS 2002]. La difficulté est alors de pouvoir usiner, sans les casser, des fibres très fines de grandes longueurs.

Par ailleurs, les coins des fibres rectangulaires peuvent être usinés pour être arrondis afin de limiter les effets d'arcs électriques entre les fibres lors de l'application de tensions élevées, qui sont par ailleurs favorisés par la présence de porosité, d'humidité et de microfissures dans ces zones fortement anguleuses. D'autres géométries comme des fibres elliptiques fortement aplaties sont également utilisées pour limiter ces effets.

I.3.2. HFC (*Hollow Fibre Composite*)

Des alternatives ont ensuite été proposées pour s'affranchir des inconvénients des dispositifs précédents, à savoir [BREI 2004, WILLIAMS 2002] :

- les hauts voltages nécessaires pour l'activation (de l'ordre du kV) ;
- la limitation à l'utilisation des matrices non conductrices qui est problématique dans des domaines où les alliages métalliques et les composites à matrice polymère et fibres de carbone, type CFRP (*Carbon Fibres Reinforced Polymer*), sont très répandus.

Pour une géométrie tubulaire dans laquelle la polarisation est effectuée dans l'épaisseur, l'application d'un champ électrique radial permet de générer des déformations longitudinales en activant le mode d_{31}. Bien que ce mode génère des déformations moindres que le mode d_{33} des AFC (environ d'un facteur 2 dans le cas des PZT), les tensions nécessaires à l'activation diminuent quant à elles d'un facteur 10 voire supérieur. Par ailleurs, comme le champ

électrique est appliqué uniquement dans la paroi de la fibre, les pertes de champ électrique au travers de la matrice sont limitées.

Si l'on considère une géométrie plane, le champ électrique appliqué au sein d'une paroi d'épaisseur t est alors donné par :

$$E = \frac{V}{t} \qquad (I.10)$$

L'existence d'une courbure dans le cadre de la géométrie tubulaire conduit à modifier cette expression en partant d'une loi de Gauss pour écrire le champ électrique à une distance r du centre de la fibre :

$$E(r) = \frac{-V}{r \times ln(1-\alpha)} \qquad (I.11)$$

Cette expression fait intervenir le rapport d'aspect α qui correspond au rapport entre l'épaisseur de la paroi et le rayon extérieur de la fibre :

$$\alpha = \frac{t}{r_0} \qquad (I.12)$$

Pour α constant, il devient immédiat que le champ électrique sur la paroi interne de la fibre est plus intense que sur la paroi externe. Cette différence est à l'origine d'un gradient de polarisation à travers la couche piézoélectrique et par suite, d'un gradient de propriétés.

Par ailleurs, pour atteindre une intensité suffisante au niveau de la paroi externe pour avoir une polarisation totale, le champ électrique sur la paroi interne doit être si intense que l'on risque d'endommager la fibre. Il convient donc de bien choisir la géométrie pour limiter ce gradient. La Figure I.20 représente l'évolution des champs électriques au niveau des deux parois en fonction du rapport d'aspect α :

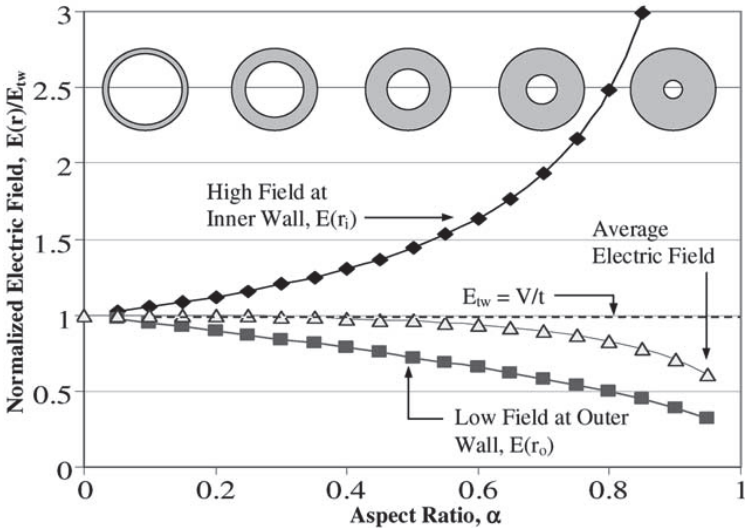


Figure I.20. Evolution du champ électrique sur les parois internes et externes en fonction du rapport d'aspect [BREI 2004].

Pour des rapports d'aspect faibles, qui traduisent une épaisseur faible devant le rayon total de la fibre, la différence de champs électriques entre les deux parois est faible et l'approximation des parois minces (E=V/t) reste valable.

Ainsi, en incorporant l'effet non linéaire du champ électrique, la déformation longitudinale libre d'une fibre tubulaire peut s'écrire :

$$S = \frac{-d_{31}}{ln(1-\alpha) \times \frac{1}{1/\alpha - 1/2}} \times E = d_{31}^{eff} \times E \qquad (I.13)$$

Le coefficient piézoélectrique effectif d_{31}^{eff} corrige le coefficient du matériau piézoélectrique en fonction du rapport d'aspect. Encore une fois, plus le rapport d'aspect sera faible et plus les coefficients seront proches. En d'autres termes, les fibres à parois minces produisent les déformations plus importantes sous un champ électrique donné. Cependant, l'évolution du rapport d_{31}^{eff}/d_{31} en fonction du rapport d'aspect α, comme représenté sur la Figure I.21, montre que les valeurs ne commencent à différer de plus de 10% qu'à partir de rapports d'aspect supérieurs à 0,7.

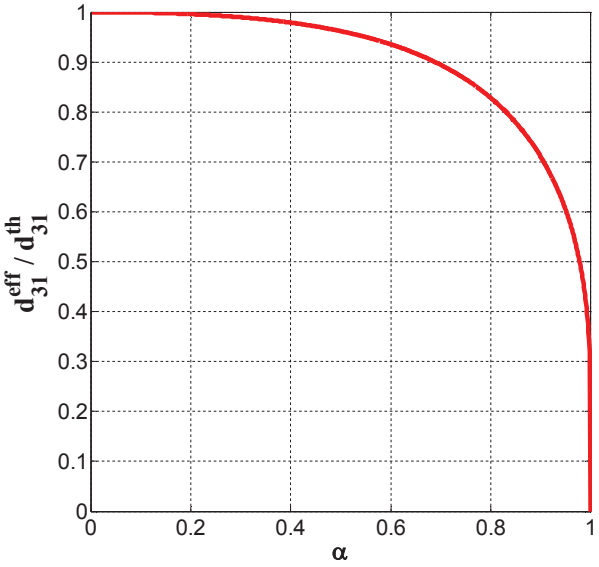


Figure I.21. Evolution du rapport d_{31}^{eff} / d_{31} en fonction du rapport d'aspect *α*.

Le développement des modèles sur les composites (MCCM : *Multi Concentric Cylinder Model*) et des modèles sur les laminés permet d'évaluer les propriétés des composites à fibres tubulaires. En effet, les fibres tubulaires ne sont pas utilisées seules mais elles sont intégrées dans une matrice formant ainsi un nouveau composite représenté sur la Figure I.22.

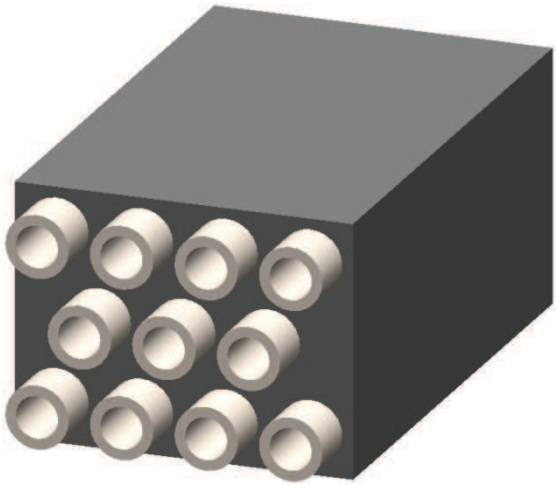


Figure I.22. Représentation schématique d'intégration des HFC.

Si on considère des fibres alignées et intégrées dans une matrice, plusieurs cas peuvent se présenter en fonction du rapport d'aspect α et de la fraction volumique de fibres v_f illustrés sur la Figure I.23.

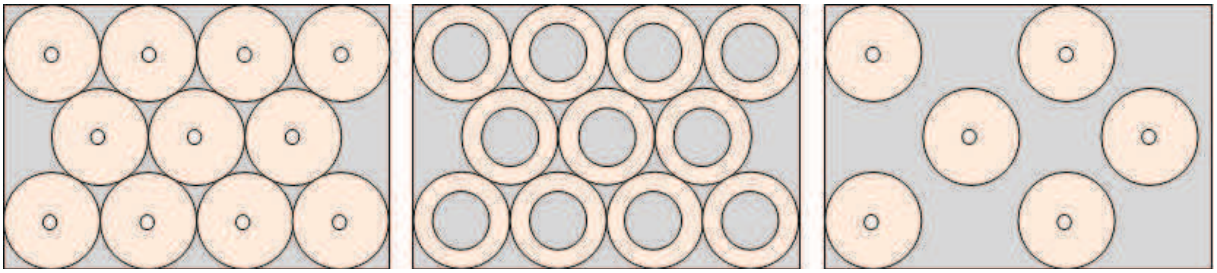


Figure I.23. Différents cas de figures pour un composite HFC, d'après [BREI 2004].

Ces deux paramètres vont modifier le comportement global du composite. En considérant Y_m et Y_f les modules élastiques de la matrice et des fibres respectivement, la déformation longitudinale globale de ce type de composite peut s'écrire :

$$S = \frac{v_f Y_f}{v_f Y_f + (1 - v_f) Y_m} \times d_{31}^{eff} \times E = d_{31}^{eff,lam} \times E \qquad (\text{I.14})$$

Brei *et al* étudient l'effet de certaines variables relatives à cette configuration sur le coefficient piézoélectrique équivalent du composite $d_{31}^{eff,lam}$ normalisé par rapport au coefficient du matériau piézoélectrique massif. Ils montrent ainsi que ce rapport $d_{31}^{eff,lam}/d_{31}$ est influencé par le rapport d'aspect α, la fraction volumique de fibres v_f, le rapport des modules d'élasticité Y_m/Y_f, et la densité de fibres Δ_f qui représente le volume des fibres par rapport au volume de la matrice et qui est liée à la fraction volumique par la relation :

$$v_f = \frac{\pi}{2\sqrt{3}} \times \Delta f \times (2 - \alpha)\alpha \qquad (\text{I.15})$$

L'étude de chacun de ces paramètres mène aux courbes de la Figure I.24 :

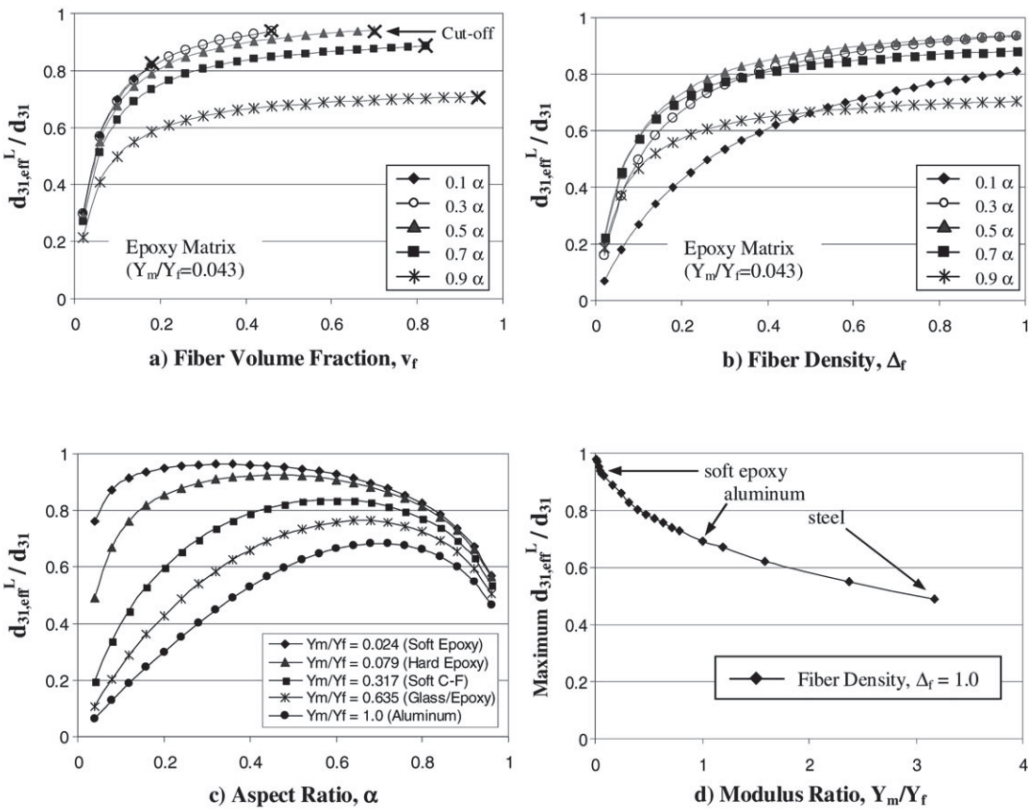


Figure I.24. Evolution du coefficient $d_{31}^{eff,lam}$ normalisé pour des fibres en matériau PZT-5H en fonction de différents paramètres [BREI 2004].

Les maxima de ce coefficient sont ainsi obtenus pour :

- Des fractions volumiques de fibres élevées et ce, quel que soit le rapport d'aspect (a) ;
- Des densités de fibres élevées et ce, quel que soit le rapport d'aspect (bien que son évolution avec α ne soit pas monotone) (b) ;
- Des rapports Y_m/Y_f les plus faibles possibles (d).

L'évolution en fonction du rapport d'aspect est plus complexe car elle est fortement dépendante du rapport des modules d'élasticité : pour des matrices "souples", les maxima correspondent à de faibles rapports d'aspect alors que pour des matrices plus "rigides", les maxima se décalent vers des rapports d'aspect plus élevés.

Le principe d'élaboration de ces tubes consiste à réaliser un dépôt céramique sur un cylindre qui sera éliminé par traitement thermique. Plus précisément, ces tubes PZT peuvent être réalisées par enduction sur des spaghettis [PRABHAKARAN 2007] ou par coextrusion (*MicroFabrication by Coextrusion*) sur un cylindre de carbone [BREI 2004, WILLIAMS 2002]. Les principaux problèmes liés à la fabrication de ces fibres sont le contrôle de la géométrie et l'homogénéité de l'épaisseur de la paroi ainsi que la fragilité des tubes à manipuler avant leur intégration dans une matrice.

Le développement des fibres creuses a permis de répondre aux deux principales limitations liées à l'utilisation des actionneurs à fibres pleines :

- l'utilisation du mode radial permet d'utiliser des tensions de services beaucoup plus faibles en appliquant le champ électrique dans la paroi de la fibre ;

- l'utilisation de fibres individuelles très fines permet d'augmenter l'intégrabilité des fibres actives au sein d'une structure.

Néanmoins, ces fibres sont extrêmement fragiles et difficile à produire avec un bon contrôle de la géométrie et sur de grandes longueurs, sans compter la difficulté éventuelle pour déposer une électrode sur la surface interne du tube.

I.3.3. MCPF (*Metal Core Piezoelectric Fibre*)

Le développement des fibres piézoélectriques à cœur métallique, qui seront par la suite nommées par leur acronyme anglo-saxon MCPF, permet d'apporter de nouvelles solutions pour les applications structurelles de capteurs et d'actionneurs [SATO 2005a, 2004, 2003a, SHIMOJO 2007].

- L'absence de dépôt d'électrodes.

En effet, le cœur métallique joue le rôle d'électrode interne. Les fibres pouvant être intégrées dans des structures composites conductrices comme les composites CFRP, la matrice joue le rôle d'électrode externe (les fibres de carbones ont une haute conductivité électrique).

- Faible tension d'activation.

Les dimensions des parois des fibres sont comme pour les HFC relativement faibles (quelques centaines de microns) et par conséquent, les tensions d'activations sont d'une centaine de volts maximum.

- Tenue mécanique accrue.

Bien que le matériau actif soit toujours une céramique dense fragile, la présence du cœur métallique ductile permet d'augmenter la tenue mécanique de la fibre.

- Peu sensible au bruit.

Pour les applications en tant que capteur, l'utilisation de matériaux composites CFRP à haute conductivité électrique rend les fibres peu sensibles aux bruits extérieurs ce qui permet d'améliorer la qualité du signal du capteur (rapport signal/bruit).

- Haute versatilité.

Toutes les fibres pouvant agir indépendamment les unes des autres, les fibres peuvent être utilisées en tant que capteur et actionneur. Il est aussi possible d'imaginer des applications de *self-monitoring* dans lesquelles une partie des fibres sont utilisées en tant que capteur pour déterminer l'état d'une structure tandis que les autres fibres utilisées en tant qu'actionneur permettent de corriger cet état.

- Faible coût de production.

En faisant abstraction du coût des matériaux utilisés, les procédés d'élaboration potentiels permettent d'obtenir des quantités (en termes de longueur de fibre ou de nombre de fibres) suffisamment importantes pour être viable dans un processus industriel.

Les MCPF présentent donc de nombreux avantages, issus de l'utilisation de fibres en mode radial, pouvant être utilisées indépendamment les unes des autres, et intégrables dans le volume d'une structure. En comparaison aux HFC, la présence d'un cœur métallique permet de s'affranchir du dépôt d'électrode sur la paroi interne du tube, d'augmenter la tenue mécanique des fibres, d'affiner le contrôle de la géométrie et de simplifier leur élaboration.

I.3.3.1. Elaboration

Les différentes équipes qui ont travaillé sur les MCPF ont utilisé différents procédés d'élaboration qui sont décrits et comparés ci-après. Le Tableau I.10 présente les différents auteurs et les techniques d'élaboration développées.

Tableau I.10. Procédés d'élaboration des MCPF développés par différents auteurs.

Procédé(s)	Référence(s)
Coextrusion	[HAJJAJI 2008, QIU 2003, SATO 2004, SEBALD 2006, 2005b, SHIMOJO 2007, YOON 2006]
Synthèse hydrothermale	[SATO 2003a, 2003b]
Dépôt par électrophorèse	[BOCCACCINI 2002, 2001, NG 2005, SARKAR 2004]

I.3.3.1.i. Synthèse hydrothermale

L'élaboration des fibres par synthèse hydrothermale consiste à développer des cristaux de PZT sur des fibres de titane de 150 µm de diamètre. Les réactions de germination et de croissance des grains de PZT se font à basse température (respectivement 140°C et 120°C) pendant 24 heures chacune. L'épaisseur finale obtenue est de 20 µm, soit un rapport d'aspect équivalent de 0,21.

La Figure I.25 présente une vue en microscopie électronique à balayage d'une section de fibre réalisée par synthèse hydrothermale.

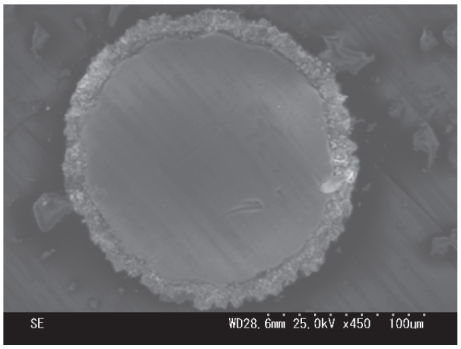


Figure I.25. Section d'une MCPF réalisée par synthèse hydrothermale sur un fil de titane de 150 µm [SATO 2009].

Le dépôt présente des variations d'épaisseur, difficile à contrôler *in situ* par réaction chimique. De plus, le substrat réagissant chimiquement pendant la réaction, on observe des écarts de circularité.

La longueur des fibres est limitée aux dimensions de l'autoclave tandis que le diamètre des fils de titane peut être encore réduit pour limiter l'effet d'inclusion dans le composite CFRP.

I.3.3.1.ii. Dépôt par électrophorèse

Le dépôt par électrophorèse consiste à des déposer des particules solides chargées en suspensions dans un liquide sous l'action d'un champ électrique entre deux électrodes, dont l'une sert de substrat. Le procédé le plus simple consiste à réaliser le dépôt sous tension constante (l'autre solution étant de réaliser le dépôt sous courant constant). Ceci implique, dans le cas de dépôt de particules PZT, d'être limité à de faibles épaisseurs de dépôt car celui-ci constitue un bon diélectrique dès qu'il est non poreux.

La suspension peut être réalisée en milieu aqueux [MA 2004, VAN TASSEL 1999] ou non aqueux [BOCCACCINI 2002, 2001, NG 2005]. En milieu aqueux, l'effet du pH permet d'avoir des particules PZT chargées alors qu'en milieu non aqueux, l'action combiné du solvant organique et de l'iode permet de libérer des protons qui sont adsorbés à la surface des particules PZT.

Ng et Boccaccini ont réalisé le dépôt de 80 µm de PZT sur des fils de NiCr de 0,5 mm de diamètre en milieu non aqueux (acétylacétone et iodine à 0,08 mg/mL) sous 105 volts en 5 minutes. Le rapport d'aspect correspondant est de 0,24. La Figure I.26 présente une vue en microscopie électronique à balayage d'une fibre réalisée dans ces conditions.

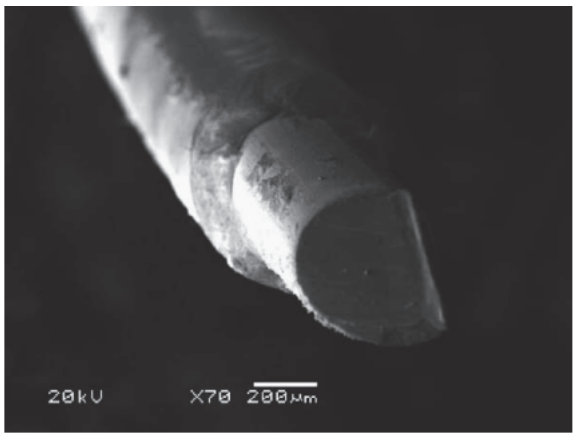


Figure I.26. Fil de NiCr revêtu de PZT par électrophorèse [NG 2005].

La longueur des fibres est ici limitée par la hauteur du bain. Le diamètre du fil peut quant à lui évoluer aisément, la difficulté étant ici de garantir la stabilité de la suspension et la compaction des particules lors du dépôt.

Notons qu'à l'heure actuelle, les propriétés piézoélectriques de telles fibres réalisées par électrophorèse ne sont pas données dans la littérature.

I.3.3.1.iii. Coextrusion

La coextrusion consiste à extruder simultanément le fil métallique et une pâte temporairement plastique contenant les particules céramiques. La pâte céramique est un mélange de solvant, d'agents organiques (liants, plastifiants…) et de particules céramiques. Le milieu peut être aqueux [SATO 2004] ou non aqueux [HAJJAJI 2008, QIU 2003].

La Figure I.27 présente le principe du dispositif de coextrusion.

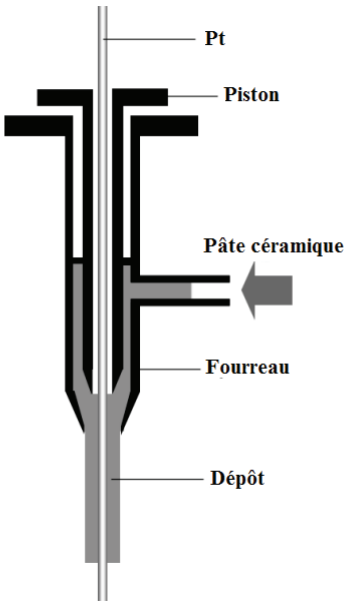


Figure I.27. Dispositif d'extrusion, d'après Qiu et al. [QIU 2003].

La matière peut arriver d'une extrudeuse à vis ou à piston. Le débit matière contrôle alors la pression d'extrusion [QIU 2003, SATO 2004]. Une extrudeuse à piston classique peut aussi être utilisée : la chambre est remplie de matière et un piston permet d'extruder celle-ci [HAJJAJI 2008]. Cette deuxième solution est *a priori* moins favorable pour un développement continu.

Ce type de procédé permet d'obtenir un bon contrôle de la géométrie de la fibre et des longueurs virtuellement infinies. Les dimensions de la sortie de la filière conditionnent le rayon final de la fibre, en faisant abstraction du retrait radial durant le frittage. Sur des fils de platine de 50 µm de diamètre, des dépôts de 75 µm [SATO 2004] et 100 µm [QIU 2003] peuvent être obtenus, soit des rapports d'aspect de 0,75 et 0,80.

La Figure I.28 présente une section de fibre après frittage à 1150°C observée en microscopie électronique à balayage.

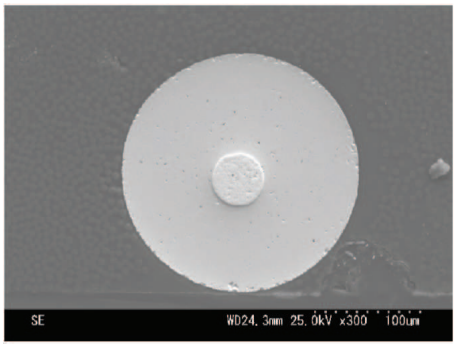


Figure I.28. Section d'une fibre obtenue par coextrusion [SATO 2004].

La géométrie de la fibre est de très bonne qualité : le diamètre extérieur est constant, le cœur est centré et le dépôt est bien densifié.

Qiu *et al.* évoquent les difficultés rencontrées pour centrer l'âme métallique. Le flux de matière peut provoquer l'accumulation de matière d'un côté de la chambre et provoquer le

déplacement du fil. Le cœur est alors excentré et ceci provoque l'enroulement de la fibre. La Figure I.29 présente le cas d'une fibre où le cœur est excentré.

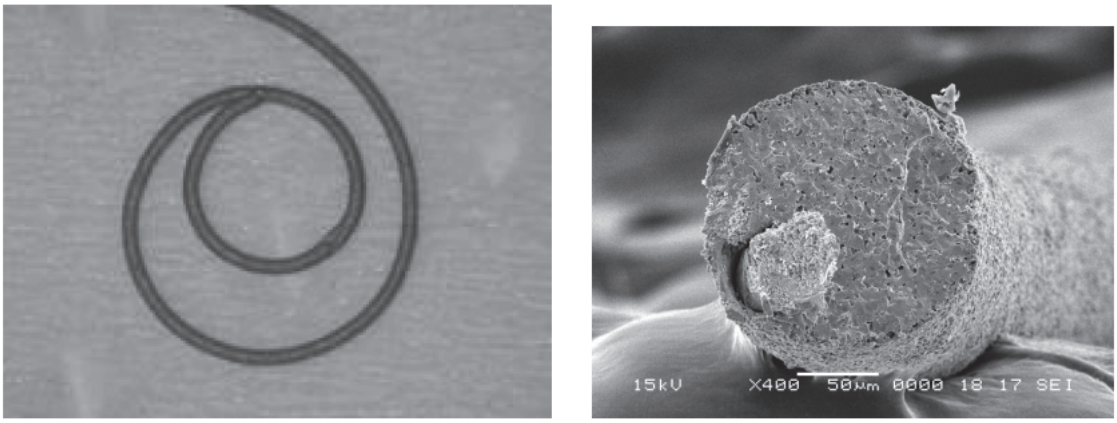


Figure I.29. Excentricité du fil métallique (à droite) et enroulement de la fibre (à gauche) [QIU 2003].

Pour éviter ce phénomène, le fil métallique est maintenu en tension et tiré à la même vitesse que le débit d'extrusion. Ceci permet de garantir le centrage de l'âme métallique.

Le procédé de coextrusion ne permet pas d'obtenir des fibres de diamètres extérieurs inférieurs à 200 µm ou de faibles rapports d'aspect car les pressions nécessaires à l'extrusion de la pâte deviendraient alors trop importantes [SATO 2003a]. Néanmoins, pour les applications en tant qu'actionneur, la possibilité de réaliser des fibres très longues fait de ce procédé de coextrusion un candidat sérieux pour un développement ultérieur à grande échelle.

I.3.3.2. Caractérisations

Deux types de caractérisations électromécaniques sont référencés pour les fibres piézoélectriques à cœur métallique :

- la caractérisation de fibres individuelles par vibrométrie laser ;
- la caractérisation de fibres intégrées à la surface d'une structure par vibrométrie laser.

I.3.3.2.i. Fibres individuelles

La caractérisation de fibres individuelles consiste à mesurer le déplacement longitudinal d'une fibre soumise à une tension continue ou alternative. La fibre est encastrée à une extrémité et la mesure s'effectue sur la section de l'extrémité libre [SATO 2005a, YOON 2006]. La Figure I.30 présente le principe de mesure par cette technique.

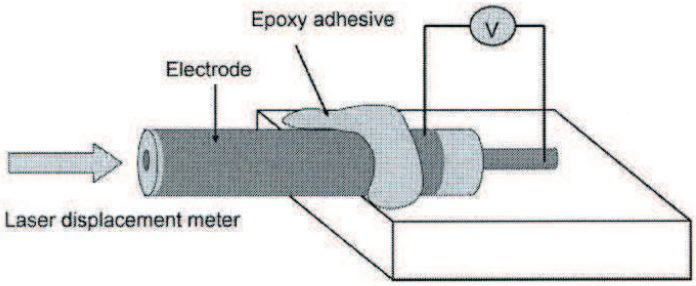


Figure I.30. Mesure de déplacement longitudinal d'une fibre individuelle [SATO 2005a].

En appliquant une tension continue de 800 V aux bornes d'une fibre Pt/PZT $\alpha = 0,75$, Sato et Nagamine mesurent des déformations de l'ordre de 0,05% [SATO 2005a].

En appliquant une tension sinusoïdale de 100 V d'amplitude à une fréquence de 100 Hz sur une fibre (PZN-PZT/Ag)/PZT α = 0,5, Yoon *et al*. mesurent des déformations de l'ordre de 0,005% [YOON 2006].

I.3.3.2.ii. Fibres intégrées

Au-delà de la caractérisation de fibres seules, l'intégration de ces fibres dans des matrices est plus à même de fournir des informations sur le comportement des composites actifs ainsi formés.

L'équipe de Hiroshi Sato a principalement travaillé sur le développement d'une *smart-board* constituée d'une structure à la surface de laquelle sont intégrées des MCPF [QIU 2003, SATO 2004, 2003a, SHIMOJO 2007]. Par ailleurs, Hiroshi Sato *et al*. ont déposé deux brevets :

- Un brevet européen portant sur l'intégration de MCPF dans le volume de matrice métallique (en aluminium notamment) [SATO 2007] ;
- Un brevet américain sur la fabrication de ces fibres (par synthèse hydrothermale et coextrusion) et leur utilisation comme capteur et actionneur dans des composites conducteurs [SATO 2005b].

La Figure I.31 présente le concept d'une *smart-board* constitué d'un composite CFRP et de fibres actives à sa surface. Le composite CFRP est constitué de plusieurs couches de préimprégnés unidirectionnels. Pour réduire l'influence des fibres sur les propriétés mécaniques du composite, les fibres sont alignées dans le sens des fibres de renforts.

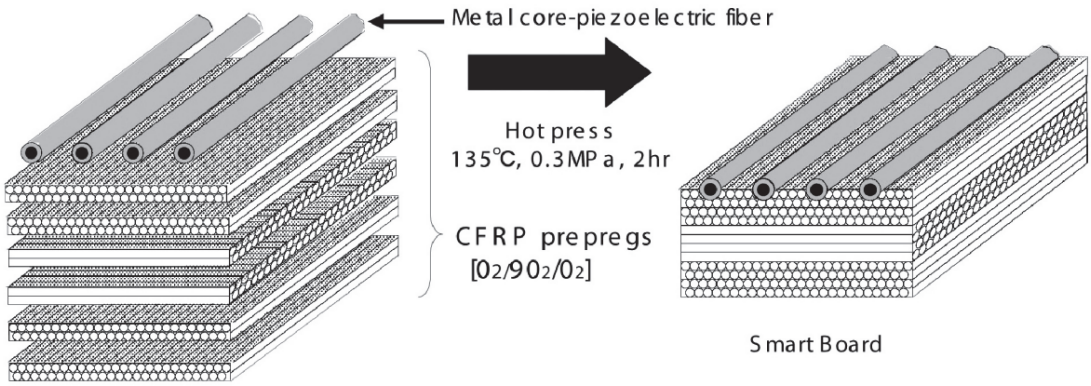


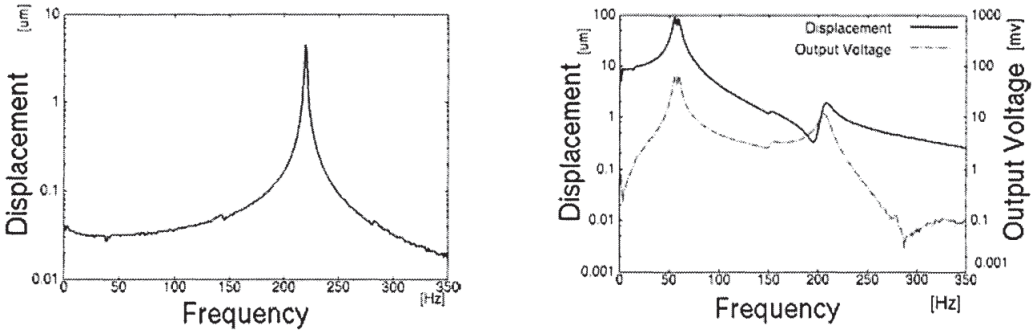
Figure I.31. Fabrication d'une *smart-board* CFRP/MCPF [SATO 2004, SHIMOJO 2007].

Le premier démonstrateur réalisé par Sato *et al*. est composé d'un empilement de préimprégnés CFRP dont les dimensions sont 30×70×0,7 mm^3 à la surface duquel 6 MCPF sont intégrées [SATO 2003a].

Le comportement en tant qu'actionneur est vérifié en encastrant une extrémité et en mesurant par vibrométrie laser le déplacement à l'extrémité libre. En appliquant une tension sinusoïdale de 50 volts d'amplitude, les déplacements mesurés en fonction de la fréquence varient de quelques dizaines de nanomètres à environ 5 micromètres sur une plage de quelques hertz à 350 hertz (Figure I.32-a).

Pour caractériser le comportement en tant que capteur, une extrémité du démonstrateur est reliée à un générateur de vibration et la tension aux bornes des fibres est mesurée. La Figure

I.32-b montre que la tension mesurée aux bornes des fibres a la même allure que les variations de déplacement en fonction de la fréquence de sollicitation. Les déplacements imposés les plus importants, pour une fréquence d'environ 50 Hz, sont de 100 µm et la tension résultante est d'environ 100 mV.



(a) Relationship between applied frequency and vibration displacement of the beam end

(b)Relationship between reference vibration and output voltage of the piezoelectric fiber

Figure I.32. Caractérisation du comportement en tant que capteur (a) et actionneur (b) d'une smart-board CFRP/MCPF×6 [SATO 2003a].

Un second démonstrateur est réalisé selon le même principe avec cette fois 31 MCPF. Une des MCPF est utilisée en tant que capteur. Les dimensions du démonstrateur sont de 30×180×0,7 mm^3.

En encastrant une extrémité du démonstrateur et en appliquant une tension sinusoïdale de 20 volts d'amplitude, l'extrémité est soumise à de la flexion. La Figure I.33 présente les mesures (par vibrométrie laser) de déplacement à l'extrémité du démonstrateur en fonction de la fréquence.

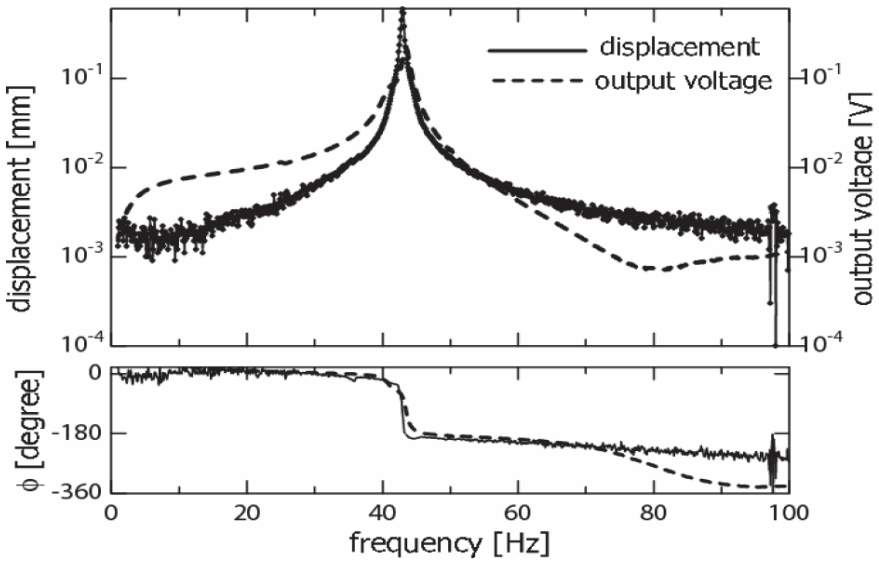


Figure I.33. Mesure de l'amplitude du déplacement de flexion en extrémité du démonstrateur en condition encastrée-libre sous une tension de 20 V en fonction de la fréquence [SATO 2004, SHIMOJO 2007].

Les déplacements obtenus sont de l'ordre du micron pour des fréquences éloignées de la résonance et jusque 1 millimètre à la résonance (~ 40 Hz). La tension mesurée aux bornes de

la fibre utilisée en tant que capteur suit la même allure que la courbe de déplacement : la tension aux bornes de la fibre est donc bien fonction de l'amplitude de la déformation.

Dans cette expérience, le comportement en tant que capteur et comme actionneur est une nouvelle fois bien vérifié. L'augmentation du nombre de fibres actives a permis d'augmenter le potentiel de déformation du composite actif.

I.3.3.3. Applications

Au-delà de la caractérisation du fonctionnement de capteur et d'actionneur, l'équipe d'Hiroshi Sato a travaillé sur la mise en application de ces fibres dans des composites CFRP, à savoir :

- le contrôle et la suppression de vibrations, passif [SATO 2003c] ou actif [TAKAGI 2006, 2004] ;
- la détection de l'endommagement [TAKAGI 2005].

I.3.3.3.i. Amortissement passif

L'amortissement passif des vibrations est obtenu en connectant un circuit LR à la fibre pour dissiper l'énergie électrique (Figure I.34). Le matériau piézoélectrique sous sollicitation mécanique est équivalent à une capacité C_p en parallèle d'une source de tension. L'utilisation d'un circuit *shunt* de forte inductance permet d'optimiser la dissipation d'énergie selon la relation :

$$L = \frac{1}{(2\pi f)^2 C_p} \qquad (I.16)$$

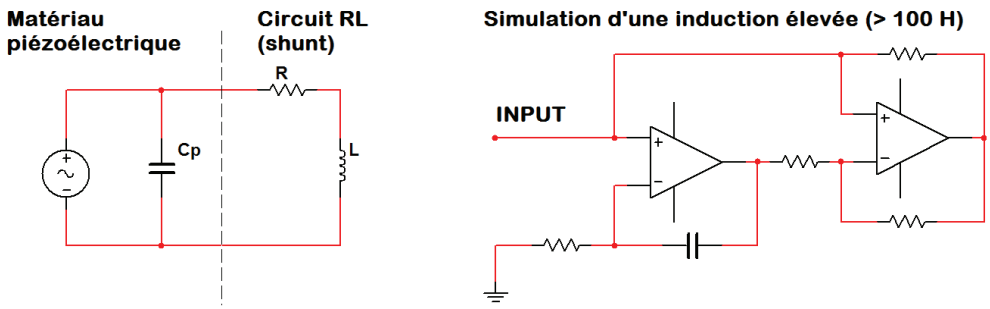


Figure I.34. Circuit RL *shunt* pour l'amortissement passif de vibration, d'après [SATO 2003c].

Le test est effectué en intégrant une fibre sur un composite de dimensions 12×70×0,8 mm^3, relié à un générateur de vibrations. L'amplitude des vibrations à l'extrémité du démonstrateur est mesurée en fonction de la fréquence à l'aide d'un vibromètre laser, avec et sans la connexion avec le circuit *shunt*. Les résultats sont présentés sur la Figure I.35.

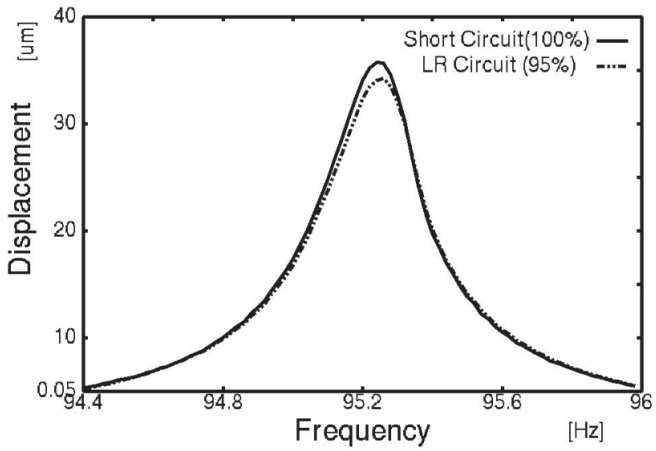


Figure I.35. Relation entre la fréquence de l'excitation appliquée et le déplacement mesuré en extrémité de poutre avec 1 MCPF en court-circuit ou connectée au circuit RL [SATO 2003c].

En utilisant une seule fibre, l'amortissement passif permet de réduire de 5% l'amplitude des vibrations. Ce résultat peut être étendu en utilisant un grand nombre de fibres [SATO 2003c].

I.3.3.3.ii. Amortissement actif

L'amortissement actif des vibrations est étudié en intégrant 16 fibres sur un composite de dimensions 17,5×170×0,85 mm^3, dont l'une d'elles est utilisée en tant que capteur. La Figure I.36 présente un schéma du montage expérimental.

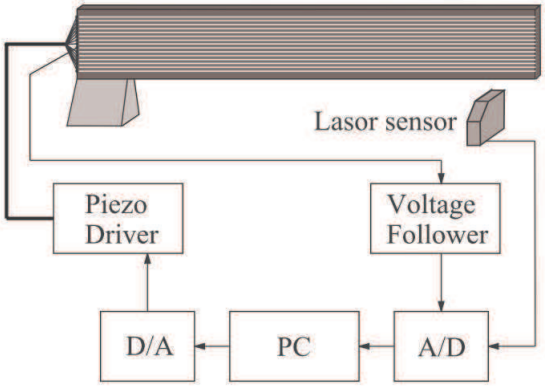


Figure I.36. Montage expérimental pour l'amortissement actif de vibrations [TAKAGI 2004].

La vibration source est générée en actionnant les fibres pendant 1 seconde sous 50 volts à la fréquence du mode fondamental. Ensuite, le déplacement de l'extrémité du démonstrateur est mesuré par vibrométrie laser, la tension aux bornes de la fibre "capteur" et la tension appliquée aux fibres actives sont suivies. Le contrôle actif des fibres est géré par une loi de commande robuste (μ synthèse [DUC 1998]) qui permet de prendre en compte les différences de comportement de chaque fibre active pouvant être dues à [TAKAGI 2006, 2004] :

- au mauvais centrage éventuel du cœur métallique de la fibre ;
- aux différences de propriétés piézoélectriques suite aux fluctuations chimiques ou thermiques pendant leur élaboration ;
- aux propriétés spécifiques de chaque interface fibre/matrice.

La Figure I.37 présente l'amplitude des vibrations (37.a), la tension aux bornes du capteur (37.b) sans et avec l'activation des fibres dont la tension de commande évolutive est présentée sur le dernier graphique (37.c).

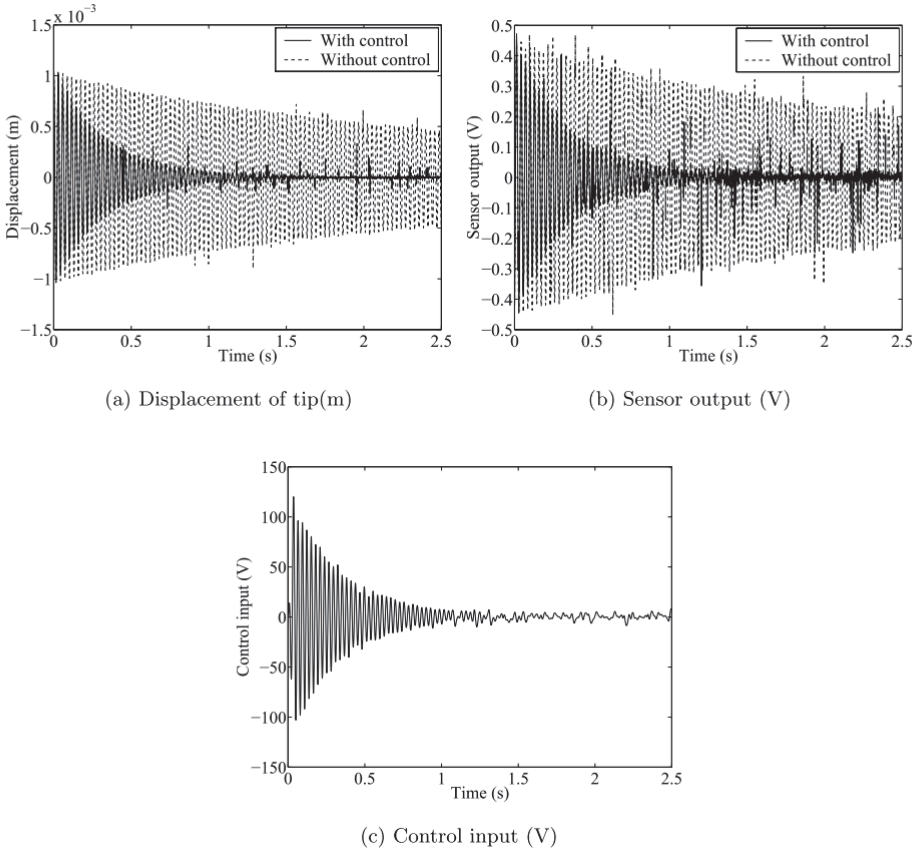


Figure I.37. Mise en application du contrôle actif de vibrations.

En l'absence de contrôle, l'atténuation de la vibration est longue : au bout de 2,5 secondes, l'amplitude de la vibration n'a diminué que de 50%. Avec le système de contrôle, la vibration est totalement atténuée au bout d'une seconde. De la même manière, l'évolution du gain en fonction de la fréquence (Figure I.38) montre qu'il est possible d'obtenir dans cette configuration une atténuation de 16 dB avec le système de contrôle actif.

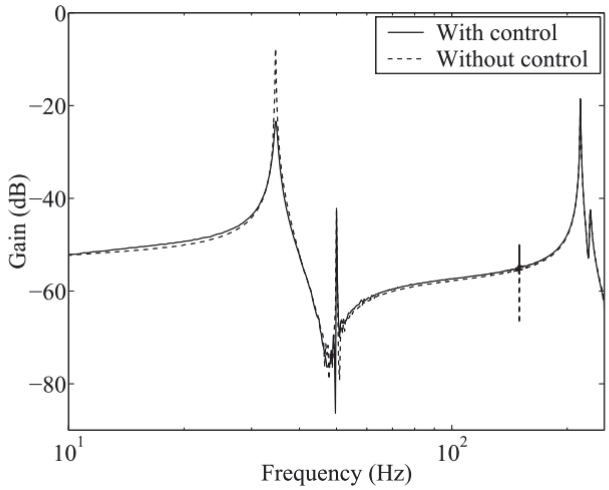


Figure I.38. Réponse en fréquence du système avec ou sans contrôle actif des vibrations [TAKAGI 2004].

Cette expérience montre que l'utilisation de ces fibres en tant que capteur (pour détecter et caractériser un environnement vibratoire) et actionneur (pour amortir les vibrations) est une solution efficace pour réduire voire supprimer les vibrations sur une structure.

I.3.3.3.iii. Détection de l'endommagement

Le même montage que le précédent est utilisé pour évaluer le comportement d'un démonstrateur (dimensions 29,2×150×0,9 mm^3) soumis à un endommagement, comme présenté sur la Figure I.39.

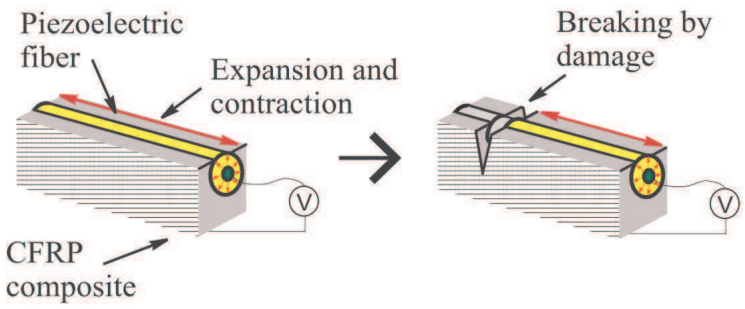


Figure I.39. Principe de montage utilisé pour l'étude de l'endommagement [TAKAGI 2005].

L'hypothèse est faite que l'endommagement provient d'un impact de telle sorte que toutes les fibres soient rompues, c'est-à-dire qu'une section entière de fibre est détruite, et ce au même endroit sur toutes les fibres. La Figure I.40 illustre ces considérations.

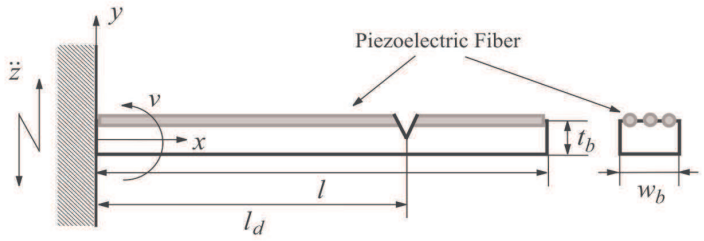


Figure I.40. Type d'endommagement modélisé [TAKAGI 2005].

La présence de l'endommagement modifie la réponse du capteur et celle-ci peut être décrite par une transformation fractionnée linéaire (LFT) pour évaluer la distance l_d à laquelle se trouve le défaut (Figure I.41).

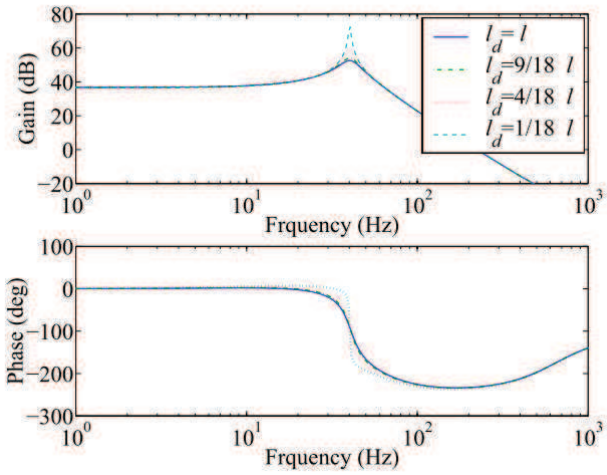


Figure I.41. Diagrammes de Bode pour la structure saine (—) et endommagée (▪ ▪ ▪, •••, ▪▪▪) [TAKAGI 2005].

Cette identification permet de modifier le programme de contrôle actif expérimenté précédemment. Ceci est réalisé sur deux démonstrateurs : un sain et un second entaillé à 30 mm (l_d). Le contrôle actif standard est comparé au nouveau système de contrôle qui prend en compte la présence de l'endommagement pour compenser la détérioration des performances des actionneurs.

La Figure I.42 compare les deux modes de contrôle (avec et sans prise en compte de l'endommagement) sur un démonstrateur sain selon le même mode opératoire que précédemment (cf. I.3.3.3.ii).

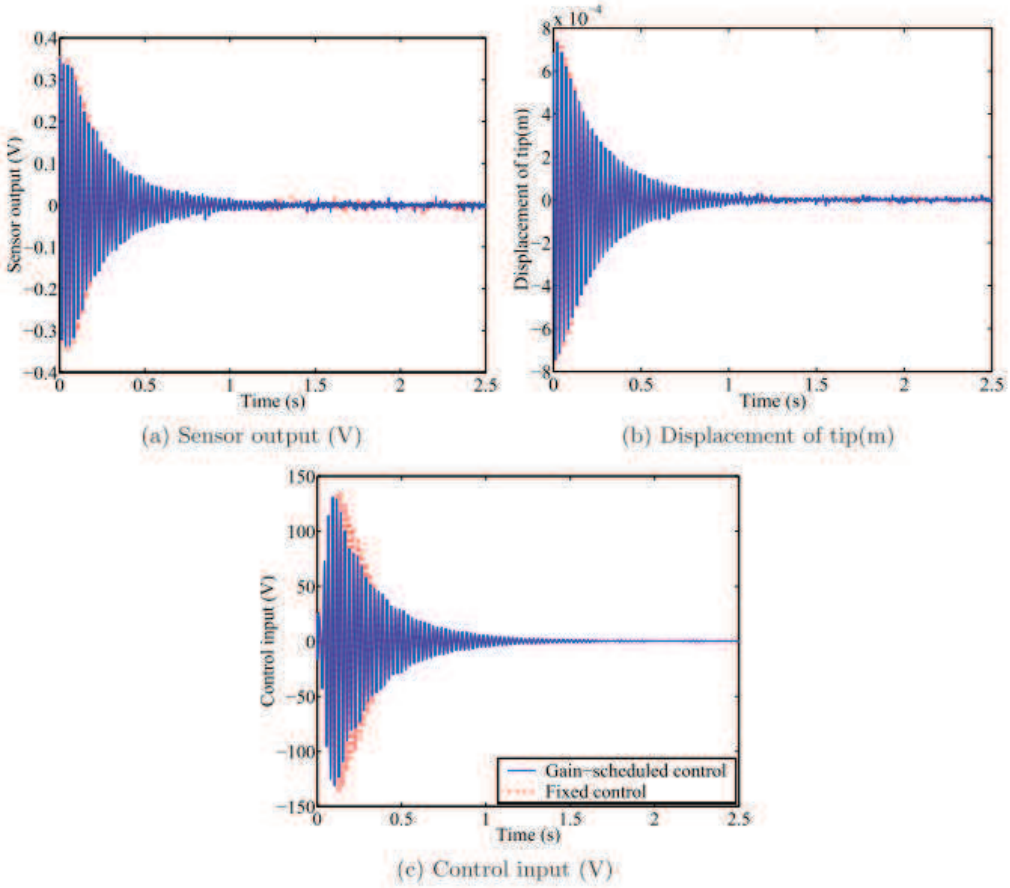


Figure I.42. Contrôle actif de vibrations sans endommagement des fibres (l_d = 150 mm) [TAKAGI 2005].

En l'absence d'endommagement, le nouveau mode de contrôle (*gain-scheduled control*) a sensiblement le même comportement que le programme initial (*fixed control*). La Figure I.43 considère maintenant la présence de l'endommagement à une distance de 30 millimètres.

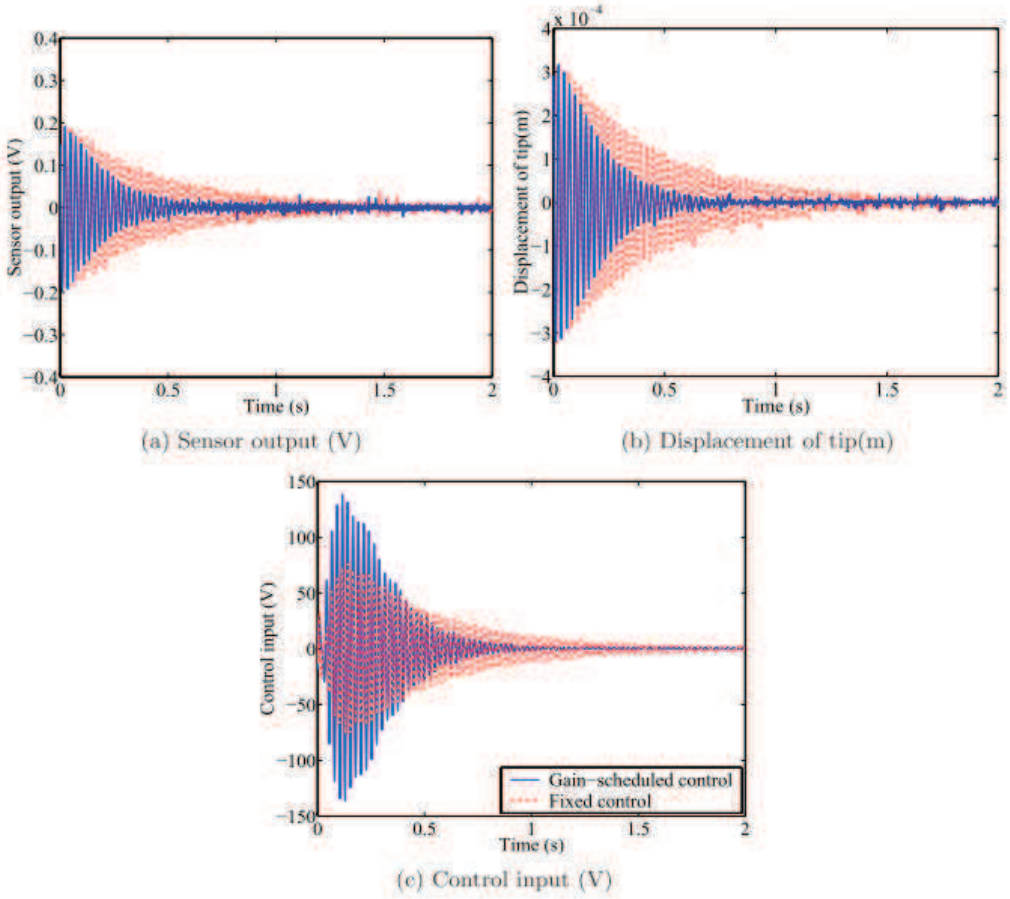


Figure I.43. Contrôle actif de vibrations avec endommagement des fibres (l_d = 30 mm) [TAKAGI 2005].

La prise en compte de la modification des propriétés suite à l'endommagement permet de réduire de manière significative les vibrations du démonstrateur. Sur le graphique 43-c, on constate que le nouveau mode de contrôle augmente la tension appliquée aux bornes des fibres actives pour compenser la réduction de la longueur active des fibres.

L'utilisation de fibres actives avec des lois de commande robuste permet d'avoir une action très efficace sur l'amortissement des vibrations sur une structure potentiellement endommagée.

La prise en compte du type de défaut évoqué ici (rupture complète et identique sur toutes les fibres) n'est pas forcément adéquate car il ne concerne que la modification de la longueur active des fibres. Néanmoins, cela permet de constater qu'il est possible de prendre en compte la variation d'informations sur les fibres qui servent de capteurs pour remonter aux modifications "locales" de propriétés. Il est ainsi possible d'imaginer utiliser ce principe pour détecter des défauts apparaissant dans la structure (et non plus au niveau des fibres) suite à un impact, à la fatigue *et cetera*.

I.3.3.4. Modèle analytique

Il existe des travaux sur la modélisation unidimensionnelle des MCPF. Les détails de la démarche sont donnés dans le chapitre réservé à la modélisation des fibres (cf. Chapitre IV).

En considérant le cas d'un cylindre piézoélectrique soumis à une différence de potentiels V, comme illustré sur la Figure I.44, l'équation d'état piézoélectrique se résume à l'équation I.17 :

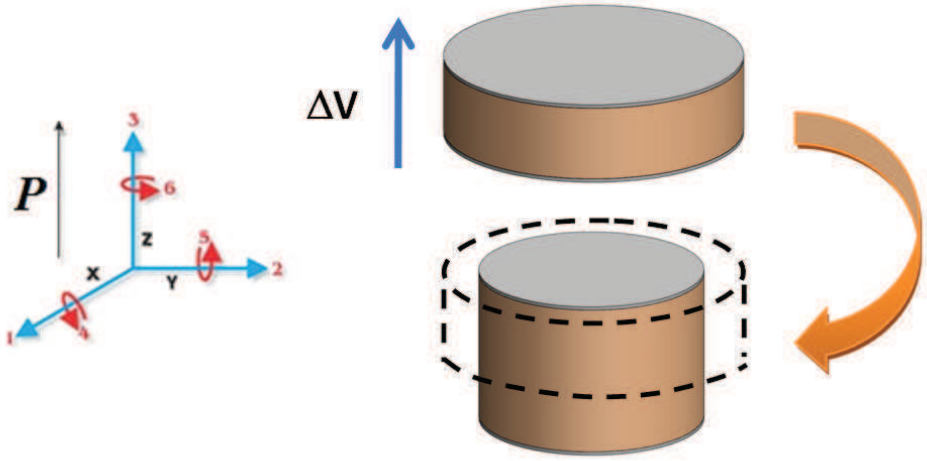


Figure I.44. Illustration de l'effet piézoélectrique.

$$S = d.E \rightarrow \begin{cases} S_3 = d_{33}.E \\ S_1 = S_2 = -d_{31}.E \end{cases} \qquad (\text{I.17})$$

Le modèle analytique unidimensionnel a pour objectif d'exprimer la déformation longitudinale de la fibre par une expression équivalente reliant la déformation au champ électrique en définissant un nouveau coefficient piézoélectrique prenant en compte les effets de la géométrie cylindrique et la présence d'un cœur passif.

I.3.3.4.i. Fibres seules

Pour les applications d'actionneurs envisagées, il semble que le procédé de coextrusion soit le seul capable d'atteindre rapidement des épaisseurs suffisantes. En effet, la capacité de déformation de la fibre dépend essentiellement de deux paramètres :

- de l'épaisseur du dépôt céramique, et plus particulièrement du rapport entre l'épaisseur de la fibre et le rayon total de la fibre, appelé rapport d'aspect α ;
- de la rigidité du cœur métallique et donc de son module d'élasticité $Y_{métal}$.

Le modèle analytique unidimensionnel permet de rendre compte de l'effet de ces deux facteurs. La Figure I.45 présente l'évolution du coefficient piézoélectrique équivalent d'une fibre, normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique d'une céramique massive, en fonction du rapport d'aspect α et pour différents modules élastiques longitudinaux du métal.

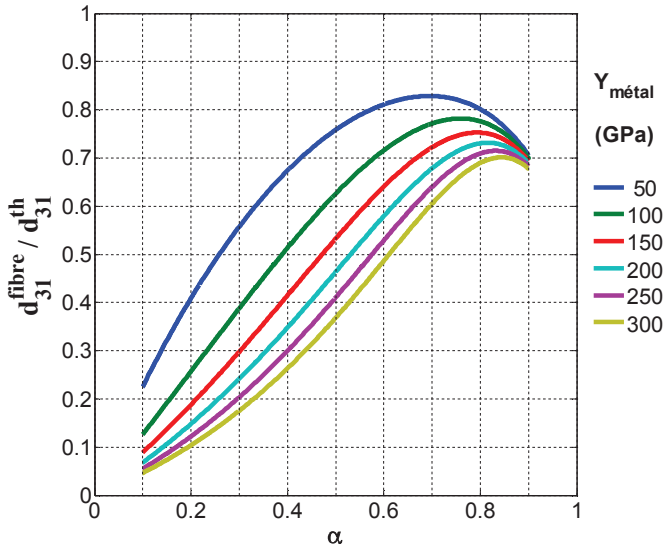


Figure I.45. Evolution du coefficient piézoélectrique d_{31} d'une fibre à âme métallique en fonction du rapport d'aspect α et du module d'élasticité $Y_{métal}$ de l'âme centrale.

On observe ainsi que la capacité de déformation est réduite par la présence du cœur métallique et ce, d'autant plus que le cœur est rigide. De même, il existe des rapports d'aspect optimums en fonction de la rigidité du cœur pour obtenir des capacités de déformations maximales d'environ 83% pour une âme peu rigide (50 GPa) à 70% pour une âme très rigide (300 GPa).

Ceci implique qu'il convient de pouvoir réaliser une épaisseur de dépôt bien déterminée en fonction du matériau de l'âme métallique. Il est donc nécessaire d'avoir plusieurs filières pour imaginer produire des fibres avec des rapports d'aspect optimums avec différents matériaux d'âme. D'autre part, le coût élevé des éléments pour le procédé de coextrusion (extrudeuse, filières…) rend difficile son développement à l'échelle du laboratoire.

I.3.3.4.ii. Fibres intégrées

Le modèle analytique unidimensionnel peut être étendu pour considérer des fibres uniformément intégrées dans un matériau, de telle manière qu'elles représentent une fraction volumique v_f de l'ensemble de la structure composite ainsi formée.

Les figures I.46 et I.47 présentent l'évolution du coefficient piézoélectrique équivalent du composite (matrice & MCPF), normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique d'une céramique massive, en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques de fibres v_f, dans le cas d'une matrice plutôt souple (Figure I.46) et dans le cas d'une matrice plus rigide (Figure I.47). Le calcul est effectué en considérant une âme en platine (Y = 170 GPa), matériau principalement utilisé par les différentes équipes qui ont travaillé sur les MCPF.

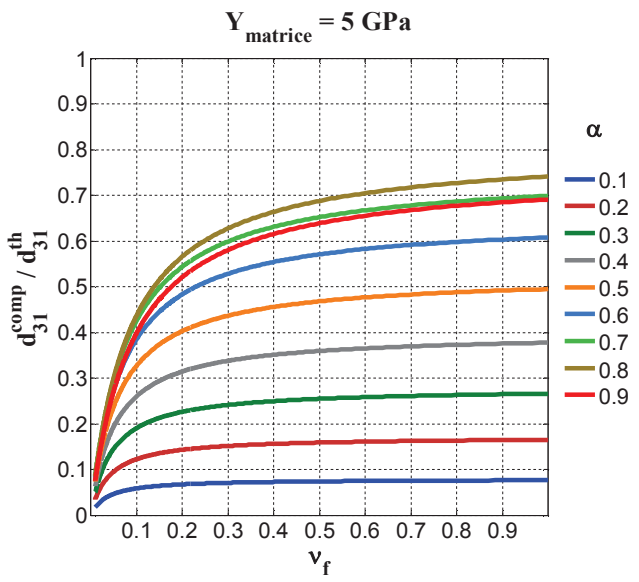


Figure I.46. Evolution du coefficient piézoélectrique d_{31} d'un composite à fibres à âme métallique en platine ($Y_{métal}$ = 170 GPa) intégrées dans une matrice souple (type époxyde) en fonction de la fraction volumique de fibres.

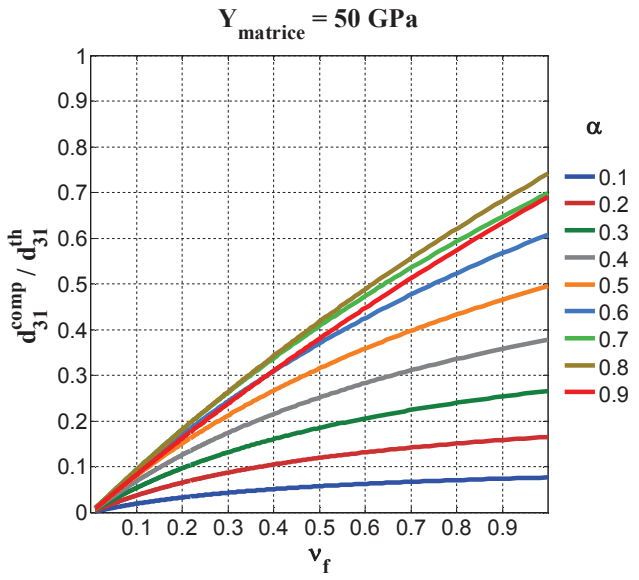


Figure I.47. Evolution du coefficient piézoélectrique d_{31} d'un composite à fibres à âme métallique en platine ($Y_{métal}$ = 170 GPa) intégrées dans une matrice rigide (type époxyde renforcé) en fonction de la fraction volumique de fibres.

Lorsque la matrice est souple (Figure I.46), les capacités de déformation maximales sont atteintes pour des fractions volumiques de fibres relativement faibles. Les rapports d'aspect élevés favorisent toujours les capacités de déformation élevées. Lorsque la matrice est plus rigide (Figure I.47), il est nécessaire d'avoir des fractions volumiques de fibres très élevées pour garder des capacités de déformation élevées.

En considérant que le procédé de coextrusion ne permette pas d'obtenir des fibres inférieures à 200 µm [SATO 2004], il semble difficile d'utiliser ces fibres avec une fraction volumique élevée sans perturber le composite dans lequel elles sont intégrées.

I.4. Conclusion

Ce premier chapitre a permis de rendre compte, de manière synthétique, de l'ensemble de la problématique liée à l'utilisation de fibres en céramique piézoélectrique dans l'aéronautique.

Il a d'abord été montré que les fibres céramiques piézoélectriques présentaient un intérêt particulier pour répondre aux besoins de l'industrie aéronautique dans un certain nombre d'applications : contrôle aérodynamique, micro-positionnement, amortissement de vibrations, contrôle santé intégré, récupération d'énergie *et cetera*. Pour ces domaines d'applications, il est nécessaire d'utiliser des matériaux avec des caractéristiques piézoélectriques très élevées (d_{ij} et k_{ij}) et à l'heure actuelle, seules les céramiques piézoélectriques (typiquement les titano-zirconate de plomb) ont des propriétés adaptées. Cependant, la technologie céramique est relativement contraignante pour obtenir des produits aussi complexes que les fibres (faible diamètre et très grande longueur) : en effet, il est nécessaire de réaliser la mise en forme du cru dans les dimensions recherchées puis de réaliser le frittage à haute température de la pièce, étape pendant laquelle celle-ci doit maintenir son intégrité physique et dimensionnelle. Les différents auteurs qui ont travaillé sur l'élaboration de ces fibres sont parvenus à produire de telles fibres mais dans des dimensions limitées en termes de longueur, de rapport d'aspect et de diamètre final.

L'objectif de ces travaux est de réaliser des fibres piézoélectriques susceptibles d'être intégrées dans des composites utilisés dans l'industrie aéronautique (comme les composites CFRP carbone/époxyde). Ces fibres doivent être suffisamment fines pour ne pas modifier les propriétés mécaniques du composite (les fibres ne doivent pas constituer un défaut) et suffisamment robustes pour permettre leur manipulation dans un processus d'intégration à ces structures, en envisageant éventuellement des procédés textiles. Dès lors, les fibres céramiques sont délicates à utiliser du fait de leur fragilité intrinsèque et de leur sensibilité à l'endommagement.

Dans ce contexte, les fibres piézoélectriques à âme métallique semblent constituer la morphologie la plus adaptée pour répondre à ces contraintes. La présence de l'âme métallique permet de répondre à plusieurs problématiques :

- cette âme constitue un support qui permet de déposer l'enveloppe céramique. Plusieurs procédés peuvent alors être envisagés : synthèse hydrothermale, le dépôt par électrophorèse, l'extrusion ou l'enduction ;
- l'âme métallique reste à l'intérieur de la fibre, pendant et après le frittage. Elle permet d'améliorer la tenue mécanique de la fibre ce qui, pour le frittage, permet de réaliser des structures autoportantes dans les dimensions requises (grande longueur, faible diamètre) ;
- l'âme métallique constitue une électrode interne continue et homogène. L'utilisation de matrices conductrices permet de simplifier considérablement le système d'électrodes de commande. Par ailleurs, les tensions de commande sont faibles vu la dimension utile (l'épaisseur de la couche céramique) ;
- l'application d'un champ électrique radial et la présence d'un élément passif rigide au centre de la fibre réduit l'efficacité de la fibre. Une première approche par modélisation a montré qu'il existait des géométries optimales qui permettaient de limiter cette perte d'efficacité. Le rapport d'aspect, rapport entre l'épaisseur de la couche piézoélectrique et le rayon total de la fibre, est un facteur déterminant et il est nécessaire de privilégier les rapports d'aspect élevés (0,6 ~ 0,8) pour obtenir les capacités de déformation les plus élevées possibles.

Ces constations permettent de dégager une première conclusion quant au procédé d'élaboration de ces fibres. Le procédé doit permettre de réaliser des fibres très fines, les plus longues possibles, avec une épaisseur importante de céramique sur le fil métallique. La synthèse hydrothermale et l'électrophorèse ne permettent pas de réaliser des fibres très longues ni avec des rapports d'aspect élevés. Le procédé de coextrusion permet quant à lui de réaliser de grandes longueurs (virtuellement infinie) avec des rapports d'aspect élevés mais le diamètre minimal des fibres (~ 200 µm) peut être limitant pour leur intégration dans des structures composites renforcées par des fibres.

Par ailleurs, les fibres sont réalisées principalement sur des âmes en platine, seul métal résistant dans l'environnement thermochimique de frittage des céramiques piézoélectriques PZT. Pour envisager la substitution du platine, il est nécessaire de modifier la formulation de ces matériaux en utilisant des additifs de frittage pour réduire le plus possible la température de frittage en garantissant des propriétés piézoélectriques intéressantes.

La caractérisation de ces fibres, de manière individuelle ou collées/intégrées à des structures, permet de vérifier le comportement en tant que capteur et actionneur. De plus, l'utilisation de fibres intégrées à la surface de composite CFRP a permis d'étudier le comportement en amortissement de vibrations et en capteur d'endommagement superficiel.

Les premiers résultats de la modélisation analytique ont permis de montrer l'influence des propriétés élastiques de l'âme métallique et de la structure dans laquelle sont intégrées les fibres. L'utilisation de matériaux rigides réduit les capacités de déformation des fibres. Il est donc peu probable d'utiliser ces fibres en tant qu'actionneur pour remplacer les actionneurs hydrauliques des gouvernes par exemple, mais pour déformer des structures plus souples sur des engins plus petits (drones, missiles) ou pour réaliser de la microdéformation sur des voilures, l'utilisation des MCPF restent envisageables.

Pour conclure, l'intérêt d'utiliser ce type de fibres dans des systèmes de déformation ou de suivi de l'endommagement, en respectant des géométries favorables, de manière localisée a été montré. Plusieurs brevets ont été déposés dans ce sens. Néanmoins, la réalisation de ces fibres soulève de nombreux problèmes, surtout pour imaginer un développement à plus grande échelle. Les principaux verrous à lever sont :

- de pouvoir réaliser des fibres très longues, très fines avec des épaisseurs de céramique active bien déterminée ;
- de pouvoir substituer le platine pour réduire le coût de fabrication de la fibre en utilisant des additifs de frittage pour réduire la température de frittage et espérer utiliser des métaux nobles moins chers ou des alliages métalliques. Néanmoins, la réduction des propriétés piézoélectriques suite à l'introduction de phase(s) secondaire(s) et du traitement thermique à plus basse température nécessite de trouver un compromis ;
- de pouvoir déterminer, par simulation numérique, le comportement effectif de ces fibres dans la mesure où elles seraient intégrées dans une structure composite dans des configurations diverses et variées.

Chacun de ces points pourrait faire l'objet de travaux de thèses distincts et il peut paraître ambitieux de les solutionner simultanément. Il a été choisi d'étudier conjointement l'ensemble de ces problématiques, en termes d'élaboration de technologie céramique, de caractérisations piézoélectriques et de simulation numérique du comportement des fibres. L'objectif est donc

de déterminer quel type de fibres est réalisable, à quel coût, avec quelles propriétés et pour quel type d'applications, et ce, dans la perspective d'un développement à plus grande échelle pour leur utilisation comme capteurs et actionneurs pour le marché aéronautique civil et militaire.

Bibliographie du Chapitre I

Bent A.A. (1994) *Piezoelectric fiber composites for structural actuation* (Thèse de doctorat). Massachussetts Institute of Technology, Department of Aeronautics and Astronautics, USA.

Bent A.A. Hagood N.W. (1997) *Piezoelectric fiber composites with interdigitated electrodes*. Journal of Intelligent Material Systems and Structures, **8** (11), 903‑919.

Bent A.A. Hagood N.W. Rodgers J.P. (1995) *Anisotropic actuation with piezoelectric fiber composites*. Journal of Intelligent Material Systems and Structures, **6** (3), 338‑349.

Blanc F. (2013) *Portraits-robots de l'avion du futur*. Le Monde hors-série, **34**, 44‑49.

Boccaccini A.R. Schindler U. Krüger H.-G. (2001) *Ceramic coatings on carbon and metallic fibres by electrophoretic deposition*. Materials Letters, **51** (3), 225‑230.

Boccaccini A.R. Van der Biest O. Talbot J.B. (2002) *Electrophoretic deposition, fundamentals and applications: proceedings of the international symposium*. The Electrochemical Society.

Bowen C.R. Stevens R. Nelson L.J. Dent A.C. Dolman G. Su B. Button T.W. Cain M.G. Stewart M. (2006) *Manufacture and characterization of high activity piezoelectric fibres*. Smart Materials and Structures, **15** (2), 295‑301.

Brei D. Cannon B.J. (2004) *Piezoceramic hollow fiber active composites*. Composites Science and Technology, **64** (2), 245‑261.

Charon W. (2010) *Actionneurs piézoélectriques*. Université de Technologie de Belfort Montbéliard, p. 32.

Delehelle A. (2008) *Etude d'un concept innovant d'actionneur électromécanique linéaire à effets magnétique et piézoélectrique en vue d'applications dans le domaine des commandes de vol* (Thèse de doctorat). Institut National Polytechnique de Toulouse, Toulouse.

Dent A.C. Nelson L.J. Bowen C.R. Stevens R. Cain M. Stewart M. (2005) *Characterisation and properties of fine scale PZT fibres*. Journal of the European Ceramic Society, **25** (12), 2387‑2391.

Duc G. (1998) *Panorama des principales approches relevant du « cadre H_∞ »*. Traitement du signal, Presse universitaire de Grenoble, **15** (6), 627‑631.

Gatard J. (2011) *Envergures*, **50**, 11‑13.

Hajjaji A. Benayad A. Sebald G. Pruvost S. Guiffard B. Qiu J. Guyomar D. (2008) *Synthesis and characterization of $0.65Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$–$0.35PbTiO_3$ fibers with Pt core*. Materials Research Bulletin, **43** (3), 493‑501.

Haussonne J.-M. (2002) *Céramiques pour l'électronique et l'électrotechnique*. Presses polytechniques et universitaires romandes.

Helbig J. Glaubitt W. Spaniol H. Vierhaus P. Lange U. Hansch R. Watzka W. Sporn D. (2003) *Development and technology of doped sol–gel derived lead zirconate titanate fibers*. Smart Materials and Structures, **12** (6), 987‑992.

Jaffe B. Cook W.R. Jaffe H. (1971) *Piezoelectric ceramics*. Academic Press.

Kong L.B. Zhang T.S. Ma J. Boey F. (2008) *Progress in synthesis of ferroelectric ceramic materials via high-energy mechanochemical technique*. Progress in Materials Science, **53** (2), 207‑322.

Kovalovs A. Barkanov E. Gluhihs S. (2007) *Active control of structures using macro-fiber composite (MFC)*. Journal of Physics: Conference Series, **93**, 012034.

Kuscer D. Korzekwa J. Kosec M. Skulski R. (2007) *A- and B-compensated PLZT x/90/10: Sintering and microstructural analysis*. Journal of the European Ceramic Society, **27** (16), 4499‑4507.

Lenglet E. (2003) *Contribution au développement d'une méthode d'homogénéisation des composites à fibres actives* (Thèse de doctorat). Université des Sciences et Technologies de Lille, Lille.

Ma J. Cheng W. (2004) *Electrophoretic deposition of lead zirconate titanate ceramics*. Journal of the American Ceramic Society, **85** (7), 1735‑1737.

Moulson A.J. Herbert J.M. (2003) *Electroceramics*. John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK.

MRP (2013) *La nouvelle France industrielle*. Ministère du redressement productif.

Ng S.Y. Boccaccini A.R. (2005) *Lead zirconate titanate films on metallic substrates by electrophoretic deposition*. Materials Science and Engineering: B, **116** (2), 208‑214.

Nogarède B. (2005) *Électrodynamique appliquée: fondements et principes physiques de l'électrotechnique*, Sciences Sup. Dunod, Paris.

Noheda B. Gonzalo J. Cross L. Guo R. Park S.-E. Cox D. Shirane G. (2000) *Tetragonal-to-monoclinic phase transition in a ferroelectric perovskite: the structure of PbZr0.52Ti0.48O3*. Physical Review B, **61** (13), 8687‑8695.

Nouzille V. (2008) *Capital*, **203**, 62‑64.

ONERA (2011) *Transport aérien 2050 - Des recherches pour préparer l'avenir*.

ONERA (2012) *Rapport annuel de l'ONERA*.

Prabhakaran K. Jayasingh M.E. Raghunath S. Durgaprasad C. Sharma S.C. (2007) *A dip-coating process for the preparation of PZT microtubes*. Journal of the American Ceramic Society, **90** (3), 983‑985.

Qiu J. (2003) *Fabrication of piezoelectric fibers with metal core*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2003: Active Materials: Behaviour and Mechanics, Proceedings of SPIE, San Diego, CA (USA), p. 475‑483.

Sarkar P. De D. Rho H. (2004) *Synthesis and microstructural manipulation of ceramics by electrophoretic deposition*. Journal of Materials Science, **39** (3), 819‑823.

Sato H. (2009) *Metal core piezoelectric toughness fiber*. Présenté à : Solid-state sensors, actuators and microsystems conference, IEEE, Denver, CO (USA), p. 49‑52.

Sato H. Nagamine M. (2005a) *Mechanical properties of metal-core piezoelectric fiber*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2005: Smart Structures and Integrated Systems, Proceedings of SPIE, San Diego, CA (USA), p. 623‑629.

Sato H. Sekiya T. Nagamine M. (2004) *Design of the metal-core piezoelectric fiber*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2004: Smart Structures and Integrated Systems, Proceedings of SPIE, San Diego, CA (USA), p. 97‑103.

Sato H. Shimojo Y. Sekiya T. (2003a) *Development of the piezoelectric fiber and application for the smart board*. Présenté à : Smart Materials, Structures and Systems, Proceedings of SPIE, Bangalore (Inde), p. 292‑296.

Sato H. Shimojo Y. Sekiya T. (2003b) *Development of metal core-assisted piezoelectric complex fibers and application to the Smart Board*. Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers A, **69** (684), 1305‑1310.

Sato H. Shimojo Y. Sekiya T. (2003c) *Fabrication and vibration suppression behavior of metal core piezoelectric fibers in CFRP composite*. Présenté à : Transducing Materials and Devices, Proceedings of SPIE, Brugge (Belgique), p. 80‑87.

Sato H. Shimojo Y. Sekiya T. (2005b) *Lead zirconate titanate fiber, Smart board using lead zirconate titante fiber, Actuator utilizing smart board and sensor utilizing smart board*. Brevet N°6963157.

Sato H. Takeda N. Asanuma H. (2007) *Functional composite material wherein piezoelectric fiber having metal core is embedded*. Brevet N°1867473A1.

Sebald G. Benayad A. Qiu J. Guiffard B. Guyomar D. (2006) *Electromechanical characterization of* $0.55Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3–0.45Pb(Zr_{0.3}Ti_{0.7})O_3$ *fibers with Pt core*. Journal of Applied Physics, **100** (5), 54‑106.

Sebald G. Qiu J. Guyomar D. Hoshi D. (2005) *Modeling and characterization of piezoelectric fibers with metal core*. Japanese Journal of Applied Physics, **44** (8), 6156‑6163.

Shimojo Y. Sato H. Takagi K. Shan Y.J. Imoto H. Nagamine M. (2007) *Smart system using new piezoelectric fiber with metal core*. Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, **1** (6), 728‑733.

Takagi K. Sato H. Saigo M. (2006) *Vibration control of a smart structure embedded with metal-core piezoelectric fibers*. Advanced Composite Materials, **15** (4), 403‑417.

Takagi K. Sato H. Saigo M. Smith R.C. (2004) *Robust vibration control of the metal-core-assisted piezoelectric fiber embedded in CFRP composite*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2004: Modeling, Signal Processing and Control, Proceedings of SPIE, San Diego, CA (USA), p. 376‑385.

Takagi K. Sato H. Saigo M. Smith R.C. (2005) *Damage detection and gain-scheduled control of CFRP smart board mounting the metal core assisted piezoelectric fiber*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2005: Modeling, Signal Processing and Control, Proceedings of SPIE, San Diego, CA (USA).

Tang B. Fan H. Ke S. Liu L. (2007) *Microstructure evolutions and electrical properties of* $Pb_{1-x}La_x(Zr_{0.56}Ti_{0.44})_{1-x/4}O_3$ *ceramics*. Materials Science and Engineering: B, **138** (3), 205‑209.

Van Tassel J. Randall C.A. (1999) *Electrophoretic deposition and sintering of thin/thick PZT films*. Journal of the European Ceramic Society, **19** (6-7), 955‑958.

Wilkie W. High J. Bockman J. (2002) *Reliability testing of NASA piezocomposite actuators*, in: Proceedings of the Actuator 2002. Présenté à : 8th International Conference on New Actuators, Bremen (Allemagne), p. 4.

Wilkie W.K. Bryant R.G. High J.W. Fox R.L. Hellbaum R.F. Jalink, Jr. A. Little B.D. Mirick P.H. (2000) *Low-cost piezocomposite actuator for structural control applications*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2000: Industrial and Commercial Applications of Smart Structures Technologies, Proceedings of SPIE, Newport Beach, CA (USA), p. 323‑334.

Williams R.B. Park G. Inman D.J. Wilkie W.K. (2002) *An overview of composite actuators with piezoceramic fibers*. SPIE proceedings series, **4753** (2), 1618.

Yoon C.-B. Jun S.-H. Lee S.-M. Kim H.-E. Lee K.-W. (2006) *Piezoelectric fibers with uniform internal electrode by co-extrusion process*. Journal of the American Ceramic Society, **89** (4), 1333‑1336.

Yoshikawa S. Farrell M. Warkentin D.J. Jacques R.N. Saarmaa E. (1999) *Monolithic piezoelectric actuators and vibration dampers with interdigital electrodes*. Présenté à : Smart Structures and Materials 1999: Smart Structures and Integrated Systems, Proceedings of SPIE, Newport Beach, CA (USA), p. 578‑585.

Zachariasz R. Zarycka A. Ilczuk J. (2007) *Determination of the lead titanate zirconate phase diagram by the measurements of the internal friction and Young's modulus*. Materials Science-Poland, **25** (3), 781‑789.

Chapitre II

Elaboration de MCPF par enduction

Chapitre II ELABORATION DE MCPF PAR ENDUCTION

II.1. Bibliographie sur l'enduction

II.1.1. Principe et applications

L'enduction consiste à plonger un matériau (substrat plan, cylindre, tube, fibre, tissu, formes complexes…) dans un bain et de l'en retirer à vitesse constante pour déposer un film sur celui-ci. L'épaisseur déposée dépend en premier lieu de la vitesse de retrait et des propriétés rhéologiques du bain mais également des dimensions du substrat, de son état de surface *et cetera*.

Le procédé d'enduction est appliqué à l'échelle industrielle pour les revêtements protecteurs sur les aciers (peintures, laques, galvanisation à chaud…), pour les revêtements antioxydants sur les films alimentaires plastiques, pour le traitement des verres de lunettes, pour le revêtement des fibres textiles, des fibres optiques *et cetera*.

II.1.2. Quelques données sur l'enduction avec des suspensions PZT

La réalisation de dépôt à partir de suspensions de PZT est répandue pour l'élaboration de composants pour la micro-électronique. La technique la plus répandue est l'utilisation de la technique sol-gel pour le dépôt sur des substrats plans de silicium ou de composés à base de platine. Néanmoins, les épaisseurs déposées sont souvent très faibles (quelques dizaines à centaines de nanomètres). Des modifications ont été apportées à la voie sol-gel traditionnelle pour augmenter l'épaisseur déposée (sol-gel chargé, modification de la viscosité) en réalisant des dépôts multicouches sans fissuration. Une fois encore, les épaisseurs finales déposées restent faibles (une dizaine de microns).

Le Tableau II.1 reprend quelques travaux sur la réalisation de dépôts de PZT sur substrat plan par différentes méthodes ainsi que les épaisseurs obtenues.

Tableau II.1. Epaisseurs de dépôts PZT réalisés par différentes techniques.

Technique	Epaisseur (µm)	Auteurs
Sol-gel multicouche Dip-coating	< 1 µm	[SIMÕES 2001]
Sol-gel muticouche Spin-coating	~ 4 µm	[HU 2004]
Sol-gel multicouche Dip-coating	~ 15 µm	[HE 2003]
Sol-gel chargé Dip-coating	5-15 µm	[BARDAINE 2008]
Screen-printing jusque 2 couches	20-150 µm	[GEBHARDT 2007]
Dépôt par électrophorèse	160 µm	[MA 2004, 2002]
Dépôt par électrophorèse sur fil Φ500 µm	80 µm	[NG 2005]

Il apparait donc nécessaire de développer une technique à même d'obtenir des épaisseurs plus importantes sur des substrats cylindriques de faible diamètre : l'enduction multicouche avec une barbotine chargée en poudre.

II.1.3. Eléments pour estimer l'épaisseur déposée

II.1.3.1. Modèle de Landau, Levich et Deryaguin

Le phénomène d'entrainement du liquide met en jeu un équilibre entre des effets visqueux et des effets capillaires représentatifs de la tension de surface du couple substrat/liquide considéré [SEIWERT 2010]. Ces effets conduisent à l'apparition d'un ménisque lors du retrait du substrat. Le ménisque présent à vitesse nulle, dit ménisque statique, est différent du ménisque apparaissant lors du retrait du substrat, dit ménisque dynamique, caractérisé par une longueur λ (Figure II.1).

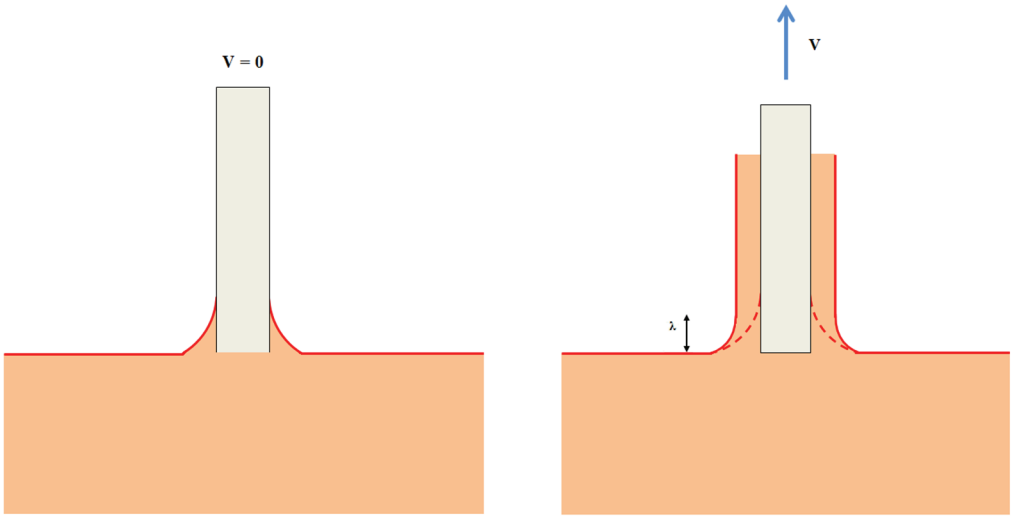


Figure II.1. Ménisques créés par les effets capillaires en statique et en dynamique.

En négligeant les effets inertiels [KOULAGO 1995, VERMAUT 2009], hypothèse valable pour des vitesses de retrait relativement faibles (< 1m/s), et en considérant que les effets de pesanteur perturbent peu le ménisque dynamique [VERMAUT 2009, YANG 2008], la théorie développée par Landau, Levich et Deryaguin permet d'estimer l'épaisseur déposée sur un substrat plan (Landau et Levish en 1942) ou sur un cylindre de faible diamètre (Deryaguin en 1943).

Ils considèrent un substrat tiré à vitesse constante V d'un fluide newtonien de viscosité cinématique η et de tension de surface γ. Il s'agit alors d'un entrainement libre en régime visco-capillaire. L'épaisseur peut alors être estimée en résolvant l'équation de Navier-Stockes en considérant de faibles nombres de Reynolds [KOULAGO 1995, SEIWERT 2010].

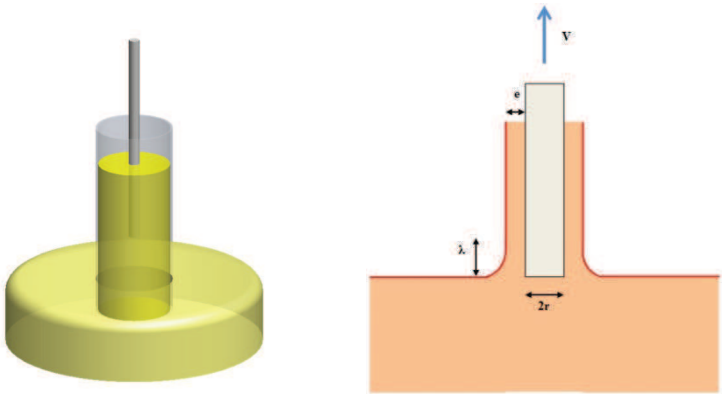


Figure II.2. Schéma de principe et grandeurs caractéristiques du procédé d'enduction.

En considérant une fibre de rayon *r* (Figure II.2), on obtient :

$$e = 1{,}34 \times r \times \left(\frac{\eta V}{\gamma}\right)^{2/3} = 1{,}34 \times r \times Ca^{2/3} \qquad (\text{ II.1 })$$

avec
e, l'épaisseur déposée en m ;
r, le rayon de la fibre en m ;
η, la viscosité cinématique du fluide en $N.s.m^{-2}$;
γ, la tension de surface en $N.m^{-1}$;
V, la vitesse de retrait en $m.s^{-1}$;
Ca, le nombre capillaire tel que $Ca = \eta V/\gamma$.

Le nombre capillaire *Ca* compare les effets visqueux dus aux forces capillaires aux effets dus à la tension de surface. Il permet de mettre en évidence que l'augmentation de la vitesse et/ou de la viscosité permet d'augmenter l'épaisseur déposée tandis que l'augmentation de la tension de surface a l'effet inverse. Ainsi, pour un liquide donné, l'influence de la vitesse permet de contrôler l'épaisseur déposée.

Lorsque l'épaisseur déposée devient importante *i.e.* non négligeable devant le diamètre de la fibre, l'expression de l'épaisseur déposée dans la théorie de Landau-Levich-Deryaguin (L.L.D.) est corrigée en remplaçant *r* par *r*+*e* [WHITE 1967, 1966] :

$$e = \frac{1{,}34 \times r \times Ca^{2/3}}{1 - 1{,}34 \times Ca^{2/3}} \qquad (\text{ II.2 })$$

Cette théorie est expérimentalement vérifiée si les hypothèses de travail sont respectées. Lorsque les épaisseurs deviennent trop importantes (e > γ/ρg), les vitesses de retrait sont élevées (> 1m/s), que le liquide devient complexe (tensioactifs, charges…), ou que la rugosité du substrat est importante, l'écart à la loi établie par L.L.D. devient important [SEIWERT 2010]. Néanmoins, elle permet de rendre compte des facteurs pertinents pour le contrôle de l'épaisseur déposée.

II.1.3.2. Application au cas étudié

Le but n'est pas ici d'établir un modèle prédictif de l'épaisseur déposée dans les conditions opératoires mais de vérifier que les paramètres intervenant dans la théorie L.L.D. peuvent également être considérés, et eux seuls, pour l'application choisie.

La vitesse de retrait maximale autorisée par le dispositif expérimental est de 1,4 mm/s, soit des vitesses très inférieures au-delà desquelles les effets d'inertie ne peuvent être négligés [SEIWERT 2010, VERMAUT 2009].

La principale modification vient de l'utilisation d'une barbotine de coulage en bande, c'est à dire un mélange avec un taux de charges très élevé et des viscosités importantes. Pour des suspensions faiblement chargées ($v_f < 0{,}03$), la loi d'Einstein définit l'évolution de la viscosité de la suspension en fonction de la fraction volumique de particules v_f et de la viscosité initiale η_0 (sans particules) du solvant [HUANG 2006] :

$$\eta = \eta_0 \times \left(1 + 2{,}5 v_f\right) \qquad (\text{ II.3 })$$

Des modèles plus complexes prenant en compte les interactions entre particules (effets hydrodynamiques), la forme des particules *et cetera* ont été développés mais la tendance reste la même : la viscosité s'accroit avec la concentration de particules en suspension.

La viscosité des barbotines utilisées est de l'ordre de 0,6 Pa.s (mesure à taux de cisaillement élevés >100 s^{-1}), ce qui est en bonne corrélation avec les ordres de grandeurs de barbotines évoqués par d'autres auteurs [HAUSSONNE 2005, SIMÕES 2001]. L'utilisation de suspensions avec de telles viscosités conduit à l'augmentation de l'épaisseur déposée [QUERE 1999]. Par ailleurs, l'utilisation d'une viscosité élevée permet de garder des nombres de Reynolds faibles ($R_e \sim 10^{-4}$) et de rester dans l'hypothèse où l'on peut négliger les effets d'inertie.

Les effets liés à la gravité interviennent lorsque l'épaisseur déposée est non négligeable devant le rayon de la fibre. Lorsque le film déposé est soumis aux effets de la gravité, il apparait un phénomène de drainage [QUERE 1999] qui conduit à une réduction de l'épaisseur déposée ou à des hétérogénéités d'épaisseurs si le drainage n'apparait pas de manière homogène.

L'influence de la gravité peut être négligée si le nombre de Bond, qui compare l'effet de la gravité aux forces capillaires, est suffisamment faible. En considérant ρ la masse volumique du liquide, g l'accélération de la pesanteur et κ^{-1} la longueur capillaire, cette condition s'écrit :

$$Bo = \frac{\rho g r^2}{\gamma} = (r\kappa)^2 \ll 1 \qquad \text{(II.4)}$$

Cette condition est généralement satisfaite pour des fibres de rayons inférieurs au millimètre [QUERE 1999]. Ceci est vérifié avec les suspensions utilisées ($B_o < 10^{-1}$).

Les hypothèses du modèle étant respectées, l'application de la loi L.L.D. aux barbotines utilisées donne un rapport e/r après frittage (en considérant un retrait radial de 15%) de l'ordre de 0,1. Ceci correspond à des rapports d'aspect α de 0,1. En considérant le rapport d'aspect minimal à atteindre de $\alpha_{min} = 0,6$, les propriétés rhéologiques de la barbotine pour réaliser un seul dépôt doivent être telle que $\eta/\gamma \geq 200$ s/m. Il sera donc indispensable de réaliser des dépôts multicouches pour atteindre les épaisseurs nécessaires pour les applications d'actionneurs envisagées.

De ce fait, l'utilisation du modèle devient délicate au vu du changement de la nature de l'interface. De plus, il est probable qu'il y ait des interactions entre couches successives (absorption du solvant, dissolution d'espèces organiques…) qui modifieront la nature de l'écoulement. Ajouter à cela l'augmentation d'épaisseur qui pourra faire intervenir les effets de la gravitation, l'utilisation du modèle à des fins prédictives devient difficile.

Le modèle reste néanmoins pertinent pour comprendre les différents paramètres qui influencent et contrôlent l'épaisseur déposée par enduction.

II.2. Matières premières

Pour la réalisation des barbotines ou des échantillons massifs, deux poudres ont été utilisées : une poudre commerciale sur une base PZT et une poudre PZT dopée au lanthane élaborée au sein du laboratoire.

La poudre commerciale est très finement multidopée ce qui conduit à l'obtention de bonnes propriétés piézoélectriques dans différentes conditions de frittage. Sa formulation n'est pas accessible. Il a donc été développé une formulation permettant d'obtenir des propriétés similaires en faisant abstraction des éléments de dopage spécifique. Il faudra donc s'attendre à

ce que notre poudre présente des propriétés piézoélectriques moyennes sans optimisation préalable. L'objectif est de disposer d'une grande quantité de poudre avec des propriétés granulométriques et un comportement au frittage semblable pour optimiser le procédé d'élaboration des fibres.

Les détails des procédures d'élaboration et de caractérisations des poudres sont donnés en Annexe 1.

II.2.1. Poudre synthétisée au laboratoire (LMCPA)

II.2.1.1. Synthèse

La composition retenue est un PZT dopé au lanthane qui permet d'obtenir des coefficients piézoélectriques et des coefficients de couplage élevés avec un vieillissement limité comparé aux autres compositions douces. Le ratio molaire zirconium/titane est fixé à 60/40 et le pourcentage molaire de lanthane est de 7%. La formulation choisie favorise l'arrangement des lacunes en site B pour améliorer le comportement au frittage [KUSCER 2007]. La formulation globale s'écrit alors $Pb_{0,93}La_{0,07}(Zr_{0,60}Ti_{0,40})_{0,975}O_3$, qui sera abrégée par la suite en 7/60/40.

Les précurseurs sous formes d'oxydes sont mélangés au planétaire dans l'éthanol en présence d'ester phosphorique (dispersant). Le mélange est ensuite séché à 40°C pendant au moins 12 heures. La poudre obtenue est placée dans un creuset en alumine clos puis elle est calcinée à 960°C pendant 4 heures. Le compact formé pendant le traitement thermique est alors broyé à la main avant d'être broyé par attrition en milieu aqueux pendant 20 minutes. Après séchage, la poudre est tamisée à 25 µm.

Le synoptique de la synthèse est présenté sur la Figure II.3.

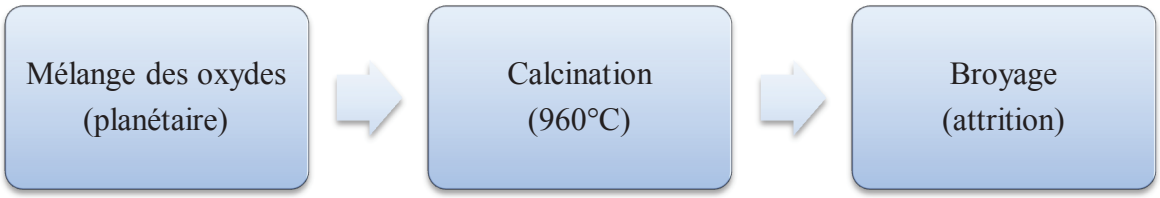


Figure II.3. Synoptique de la synthèse de poudre PLZT 7/60/40.

Des échantillons massifs cylindriques sont mis en forme par pressage isostatique à froid (3000 bars) pour les caractérisations microstructurales et thermodilatométriques. Des échantillons frittés sont ensuite découpés et rectifiés avant de déposer par sérigraphie une couche d'argent pour les caractérisations électriques.

II.2.1.2. Résultats

La Figure II.4 présente la répartition granulométrique de la poudre synthétisée déterminée par granulométrie laser.

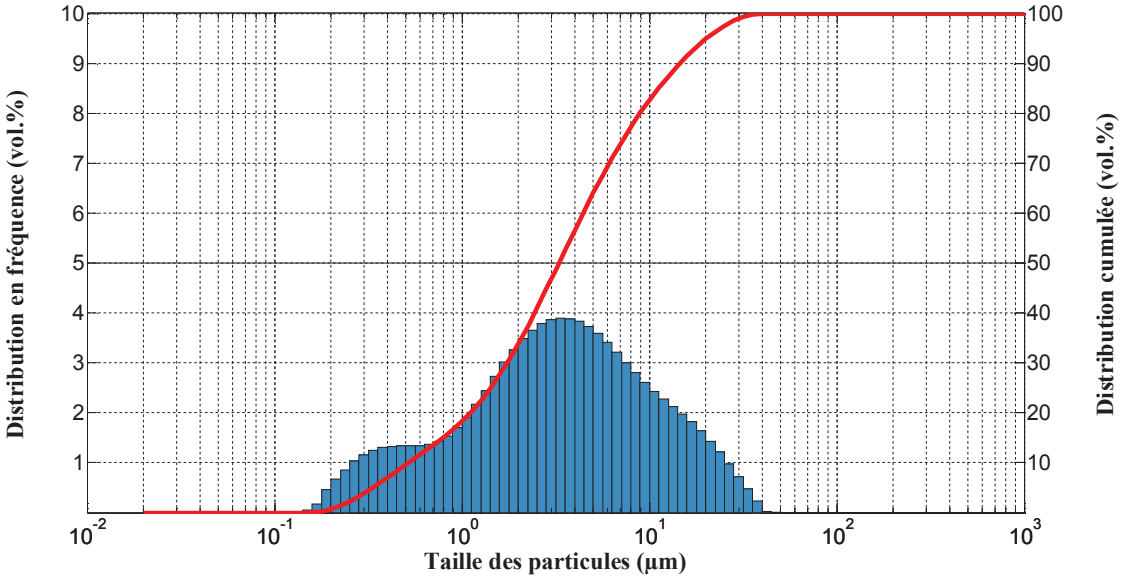


Figure II.4. Analyse granulométrique de la poudre synthétisée (LMCPA).

La distribution granulométrique est bimodale : une population majoritaire avec un d_{50} vers 2,5 µm et une population secondaire plus fine avec un d_{50} vers 0,4 µm.

La surface spécifique de la poudre est déterminée par la méthode B.E.T. La valeur mesurée permet de déterminer une taille de grains équivalente. On obtient :

$$S_{BET} = 1{,}18\ m^2/g \qquad\qquad d_{BET} = 0{,}64\ \mu m$$

La Figure II.5 présente le diffractogramme-X de la poudre. L'analyse par diffraction des rayons X permet de vérifier que la phase synthétisée pendant l'étape de calcination est bien une phase PZT morphotropique. L'analyse permet également d'évaluer la présence de PbO libre et la trace éventuelle de pollution introduite lors des étapes de broyage et de tamisage.

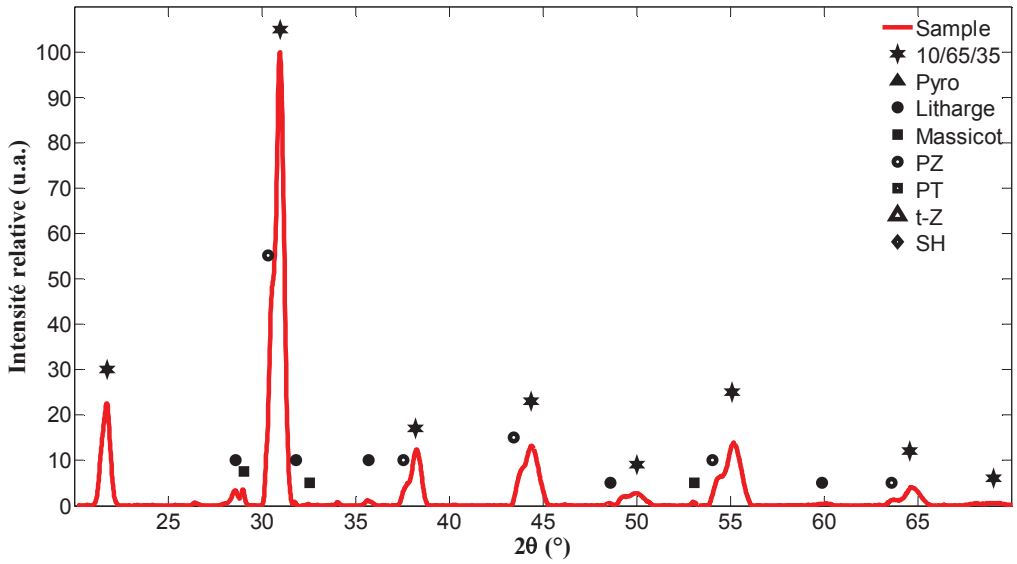


Figure II.5. Diffractogramme-X de la poudre synthétisée (LMCPA).

Les pics principaux sont indexés par une phase PZT dopée lanthane de composition semblable (10/65/35). L'analyse montre la présence de PbO libre attribuée à son introduction en excès lors de l'élaboration. Certains pics sont peu résolus et présentent une largeur importante, semblant indiquer une hétérogénéité dans la distribution ionique du PZT. Certains pics sont indexés par le zirconate de plomb (PZ) ce qui est cohérent avec la présence majoritaire de cette phase dans la composition 60/40.

Il serait possible d'optimiser les conditions de calcination (temps et température) afin d'augmenter la qualité de la synthèse de la phase PLZT, tout en conservant une taille de grains et un taux d'agglomération satisfaisant. Néanmoins, comme le frittage participera aux processus de fin de cristallisation et d'homogénéisation chimique, l'état de la poudre dans ces conditions est suffisant pour l'usage prévu.

La Figure II.6 présente l'analyse thermodilatométrique effectuée sur un échantillon de poudre synthétisée mis en formage par pressage.

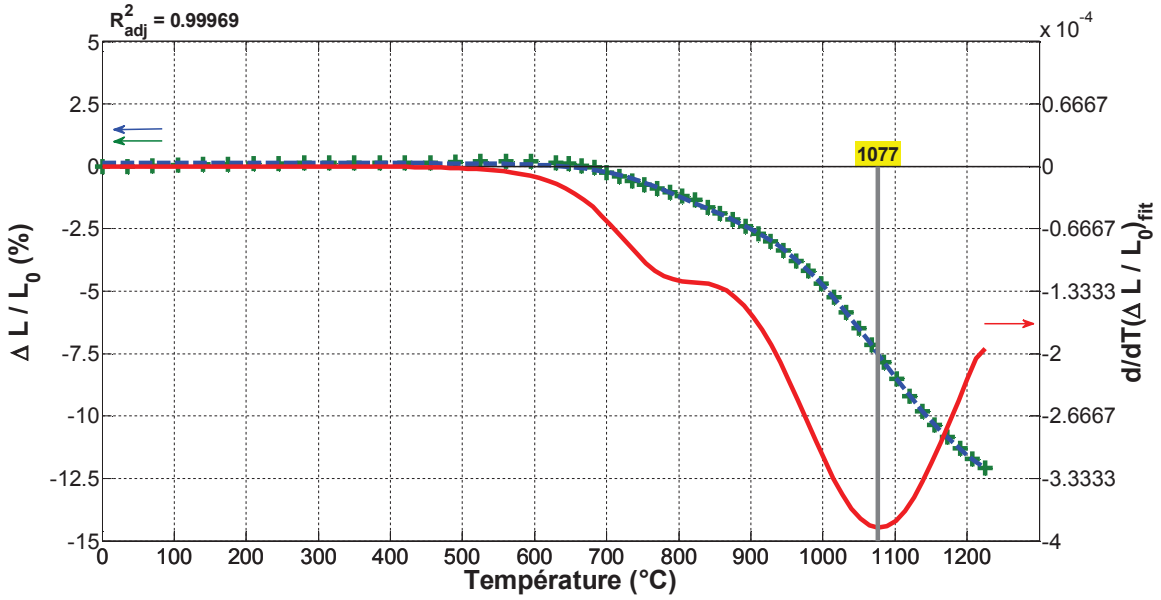


Figure II.6. Analyse thermomécanique sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA).

La courbe de retrait montre un début de frittage vers 550°C avec deux pentes différentes qui peuvent être corrélées par la présence de deux populations de granulométries différentes. La dérivée de la courbe retrait-température permet de déterminer la vitesse de retrait maximale aux alentours de 1080°C. Pour atteindre une densification complète, il a été décidé de fritter les échantillons à une température légèrement supérieure à celle-ci, soit 1200°C. Un retrait complet est atteint à cette température pour des durées supérieures ou égales à 6 heures.

La Figure II.7 présente la microstructure observée au M.E.B. d'un échantillon fritté à 1200°C pendant 6 heures.

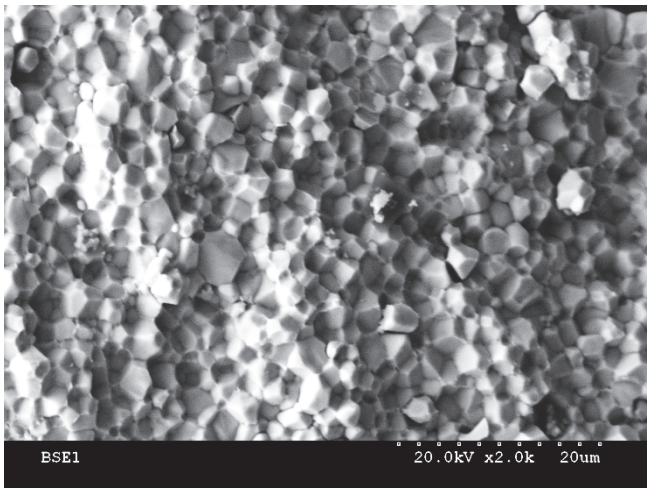


Figure II.7. Microstructure sur fracture d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) après un frittage standard à 1200°C/6h.

La microstructure apparait dense et homogène. Néanmoins, la densité relative après frittage mesurée selon le principe d'Archimède est de 93%. Il semblerait donc que la valeur utilisée comme densité théorique soit erronée. Le faciès de rupture est intergranulaire. Il n'y a pas de porosité résiduelle et la taille des grains est d'environ 2 à 5 µm.

La Figure II.8 présente le diffractogramme-X réalisé sur un échantillon fritté à 1200°C pendant 6 heures.

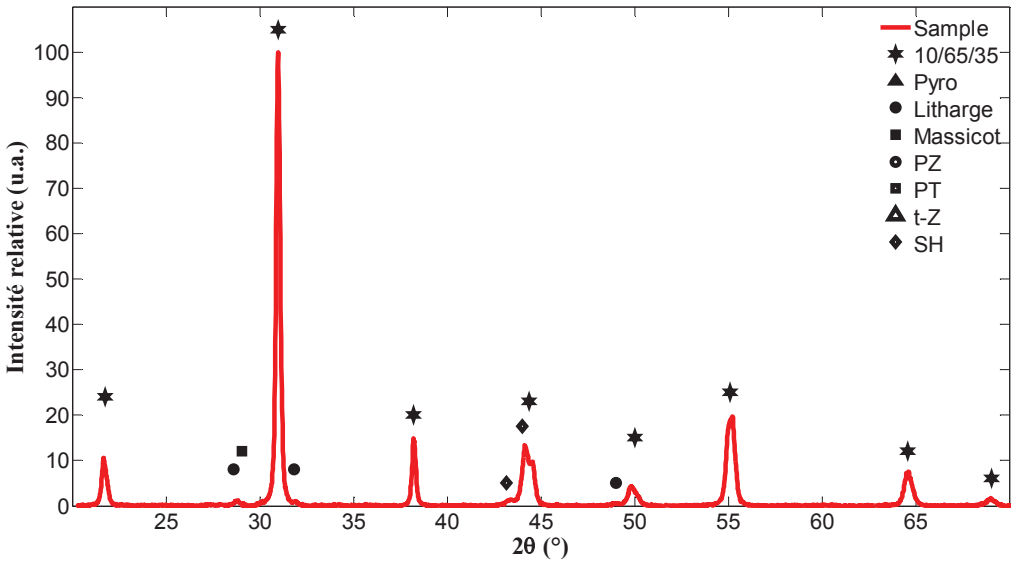


Figure II.8. Diffractogramme-X sur un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre synthétisée et fritté à 1200°C pendant 6h.

Les pics sont beaucoup plus résolus que sur le diffractogramme-X de la poudre après calcination. Le traitement de frittage participe à l'homogénéisation de la structure et à la finalisation de la réaction de synthèse. Les pics indexés par l'oxyde de plomb libre sont beaucoup moins intenses que sur le diffractogramme-X de la poudre.

Les cycles d'hystérésis, mesurés à température ambiante à basse fréquence sous champ maximal croissant, sont présentés sur la Figure II.9. Les évolutions des grandeurs ferroélectriques (polarisation maximale, polarisation rémanente et champ coercitif) avec le champ électrique appliqué sont présentées sur la Figure II.10.

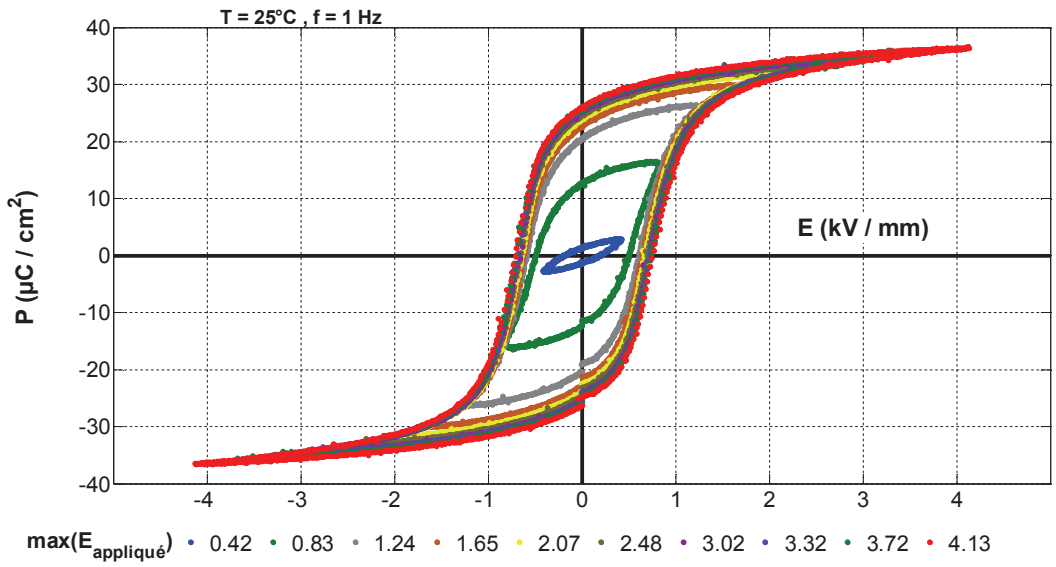


Figure II.9. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) fritté à 1200°C/6h.

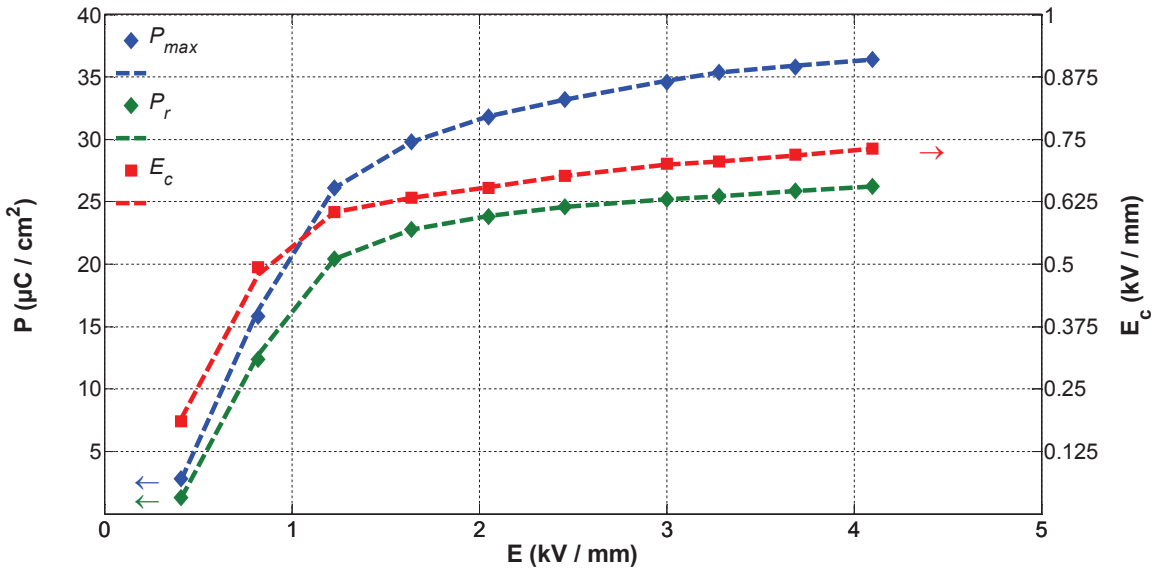


Figure II.10. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) fritté à 1200°C/6h.

Les cycles sont ouverts et saturés, ce qui dénote une bonne aptitude à la polarisation. La saturation est marquée à partir d'un champ électrique appliqué de 2 kV/mm.

A l'issue de la mesure des cycles d'hystérésis, les propriétés piézoélectriques sont déterminées et mesurées par la méthode de Berlincourt ainsi que par la mesure des fréquences de résonance et d'antirésonance. Les résultats sont présentés dans le Tableau II.2.

Tableau II.2. Caractéristiques diélectriques et piézoélectriques mesurées sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) et fritté à 1200°C/6h.

	PS 1200/6 (25°C)
E (kV/mm)	4,10
d (%d_{th})	7,41 (93%)
k_p	0,27
d_{33} (×10^{-12} m/V)	360
d_{31} (×10^{-12} m/V)	-115
s_{11}^E (×10^{-12} m²/N)	18,7
ϵ_r	3200
tan δ^{1kHz}	5,7%

Ces caractéristiques piézoélectriques constitueront les valeurs de référence comparatives pour l'élaboration des fibres dans ces conditions de frittage.

II.2.2. Poudre commerciale

La Figure II.11 présente la répartition granulométrique de la poudre commerciale.

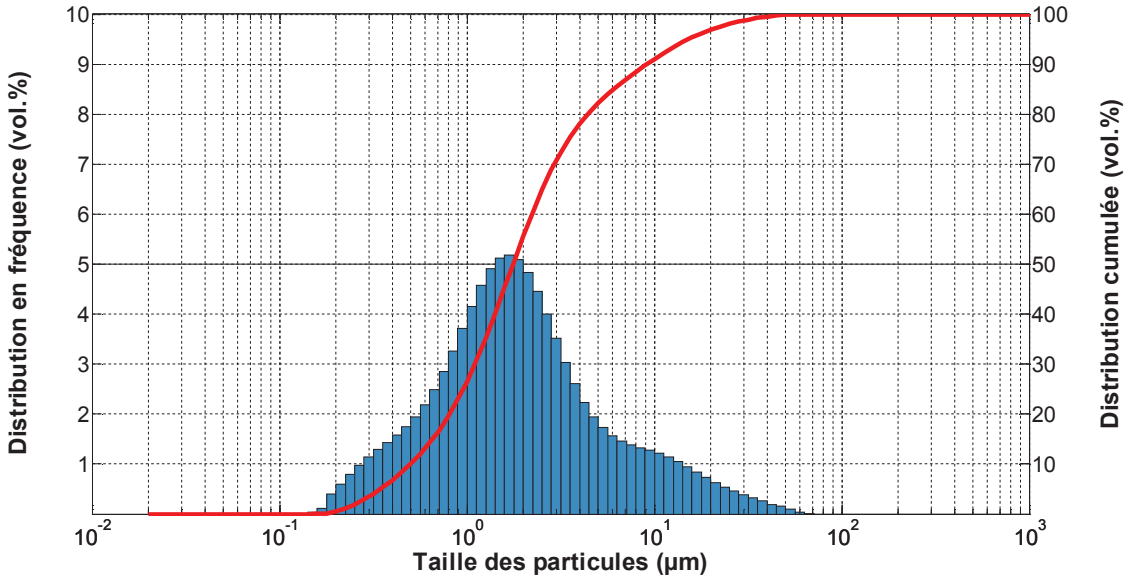


Figure II.11. Analyse granulométrique de la poudre commerciale.

La distribution granulométrique est monomodale avec un d_{50} vers 2 µm. Cette valeur est semblable à celle obtenue sur la poudre synthétisée.

La surface spécifique de la poudre commerciale et la taille de grains équivalente sont :

$$S_{BET} = 1{,}07\ m^2/g \qquad\qquad d_{BET} = 0{,}75\ \mu m$$

Ces valeurs sont proches de celles obtenues sur la poudre synthétisée (respectivement 1,18 m²/g et 0,64 µm).

La Figure II.12 présente le diffractogramme-X de la poudre commerciale.

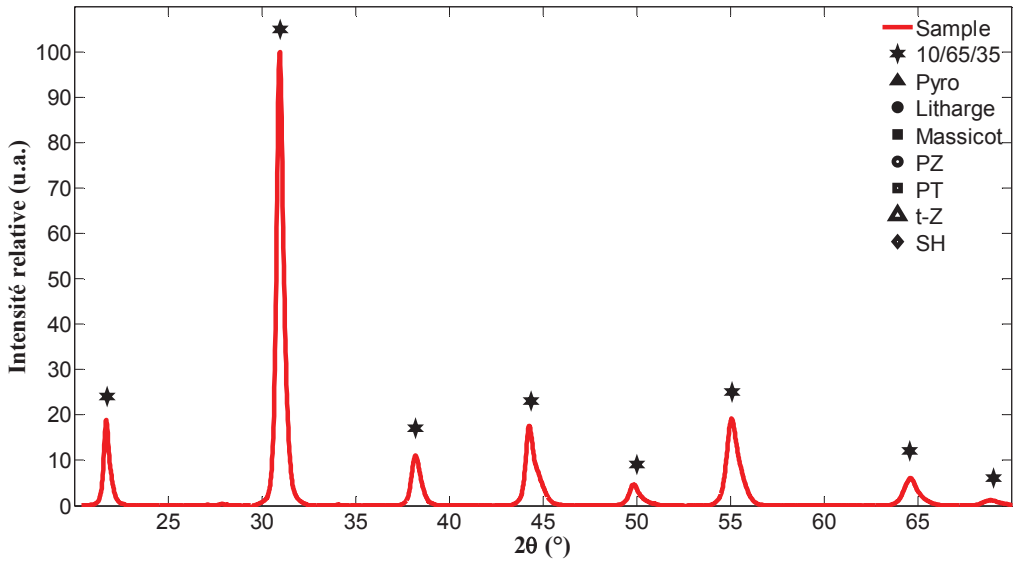


Figure II.12. Diffractogramme-X de la poudre commerciale.

Les pics sont indexés par une phase PZT dopée lanthane de composition 10/65/35. Ces pics sont identiques à ceux identifiés avec la poudre synthétisée au LMCPA. Le diffractogramme est bien plus résolu que celui de la poudre synthétisée et il n'y a pas de traces de précurseurs oxydes suite à une procédure d'élaboration de poudre optimisée.

La Figure II.13 présente l'analyse thermodilatométrique effectuée sur un échantillon de poudre commerciale mis en formage par pressage.

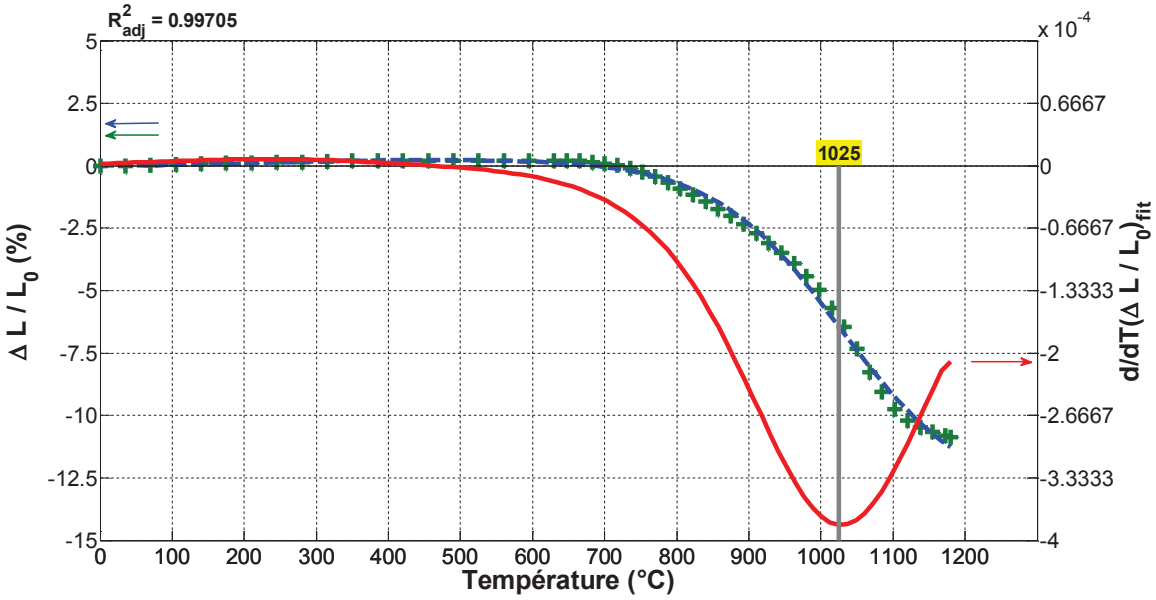


Figure II.13. Analyse thermomécanique d'un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale.

La courbe de retrait montre un début de frittage vers 550°C. La dérivée de la courbe retrait-température permet de déterminer la vitesse de retrait maximale aux alentours de 1025°C. Contrairement à la poudre synthétisée, la courbe de retrait de l'échantillon présente un seul accident suite à l'utilisation d'une poudre monomodale : cette poudre est très homogène et sans agglomérat. Si ce n'est cette différence, les deux poudres présentent des compositions et des distributions granulométriques semblables. On peut donc espérer pouvoir les densifier avec le même traitement thermique de 1200°C pendant 6 heures.

La Figure II.14 présente la microstructure observée au M.E.B. d'un échantillon de poudre commerciale fritté à 1200°C pendant 6 heures.

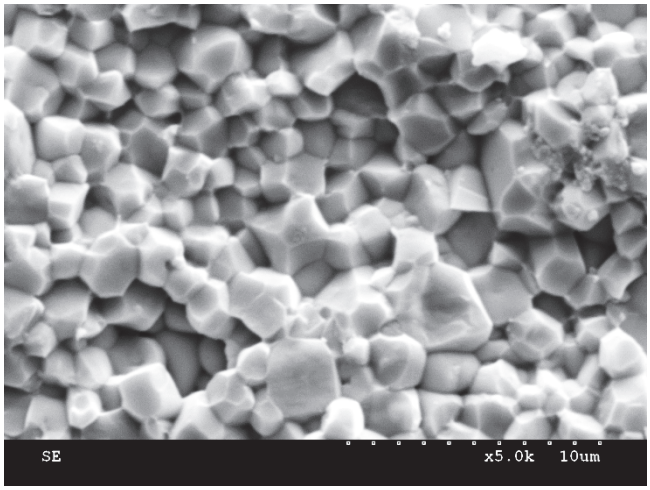


Figure II.14. Microstructure sur fracture sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre après frittage standard à 1200°C/6h.

La microstructure apparaît dense et homogène, sans porosité résiduelle, sans croissance exagérée de grains, avec une taille de grains de quelques microns. Ces résultats sont semblables à ceux obtenus sur la poudre synthétisée.

La Figure II.15 présente le diffractogramme-X réalisé sur un échantillon de poudre commerciale fritté à 1200°C pendant 6 heures. Ici aussi, le frittage participe à l'homogénéisation chimique et à l'augmentation de la taille des cristallites.

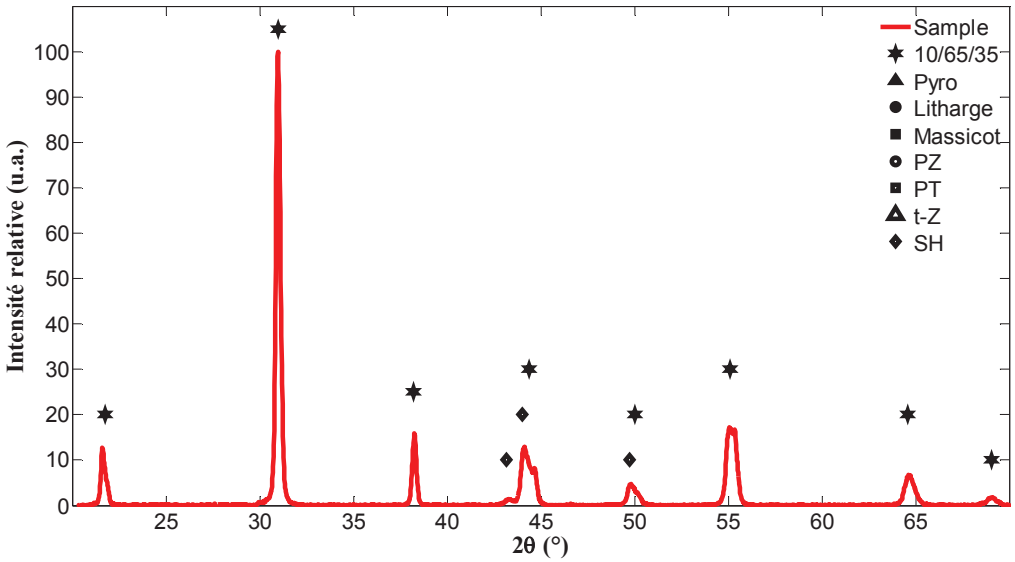


Figure II.15. Diffractogramme-X sur un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 1200°C pendant 6h (les massifs entre 40 et 50° sont perturbés par la détection du porte-échantillon).

Les cycles d'hystérésis, mesurés à température ambiante à basse fréquence sous champ maximal croissant, sont présentés sur la Figure II.16. Les évolutions des grandeurs ferroélectriques (polarisation maximale, polarisation rémanente et champ coercitif) avec le champ électrique appliqué sont présentées sur la Figure II.17.

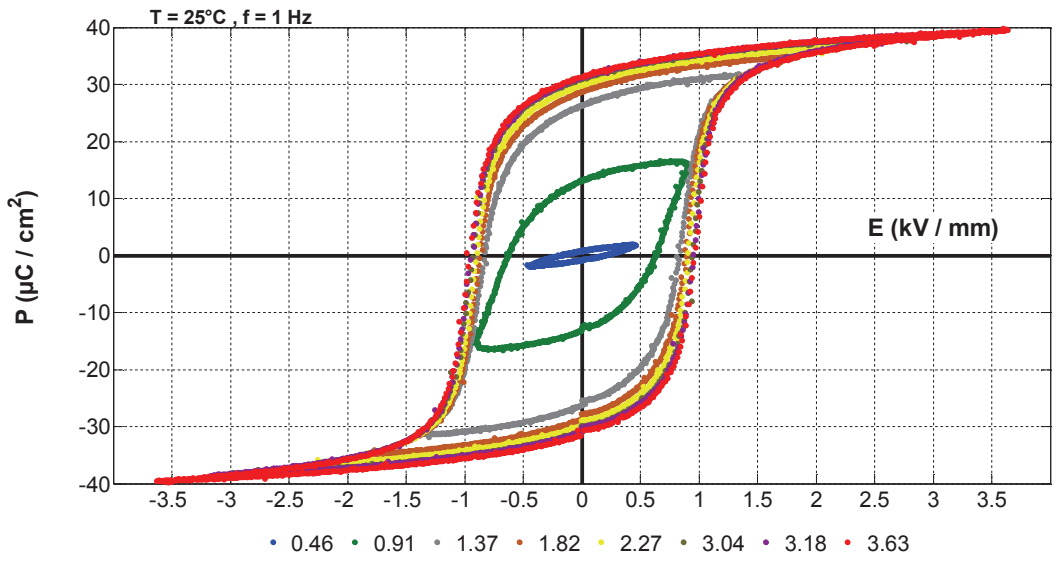


Figure II.16. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale fritté à 1200°C/6h.

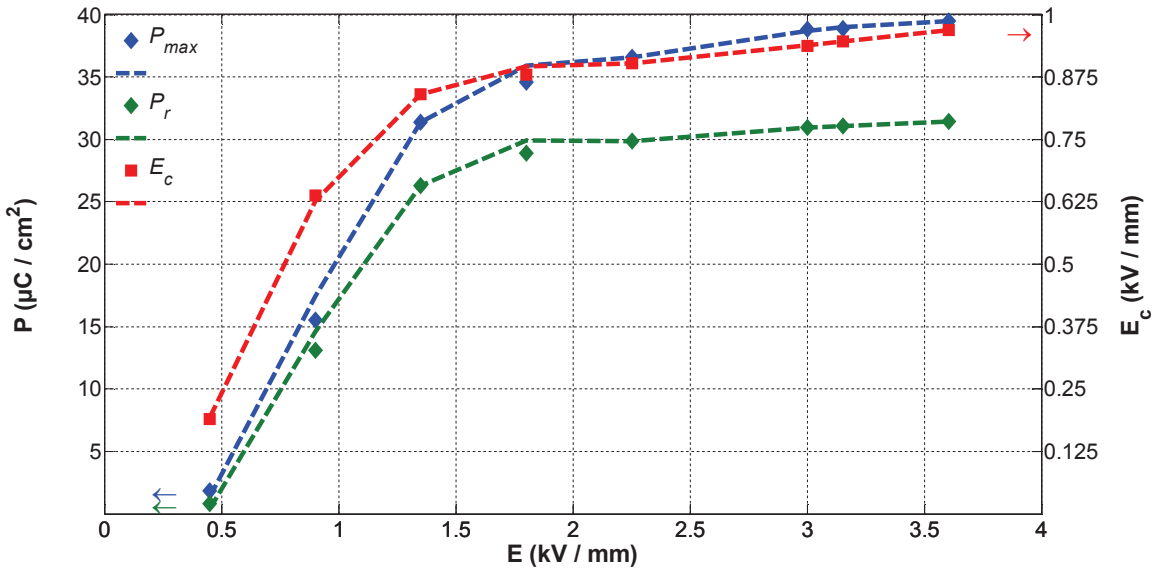


Figure II.17. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale fritté à 1200°C/6h.

Les cycles sont ouverts et saturés, ce qui dénote une bonne aptitude à la polarisation. La saturation est marquée à partir d'un champ électrique appliquée de 2 kV/mm. Les valeurs de polarisation sont plus élevées que celles mesurées sur la poudre synthétisée.

Les propriétés piézoélectriques présentées dans le Tableau II.3 sont mesurées dans les mêmes conditions que précédemment.

Tableau II.3. Caractéristiques diélectriques et piézoélectriques mesurées sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 1200°C/6h.

	PC 1200/6 (25°C)
E (kV/mm)	3,60
d (%d_{th})	7,44 (~100%)
k_p	0,58
d_{33} (×10^{-12} m/V)	460
d_{31} (×10^{-12} m/V)	-190
s_{11}^E (×10^{-12} m²/N)	13,7
ϵ_r	2400
tan δ^{1kHz}	2,3 %

Effectivement, les grandeurs mesurées (polarisation, constantes piézoélectriques) sur des échantillons mis en forme à partir de la poudre commerciale sont supérieures à celles mesurées sur des échantillons mis en forme à partir de la poudre synthétisée pour un frittage identique et des densités absolues équivalentes. La différence peut s'expliquer par l'état d'homogénéité chimique plus important avec la poudre commerciale ce qui conduit à une meilleure structuration des domaines ferroélectriques dans les conditions de frittage considérées.

Ces deux poudres pourront être utilisées en parallèle pour l'optimisation du procédé d'élaboration des fibres à âme métallique.

II.3. Enduction multicouche

L'enduction dans une barbotine de PZT ne permettra pas d'atteindre en une seule étape les épaisseurs désirées. La procédure qui a été spécifiquement développée permet d'obtenir des épaisseurs plus importantes en répétant le cycle d'enduction.

Les détails des procédures de l'élaboration de la barbotine et de caractérisations des épaisseurs déposées sont donnés en Annexe 1.

II.3.1. Préparation de la barbotine

La barbotine utilisée a été initialement développée pour le procédé de coulage en bandes pour lequel les quantités de poudre, de solvant et de produits organiques sont optimisées pour avoir un pourcentage de charge maximal et un ratio poudre/organiques permettant d'obtenir les meilleures propriétés mécaniques [RGUITI 2006]. Les conditions de frittage appliquées aux fibres réalisées seront les mêmes que celles des bandes.

Les éléments constitutifs de cette barbotine sont rappelés dans Tableau II.4.

Tableau II.4. Composition de la barbotine pour le procédé d'enduction.

Matière	Fonction	Pourcentage massique
PZT synthétisée (LMCPA) PZT commerciale	Charge	74,03
MEK-Éthanol	Solvant	18,65
Ester phosphorique	Dispersant	0,44
Dibutylphtalate DBP	Plastifiant	3,40
Polyvinylbutyral PVB	Liant	3,48

La barbotine est préparée en deux étapes : la poudre céramique, le solvant et le dispersant sont mélangés au planétaire pendant 1,5 heures. Sont ajoutés ensuite le plastifiant et le liant. Le tout est alors mélangé pendant 2 heures.

II.3.2. Préparation des âmes métalliques

Les fils métalliques sont dégraissés aux ultrasons dans différents bains pendant 15 minutes chacun. Les fils sont retirés du dernier bain quelques minutes avant d'être revêtus. La Figure II.18 résume ces différentes étapes.

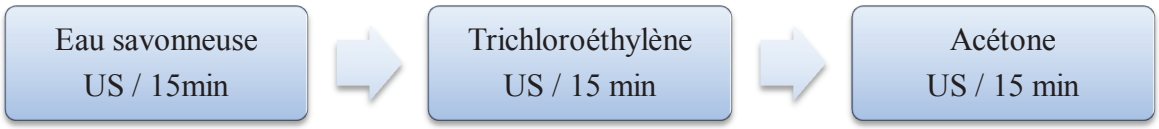


Figure II.18. Synoptique de la procédure de dégraissage des fils métalliques avant enduction.

II.3.3. Procédure d'enduction

Après avoir été mélangée, la barbotine est versée dans un récipient conçu pour disposer d'une importante hauteur de liquide avec un faible volume (Figure II.19). Elle est laissée au repos pendant quelques minutes. Le fil suspendu est descendu à une vitesse de 1,42 mm/s (vitesse maximale de l'appareil) puis laissé dans la suspension pendant 20 secondes. Il est ensuite remonté à une vitesse de 1,42 mm/s. Le fil revêtu est laissé suspendu pendant 60 secondes (séchage à température ambiante) avant qu'une nouvelle couche ne soit déposée. Après enduction, les fibres sont séchées à température ambiante pendant environ 2 heures.

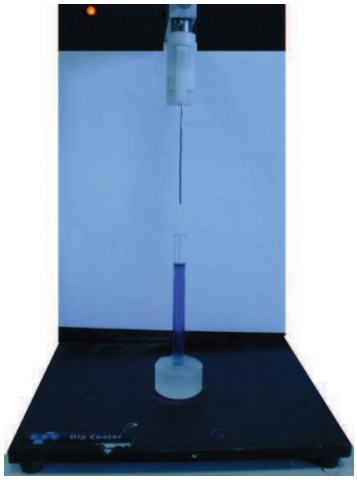


Figure II.19. Photographie du système d'enduction dans la procédure standard.

Les fibres sont ensuite déposées sur un lit de poudre d'enrobage (PZ), recouvertes de poudre d'enrobage, le tout étant disposé dans un creuset clos en alumine. Les dépôts céramiques sont frittés sur leur âme métallique selon le cycle thermique présenté sur la Figure II.20 qui suit un palier de déliantage à 450°C et un frittage à 1200°C avec des vitesses de montée et descente en température de 1°C.min^{-1}. La Figure II.21 reprend les différentes étapes du processus.

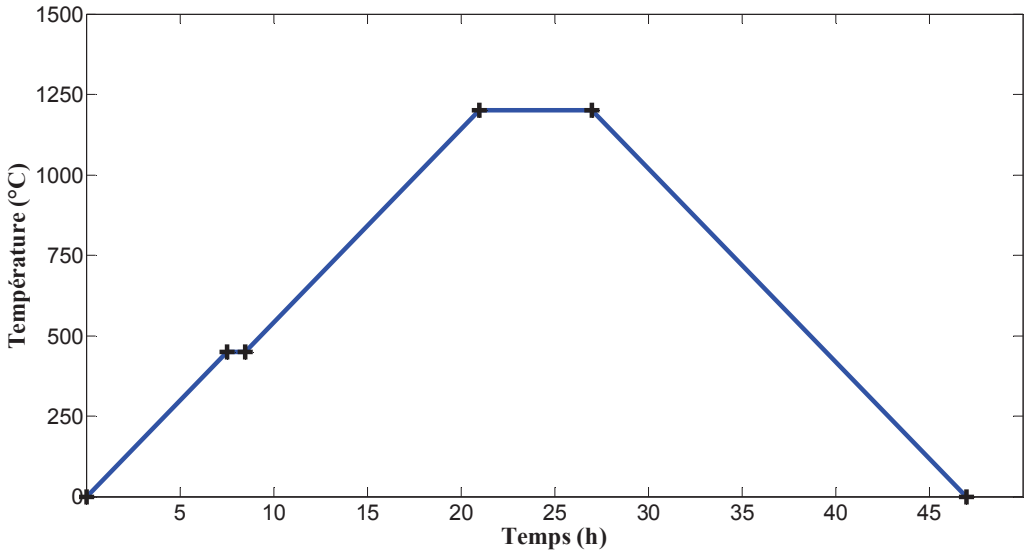


Figure II.20. Cycle de frittage des fibres dans la procédure standard ($\dot{T}$ = 1°C.min^{-1}).

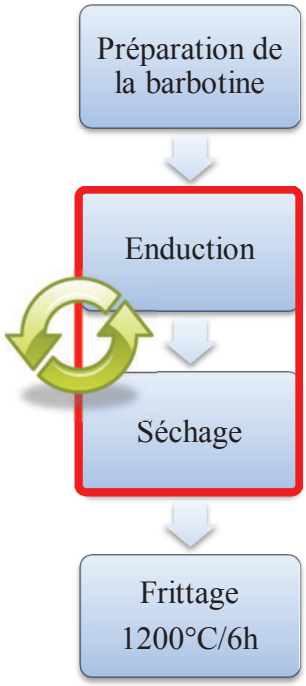


Figure II.21. Synoptique de la procédure standard d'enduction.

Après le frittage, la poudre d'enrobage est dégagée au pinceau jusqu'à laisser apparentes les fibres qui sont alors récupérées et nettoyées délicatement à l'éthanol.

II.3.4. Premiers résultats et optimisation de la procédure

La réalisation de fibres avec cette procédure a laissé apparaître plusieurs problèmes qui ne permettaient pas d'obtenir des dépôts de bonnes qualités. Plusieurs modifications ont alors été apportées pour permettre l'obtention de dépôts homogènes et ce, de manière reproductible.

II.3.4.1. Dimensions du récipient

Les dimensions du récipient induisaient des contacts fibre/récipient lorsque les fils ne sont pas suffisamment rectilignes (liés à la manipulation des fils). De plus, lors de la réalisation d'une série de plusieurs fibres, l'évaporation rapide du solvant conduisait à un gradient de viscosité dans la suspension qui perturbe le dépôt.

Les dimensions du récipient ont alors été modifiées : le diamètre est doublé (~1 cm), la hauteur de liquide est réduite et un bouchon peut être posé sur le récipient afin de limiter la volatilisation rapide du solvant. Le nouveau système est présenté sur la Figure II.22.

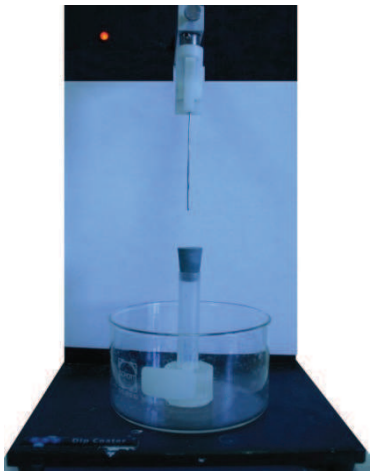


Figure II.22. Photographie du système d'enduction dans la procédure modifiée.

Ceci permet de réaliser des séries d'enductions en prenant en compte les irrégularités dimensionnelles des fils et l'évaporation rapide du solvant.

II.3.4.2. Interaction avec la poudre d'enrobage

Après le frittage, il existe une certaine cohésion entre le dépôt céramique et la poudre d'enrobage : ceci conduit au délaminage du dépôt lorsque la fibre est retirée.

Pour supprimer les interactions entre le dépôt et la poudre d'enrobage pendant le frittage, le frittage des fibres en position verticale a été envisagé. Tout d'abord, les fibres ont été piquées dans de la mousse d'alumine placée dans un creuset en alumine. Il n'y a donc pas de contact direct entre la poudre d'enrobage et la mousse d'alumine, ni avec les fibres. Cependant, la mousse d'alumine réagit pendant le frittage et s'effondre sur elle-même jusqu'à former un compact très dense duquel il est impossible de retirer les fibres. La Figure II.23 illustre ce changement d'état mousse → compact.

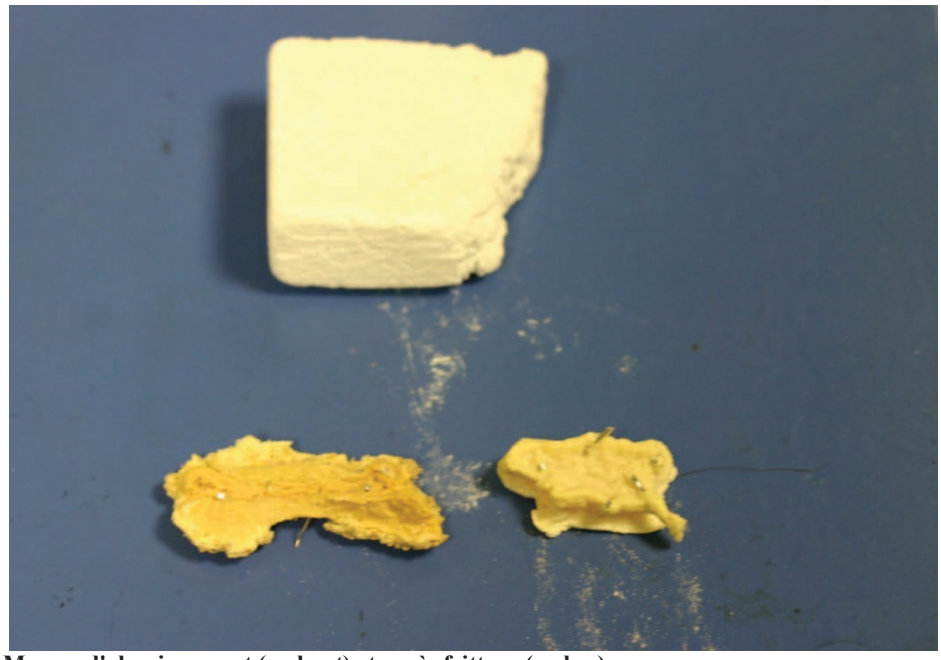


Figure II.23. Mousse d'alumine avant (en haut) et après frittage (en bas).

Par ailleurs, ce dispositif aurait pu poser problème car le ramollissement du métal avec le traitement thermique à haute température aurait pu conduire à des contacts entre fibres ou avec les parois. Un portique en alumine a alors été imaginé pour permettre de garder la position verticale sans contact ni interaction avec la poudre d'enrobage. La solution retenue est présentée sur la Figure II.24.

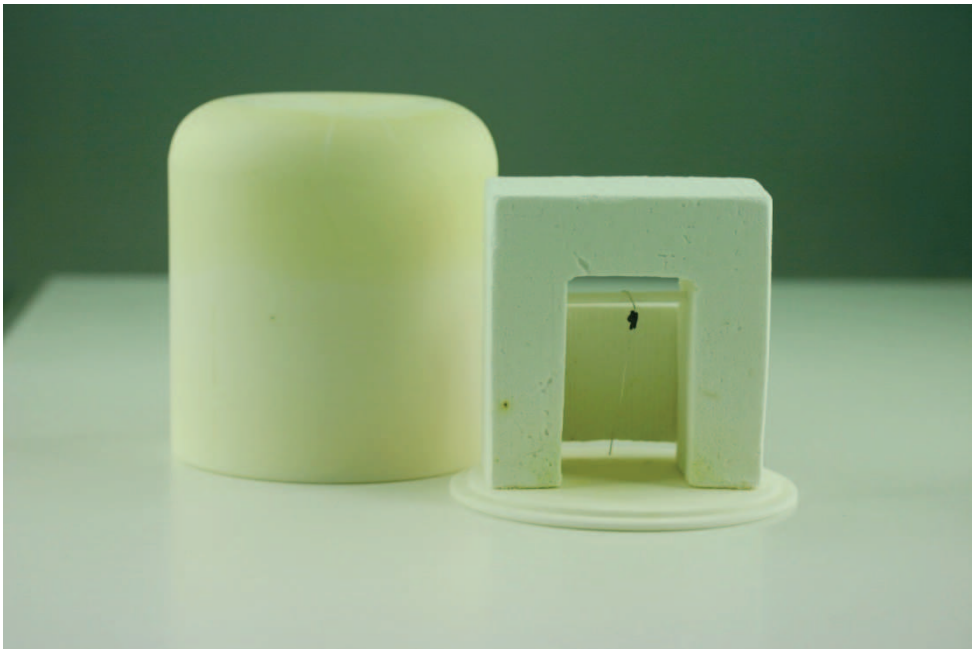


Figure II.24. Montage pour le frittage en position verticale.

Le portique est en fibres d'alumine et la canne, support des fibres, est en alumine dense. Les dimensions du portique sont choisies pour qu'il puisse être enfermé dans un creuset en alumine. La poudre d'enrobage est alors placée sous les fibres pour garantir une atmosphère riche en oxyde de plomb.

II.3.4.3. Interaction entre couches et drainage

La répétition du nombre de dépôts sur une fibre conduit à l'obtention d'une épaisseur non homogène suite d'une part, aux interactions entre la couche antérieure et la nouvelle couche et d'autre part, à l'apparition des phénomènes de drainage (effet de gravité) à l'extérieur du dépôt. Ceci se traduit par des ondulations qui sont illustrées sur les figures II.25 et II.26.

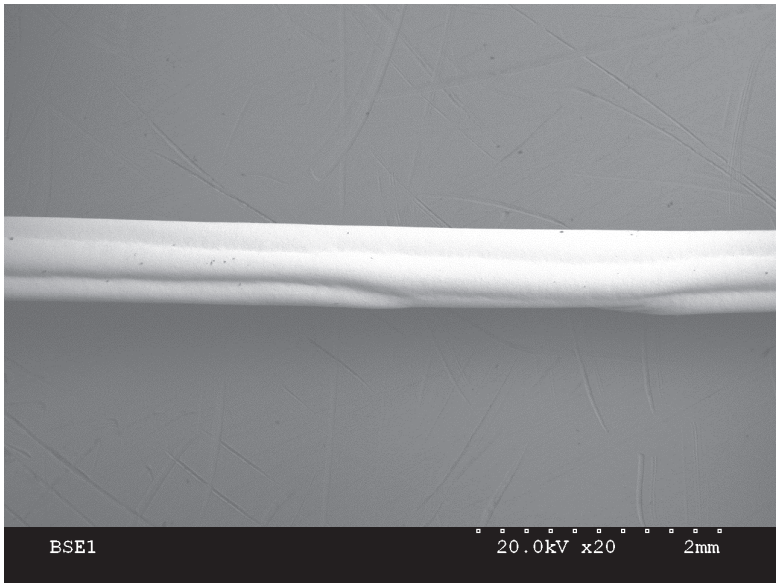


Figure II.25. Ondulation de la surface (observation au M.E.B.) lors du dépôt multicouche.

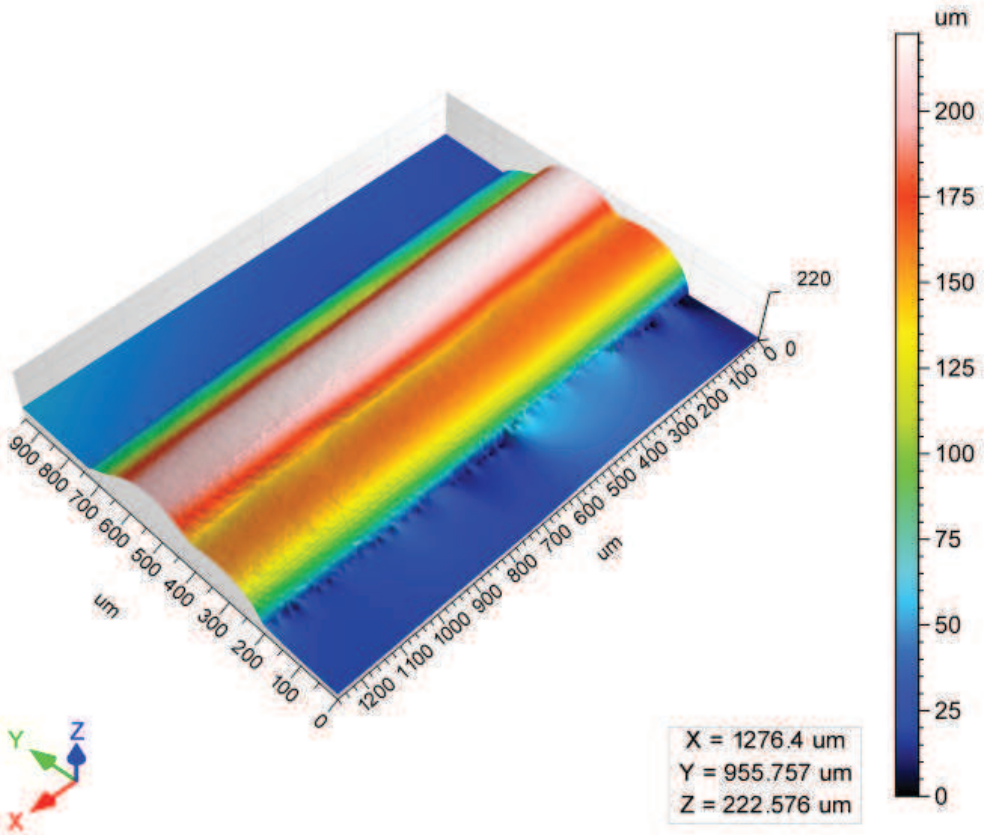


Figure II.26. Ondulation de la surface (observation au microscope confocal) lors du dépôt multicouche.

Pour supprimer ces phénomènes, la couche déposée subit un traitement thermique à une température inférieure à la température de frittage avec un palier de déliantage. Ceci permet d'une part d'éliminer les produits organiques du dépôt et d'autre part, de consolider la couche céramique en laissant une porosité suffisante qui permettra, par capillarité, d'augmenter l'adhérence de la couche suivante. La Figure II.27 reprend les différentes étapes de ce nouveau procédé.

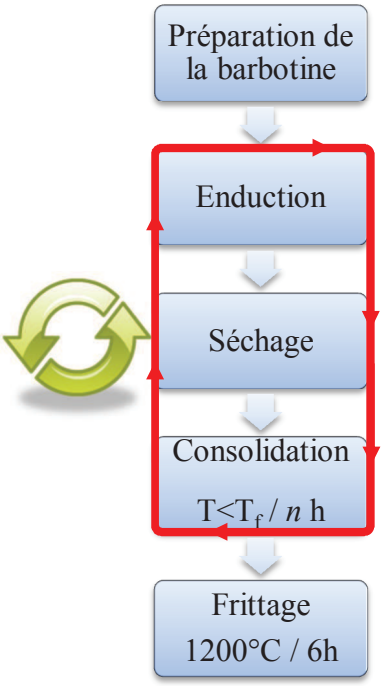


Figure II.27. Synoptique de la procédure optimisée d'enduction.

Il reste à déterminer la température et la durée pour ce traitement de consolidation. D'après les analyses thermodilatométriques, le retrait linéaire atteint 3% à 950°C contre 11% à 1200°C (Figure II.13, page 63). Une analyse thermodilatométrique sur la poudre synthétisée avec une isotherme à 950°C pendant 6 heures a été réalisée (figures II.28 et II.29) pour déterminer la durée nécessaire pour obtenir un état de consolidation suffisant.

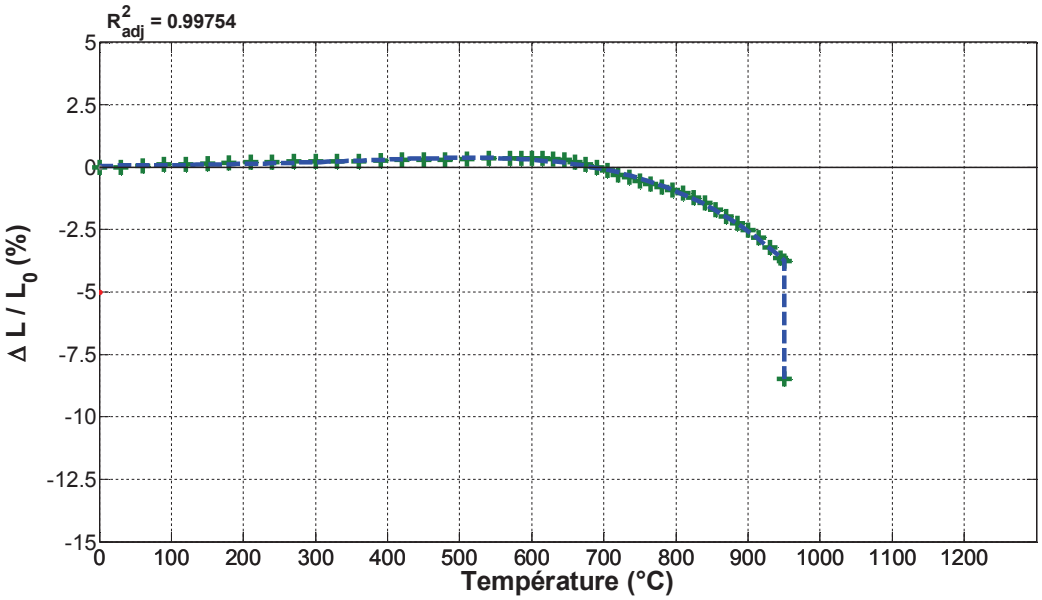


Figure II.28. Analyse thermodilatométrique (retrait-température) sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée pour la détermination du temps de traitement de consolidation.

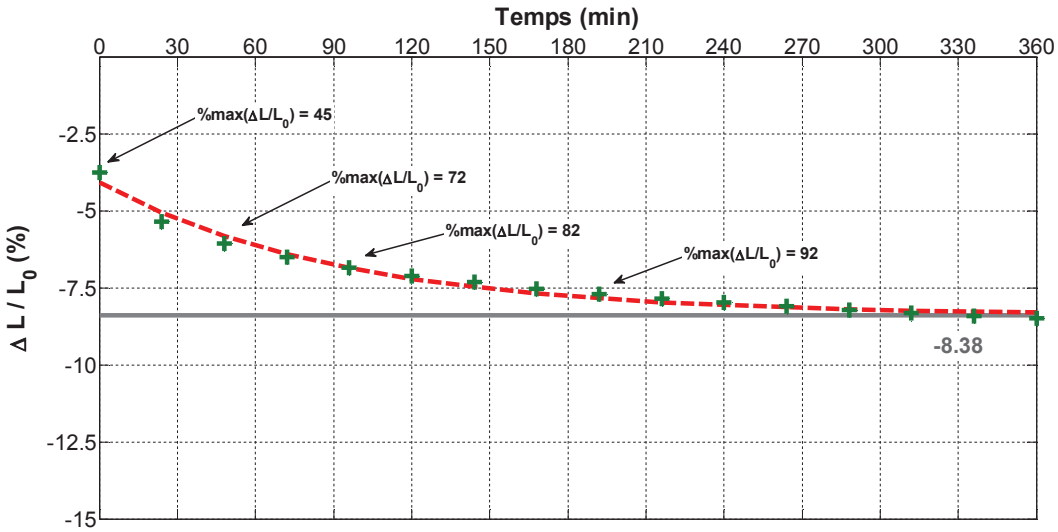


Figure II.29. Analyse thermodilatométrique (retrait-temps) à 950°C pour la détermination du temps de traitement de consolidation.

La densité relative finale de l'échantillon après ce traitement thermique est de 87%. L'analyse de l'évolution du retrait de l'échantillon pendant l'isotherme montre que plus de 80% du retrait maximal est atteint dès 2 heures de traitement thermique. Si effectivement la densité relative est encore inférieure à 90%, la porosité est toujours ouverte et permet donc l'infiltration du second dépôt. C'est donc cette durée qui sera retenue puisque suffisante pour atteindre l'état de consolidation recherché.

Deux séries de fibres bicouches sont réalisées pour comparer les deux traitements. Les cycles thermiques sont présentés sur la Figure II.30. Dans le même temps, deux échantillons massifs sont frittés dans les mêmes conditions pour comparer les propriétés piézoélectriques à l'issue de ces deux traitements.

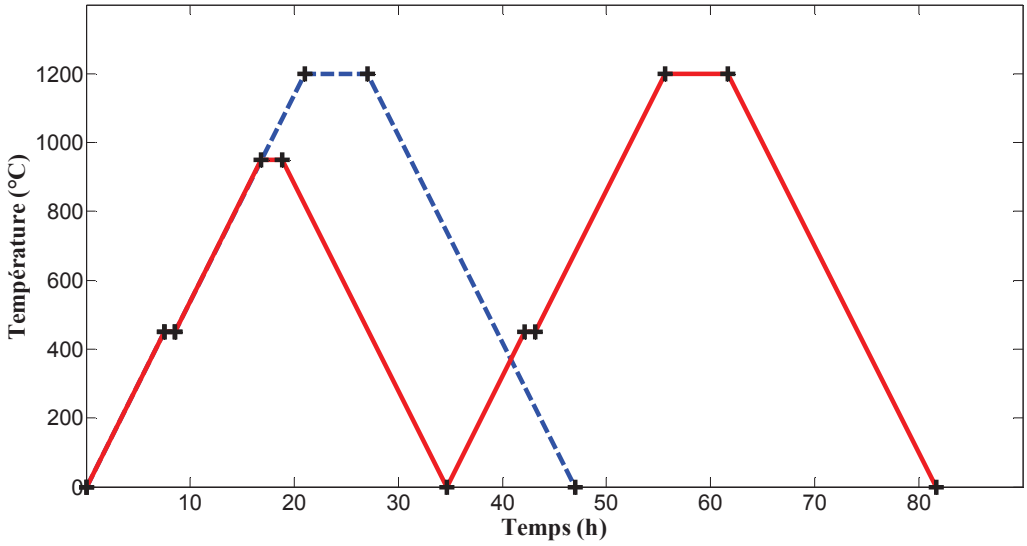


Figure II.30. Comparaison des traitements thermiques pour des fibres 2 couches (▪▪▪ cycle standard, — cycle modifié).

La caractérisation de ces échantillons (Chapitre III) permettra de vérifier que le cumul des différents traitements thermiques n'est pas préjudiciable aux propriétés finales.

II.3.5. Enduction basse température

La barbotine qui a été développée et optimisée à l'origine pour le coulage en bandes s'est avérée convenir pour cette application. Néanmoins, le modèle analytique a montré qu'il était nécessaire d'avoir une épaisseur de céramique suffisante pour garder des capacités de déformation importantes ($\alpha \sim 0,8$). Ceci n'est pas réalisable en une seule opération par enduction dans les conditions opératoires actuelles.

Bien qu'il soit possible d'atteindre ces épaisseurs en répétant plusieurs fois le cycle d'enduction, il peut être intéressant de travailler sur les paramètres influençant l'enduction pour augmenter l'épaisseur déposée.

D'après la loi de Landau, Levich et Deryaguin (équation II.1), la rhéologie du liquide et la vitesse de retrait sont les deux paramètres qui modifient l'épaisseur déposée. Travaillant déjà avec la vitesse maximale admise par le dispositif d'enduction (v_{max} = 1,42 mm/s), il reste possible de modifier les propriétés rhéologiques de la barbotine. La composition de celle-ci ayant été optimisée pour avoir une quantité de solvant minimale et des quantités de plastifiant et de liant permettant d'assurer les propriétés mécaniques des bandes crues et un frittage sans fissuration, il n'est pas judicieux de modifier la composition.

Pour augmenter la viscosité sans modifier la composition, il est possible de diminuer la température de la barbotine. En outre, ceci a pour effet de diminuer la pression de vapeur saturante du solvant et ainsi limiter sa volatilisation. La barbotine est ainsi plongée dans un bain contenant un mélange réfrigérant et l'ensemble est placé au congélateur (~ -6°C) pour homogénéiser la température. Plusieurs mélanges réfrigérants sont envisagés : un bain de glace ou un mélange glace/sels. Les sels comme NaCl ou $CaCl_2$ permettent d'obtenir de l'eau liquide à des températures négatives comme le montrent les diagrammes binaires de la Figure II.31.

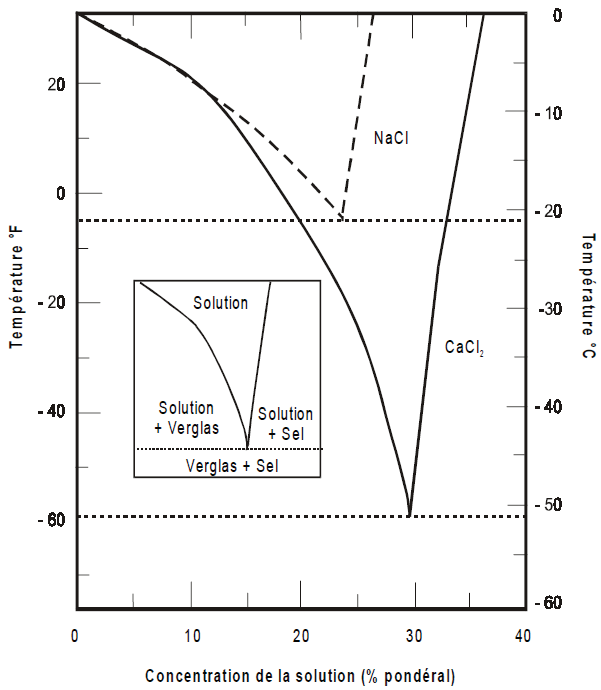


Figure II.31. Diagrammes de phases des systèmes binaires H_2O-NaCl et H_2O-$CaCl_2$ [C-SHRP 2000].

Néanmoins, comme l'appareil d'enduction est dans une salle à température ambiante et dans le but de conserver une température constante pour réaliser plusieurs fibres, il est nécessaire de limiter le gradient de température entre la barbotine et l'air ambiant. Ainsi, dans un premier temps, seul un bain de glace ($H_2O_{(l)}/H_2O_{(s)}$) sera utilisé.

Après avoir versé la barbotine dans le récipient, celui-ci est placé dans un cristallisoir contenant le mélange réfrigérant. L'ensemble est alors disposé dans un thermostat à -6°C pour homogénéiser la température de la barbotine.

II.4. Epaisseurs déposées

II.4.1. Procédure standard

En partant d'une même barbotine à base de poudre synthétisée à température ambiante, plusieurs épaisseurs sont réalisées sur une âme en platine de 400 microns en exécutant plusieurs fois les cycles de trempage et de séchage à température ambiante. Des fibres à 1, 2 et 3 couches ont ainsi été réalisées. Après frittage à 1200°C/6h, les diamètres des fibres sont mesurés au microscope électronique à balayage. Les résultats sont présentés dans le Tableau II.5.

Tableau II.5. Evolution de l'épaisseur déposée par la procédure standard d'enduction.

Nombre de couche(s) déposée(s)	Epaisseurs (µm)	α
1	23	0,10
2	71	0,26
3	123	0,38

Les figures II.32 et II.33 présentent l'évolution de l'épaisseur moyenne déposée et le rapport d'aspect moyen après frittage en fonction du nombre de trempages effectués.

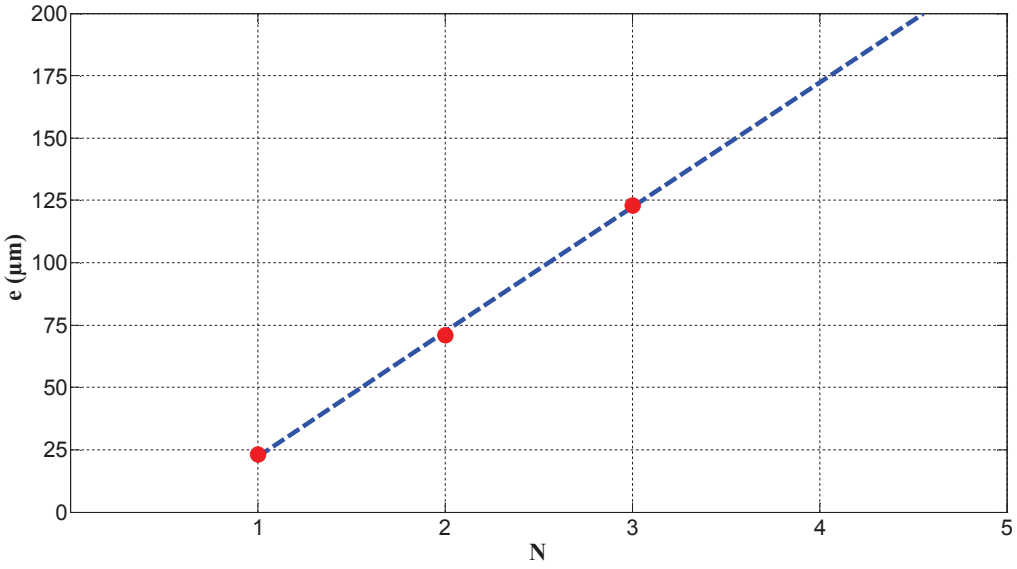


Figure II.32. Evolution de l'épaisseur moyenne du dépôt (mesures au M.E.B) après frittage à 1200°C en utilisant la procédure standard d'enduction.

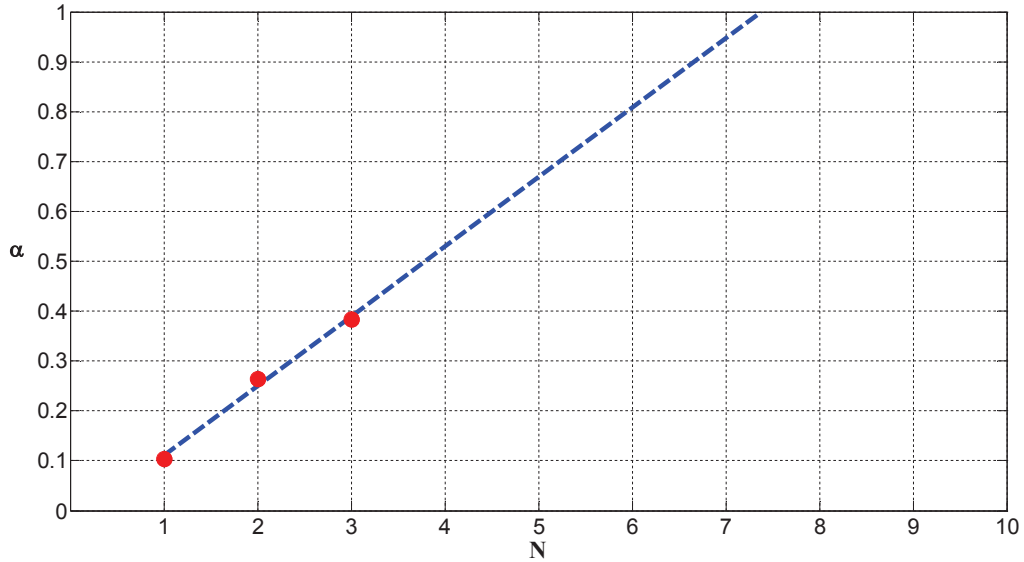


Figure II.33. Evolution du rapport d'aspect moyen (mesures au M.E.B) après frittage à 1200°C en utilisant la procédure standard d'enduction.

Les évolutions sont quasi linéaires (pour les trois couches réalisées) et avec cette procédure, il faudrait 5 à 6 étapes pour atteindre des rapports d'aspects optimums pour les applications d'actionneurs ($0,6 < \alpha < 0,8$).

Néanmoins, les hétérogénéités d'épaisseurs apparaissent dès la deuxième couche suite aux interactions entre couches et à l'apparition des effets de gravité. Ces effets apparaissent de manière aléatoire : certaines fibres sont affectées sur toutes leurs longueurs ou alors de manière localisée. Il est donc difficile d'obtenir de manière rigoureuse et reproductible des épaisseurs importantes par cette procédure.

II.4.2. Procédure optimisée

Les résultats présentés ci-après concernent les fibres réalisées avec la poudre commerciale après avoir modifié le dispositif d'enduction, le dispositif de frittage et l'addition du traitement thermique de consolidation entre les couches.

II.4.2.1. Fibres 2 couches frittées 950°C/2h – 1200°C/6h

Pour ces fibres réalisées à partir de barbotines de poudre commerciale à température ambiante, deux diamètres de fils de platine ont été utilisés : 0,5 et 1,0 mm. Seuls les diamètres après frittage ont été mesurés au microscope électronique à balayage.

Le Tableau II.6 présente les résultats en termes d'épaisseurs moyennes et de rapports d'aspect moyens obtenus avec ces deux diamètres de fils.

Tableau II.6. Epaisseurs moyennes et rapports d'aspect moyens obtenus sur des fibres bicouches réalisées sur deux diamètres d'âme différents avec la procédure modifiée.

	e (µm)	α
Φ_{Pt} = 0,5 mm	16,2	0,061
Φ_{Pt} = 1,0 mm	27,5	0,052

On constate que l'épaisseur déposée augmente avec le diamètre du fil utilisé et que le rapport d'aspect varie peu. Ceci semble en accord avec le modèle L.L.D. qui prévoit des rapports *e/r*, donc des rapports $\alpha / (1-\alpha)$, constants pour un liquide donné.

Le rapport d'aspect obtenu avec la procédure initiale était de 0,26, soit environ 4,5 fois plus que celui obtenu dans ces conditions. Ceci s'explique d'une part par la présence de nombreux agglomérats dans la poudre synthétisée qui induit une viscosité de barbotine plus importante. D'autre part, l'absence de traitement de consolidation conduit à un diamètre de substrat avant le nouveau dépôt plus important et donc à une épaisseur déposée plus importante. Par ailleurs, les dépôts réalisés avec la procédure initiale commencent à montrer des hétérogénéités d'épaisseurs dès la deuxième couche alors que les fibres réalisées dans ces nouvelles conditions en sont exemptes.

II.4.2.2. Fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h – 1200°C/6h

Les essais précédents ont permis de vérifier que les modifications apportées à la procédure d'enduction permettaient d'obtenir des dépôts homogènes de manière reproductible. Néanmoins, avec deux couches déposées, le rapport d'aspect est trop faible pour espérer utiliser ces fibres dans des applications de type actionneur. Le nombre d'étapes de trempage a alors été augmenté pour observer l'évolution du rapport d'aspect dans ces conditions de trempage (composition de la barbotine, température de la barbotine, vitesse de retrait, traitements thermiques).

Une série de 5 fibres a ainsi été réalisée. Après chaque traitement thermique, les épaisseurs des dépôts sont mesurées au microscope confocal. Après le frittage final des fibres, les épaisseurs sont également mesurées en microscopie électronique à balayage pour comparaisons.

La Figure II.34 présente les épaisseurs mesurées sur les différentes fibres après chaque traitement thermique. Les barres d'erreurs correspondent à la dispersion des résultats issue du traitement statistique des données recueillies en microscopie confocale.

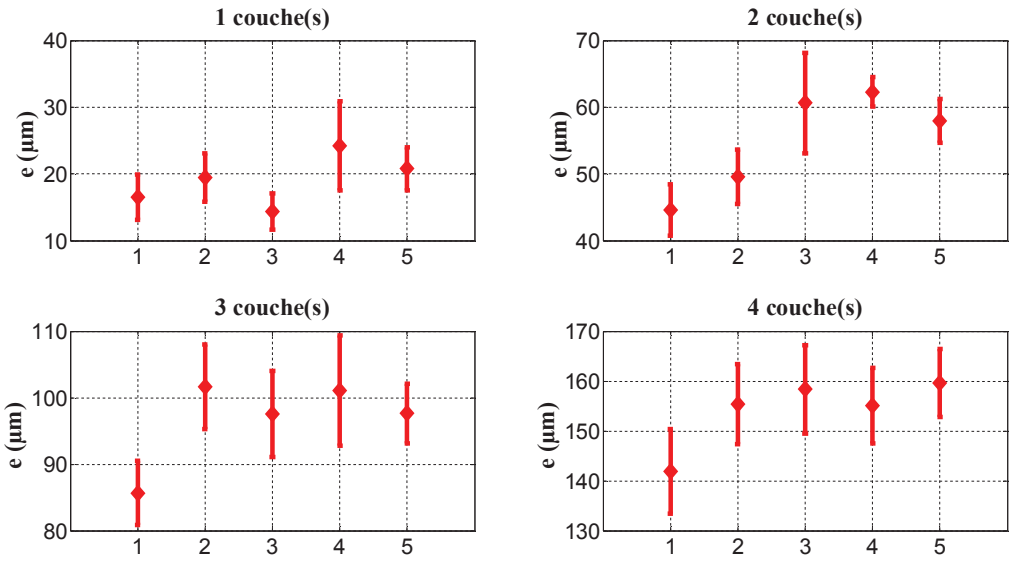


Figure II.34. Epaisseurs mesurées sur une série de 5 fibres après les différents cycles enduction/consolidation à 950°C.

Durant les différentes étapes de trempage, il semblerait que les épaisseurs déposées sur les fibres en fin de série soient plus importantes que les celles réalisées en début de série. Les variations de viscosité liées à l'évaporation du solvant au cours du procédé peuvent être à l'origine de ces variations d'épaisseurs.

La Figure II.35 présente l'évolution des épaisseurs finales obtenues après le dépôt d'une cinquième couche après frittage à 1200°C. Les mesures ont été effectuées au microscope électronique à balayage et au microscope confocal.

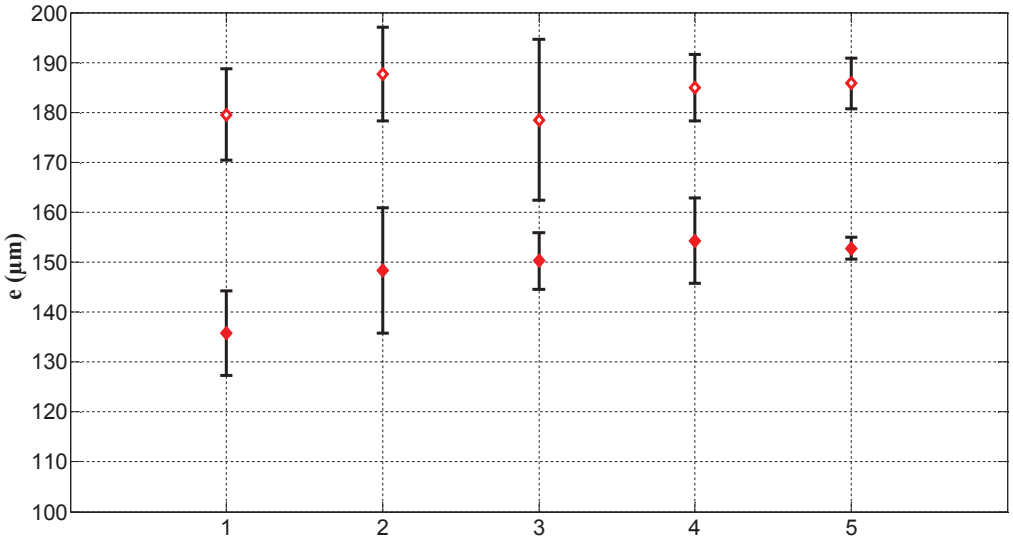


Figure II.35. Epaisseurs mesurées sur une série de 5 fibres 5 couches après le frittage final à 1200°C (■ mesures au microscope confocal, □ mesures au M.E.B).

Les variations de conditions expérimentales (température, viscosité…) et de rugosité des couches antérieures sont responsables des différences d'épaisseurs moyennes observées sur les fibres. Les épaisseurs varient ainsi de 179 à 185 µm au M.E.B. et de 136 à 154 µm au microscope confocal.

Les mesures au M.E.B. sont fortement dépendantes de l'opérateur car la mesure consiste à pointer deux extrémités du diamètre de la fibre pour mesurer la distance qui les sépare. En cela, le traitement statistique des données acquises par le microscope confocal est plus rigoureux. Par ailleurs, le microscope confocal a été préféré car il nécessite moins de manipulation des fibres extrêmement sensibles. Dans ces conditions, les mesures au M.E.B. ont donc un aspect indicatif.

La Figure II.36 présente l'évolution des épaisseurs moyennes en fonction du nombre de couches déposées.

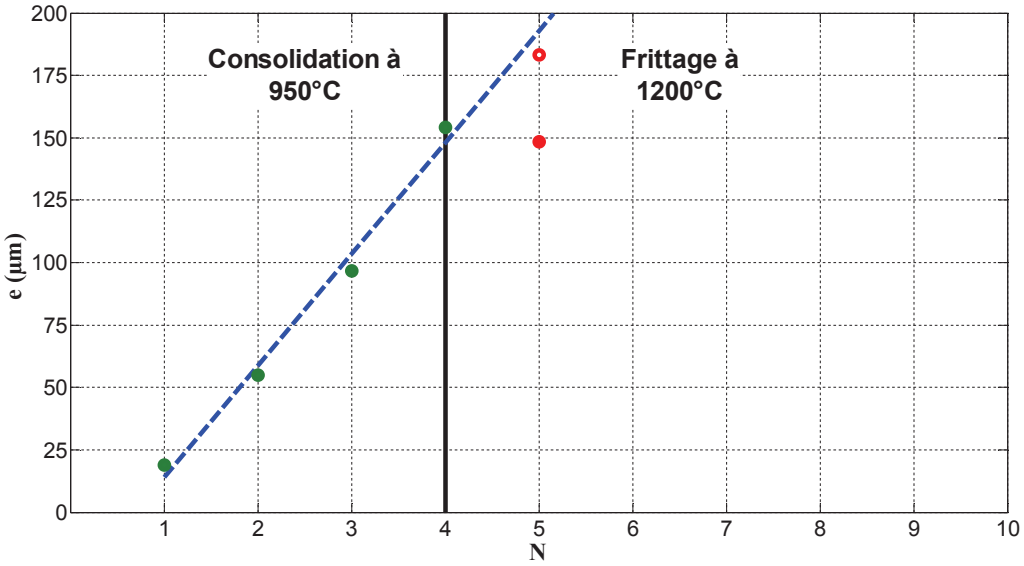


Figure II.36. Evolution de l'épaisseur moyenne du dépôt (● mesures au microscope confocal, ○ mesures au M.E.B) avec les différentes étapes d'enduction et traitements thermiques.

Pendant les étapes de traitement thermique intermédiaire, l'épaisseur augmente de manière quasi-linéaire. Il est ainsi possible d'estimer le nombre d'opérations nécessaires pour obtenir une épaisseur déterminée. Le traitement final de frittage induit une diminution de l'épaisseur suite au retrait global de la céramique pendant le traitement thermique à haute température.

La Figure II.37 donne l'équivalence de l'évolution du rapport d'aspect moyen en fonction du nombre de couches déposées.

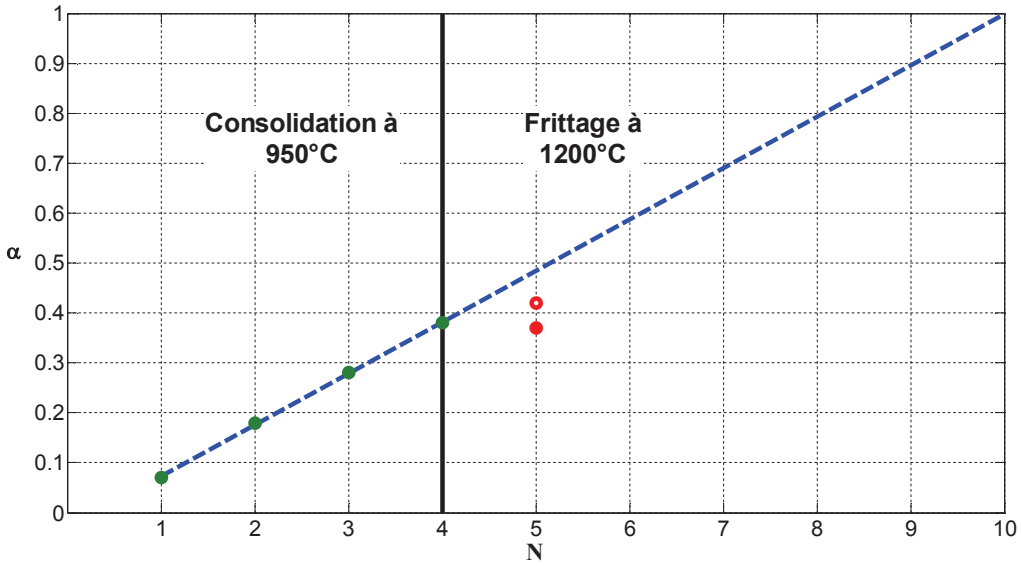


Figure II.37. Evolution du rapport d'aspect moyen (● mesures au microscope confocal, O mesures au M.E.B) avec les différentes étapes d'enduction et traitements thermiques.

Pour utiliser ces fibres en tant qu'actionneur, les rapports d'aspect recherchés se situent entre 0,6 et 0,8. L'évolution du rapport d'aspect étant quasi-linéaire, avec les conditions opératoires utilisées, il est nécessaire de réaliser 6 à 8 couches pour atteindre ces valeurs.

II.4.3. Influence de la température sur l'épaisseur déposée

L'influence de la température a été évaluée en comparant les épaisseurs de dépôts non traités thermiquement sur fil de platine de 1 mm en utilisant une barbotine à température ambiante ou refroidie à l'aide d'un bain d'eau glacée.

Le Tableau II.7 reprend les épaisseurs moyennes mesurées en microscopie confocale sur des fibres réalisées en utilisant ces différentes conditions de température.

Tableau II.7. Epaisseurs déposées en utilisant des barbotines à différentes températures.

Conditions de température	Epaisseur moyenne déposée (µm)
Ambiante : 22°C	21
Bain de glace : 0°C	40

L'utilisation d'une barbotine préalablement refroidie permet d'augmenter de 100% l'épaisseur déposée en réduisant la température de 22 à 0°C. L'effet de la température est donc significatif.

Les investigations portant sur la température montrent qu'il s'agit d'un paramètre pertinent pour réduire le nombre d'opérations de trempage nécessaires pour atteindre des épaisseurs et des rapports d'aspect élevés.

II.5. Conclusion

Le procédé d'élaboration des fibres à cœur métallique doit permettre de réaliser des fibres fines, longues et avec une épaisseur importante de céramique. Selon ces critères, les procédés développés par les différents auteurs ne conviennent pas. C'est pour répondre à ces exigences que le procédé d'enduction multicouche a été envisagé.

Dans un premier temps, il a été montré que ce procédé pouvait être mis en œuvre de manière relativement aisée puisqu'en première approximation, les paramètres de contrôle sont la vitesse de retrait et la rhéologie du fluide. Néanmoins, les épaisseurs à réaliser sont telles qu'il est nécessaire de réaliser plusieurs opérations de dépôt. Comme il est apparu très difficile d'obtenir des dépôts homogènes par trempages successifs suite à l'apparition d'ondulations à la surface des fibres, l'introduction d'un traitement thermique intermédiaire a permis de réaliser des dépôts de bonne qualité de manière reproductible.

En utilisant une vitesse de retrait et une composition de barbotine constantes, il s'est avéré que le nombre d'opérations d'enduction nécessaire pour atteindre les rapports d'aspect élevés était compris entre 6 et 8 étapes. Dans le but de réduire le nombre d'opération, l'influence de la température de la barbotine sur l'épaisseur déposée a été étudiée et a permis de montrer qu'il est possible de doubler l'épaisseur de la première couche en refroidissant la barbotine à l'aide d'un bain de glace (~0°C). L'optimisation ultérieure du procédé (vitesse de retrait/composition de la barbotine/température) pourrait permettre de réaliser les dimensions requises en un nombre limité d'opérations.

Bien qu'à l'échelle du laboratoire, les dimensions des fibres réalisées ne conviennent pas pour les applications envisagées, le procédé peut être *a priori* adapté et automatisé pour la réalisation continue de fibres plus fines. Ce procédé présente l'avantage de pouvoir réaliser des fibres fines avec des rapports d'aspect élevés contrairement aux autres procédés évoqués (électrophorèse, hydrothermale, coextrusion).

Le développement et l'optimisation de ce procédé est ainsi une voie adéquate pour la réalisation de MCPF avec un faible diamètre, un rapport d'aspect élevé et de grandes longueurs.

Après s'être intéressé particulièrement à l'élaboration de ces fibres, le chapitre suivant concerne la caractérisation de celles-ci, tant d'un point de vue microstructural qu'électromécanique.

Bibliographie du Chapitre II

Bardaine A. Boy P. Belleville P. Acher O. Levassort F. (2008) *Influence of powder preparation process on piezoelectric properties of PZT sol-gel composite thick films*. Journal of Sol-Gel Science and Technology, **48** (1-2), 135‑142.

C-SHRP (2000) *Entretien hivernale des routes au Canada : techniques antiverglaçe et SIMER* (Bulletin technique No. 20). Programme stratégique de recherche routière du Canada (C-SHRP).

Gebhardt S. Seffner L. Schlenkrich F. Schönecker A. (2007) *PZT thick films for sensor and actuator applications*. Journal of the European Ceramic Society, **27** (13-15), 4177‑4180.

Haussonne J.-M. (2005) *Céramiques et verres: principes et techniques d'élaboration*. Presses polytechniques et universitaires romandes.

He X.-Y. Ding A.-L. Zheng X.-S. Qiu P.-S. Luo W.-G. (2003) *Preparation of PZT(53/47) thick films deposited by a dip-coating process*. Microelectronic Engineering, **66** (1-4), 865‑871.

Hu S.H. Meng X.J. Wang G.S. Sun J.L. Li D.X. (2004) *Preparation and characterization of multi-coating PZT thick films by sol–gel process*. Journal of Crystal Growth, **264** (1-3), 307‑311.

Huang N. (2006) *Rhéologie des pâtes granulaires* (Thèse de doctorat). Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, Paris.

Koulago A. Shkadov V. Quéré D. de Ryck A. (1995) *Film entrained by a fiber quickly drawn out of a liquid bath*. Physics of Fluids, **7** (6), 1221.

Kuscer D. Korzekwa J. Kosec M. Skulski R. (2007) *A- and B-compensated PLZT x/90/10: Sintering and microstructural analysis*. Journal of the European Ceramic Society, **27** (16), 4499‑4507.

Ma J. Cheng W. (2002) *Deposition and packing study of sub-micron PZT ceramics using electrophoretic deposition*. Materials Letters, **56** (5), 721‑727.

Ma J. Cheng W. (2004) *Electrophoretic deposition of lead zirconate titanate ceramics*. Journal of the American Ceramic Society, **85** (7), 1735‑1737.

Ng S.Y. Boccaccini A.R. (2005) *Lead zirconate titanate films on metallic substrates by electrophoretic deposition*. Materials Science and Engineering: B, **116** (2), 208‑214.

Quéré D. (1999) *Fluid coating on a fiber*. Annual Review of Fluid Mechanics, **31** (1), 347‑384.

Rguiti M. Grondel S. El youbi F. Courtois C. Lippert M. Leriche A. (2006) *Optimized piezoelectric sensor for a specific application: Detection of Lamb waves*. Sensors and Actuators A: Physical, **126** (2), 362‑368.

Seiwert J. (2010) *Entraînements visqueux* (Thèse de doctorat). Ecole Polytechnique ESPCI, Paris.

Simões A.Z. Zaghete M.A. Cilense M. Varela J.A. Stojanovic B.D. (2001) *Preparation of 9/65/35 PLZT thin films deposited by a dip-coating process*. Journal of the European Ceramic Society, **21** (9), 1151‑1157.

Vermaut D. Arquis E. Lepetitcorps Y. (2009) *Approche physique du procédé d'enduction grande vitesse (EGV) d'un filament de carbure de silicium SiC par un alliage de titane liquide*. Présenté à : 19ème Congrès Français de Mécanique, AFM, Maison de la Mécanique, Marseille (France).

White D.A. Tallmadge J.A. (1966) *A theory of withdrawal of cylinders from liquid baths*. AIChE Journal, **12** (2), 333‑339.

White D.A. Tallmadge J.A. (1967) *A gravity corrected theory for cylinder withdrawal*. AIChE Journal, **13** (4), 745‑750.

Yang A. Tao X.M. Cheng X.Y. (2008) *Prediction of fiber coating thickness via liquid-phase process*. Journal of Materials Processing Technology, **202** (1-3), 365‑373.

Chapitre III

Caractéristiques des MCPF

Chapitre III CARACTERISTIQUES DES MCPF

III.1. Rappel de la problématique

Les dimensions des fibres, la géométrie particulière des fibres et les faibles déplacements des fibres rendent difficile leur caractérisation. Il est en effet difficile d'obtenir les coefficients piézoélectriques réels des fibres par les méthodes usuelles telle la mesure des fréquences caractéristiques ou la mesure directe par la méthode de Berlincourt. La méthode la plus employée, explicitée au chapitre I, reste la vibrométrie laser pour mesurer les déplacements sous champ électrique sinusoïdal et remonter ainsi au coefficient piézoélectrique d_{31}. Néanmoins, cette méthode suppose :

- D'avoir des fibres rectilignes pour mesurer un déplacement longitudinal ;
- D'avoir des rapports d'aspect suffisamment élevés pour caractériser de faibles déplacements avec une incertitude suffisamment faible.

Ces deux conditions n'ont pu être remplies lors de la réalisation des fibres par enduction, notamment l'obtention de fibres rectilignes suite à l'utilisation d'une âme métallique non rectiligne avant l'opération de dépôt.

Compte tenu des difficultés rencontrées pour caractériser les fibres piézoélectriques réalisées, des massifs piézoélectriques sont traités thermiquement en même temps que les différentes fibres. Ceci permet d'assurer le même historique thermique. Les massifs représentent alors *a priori* les caractéristiques optimales que pourraient avoir les fibres.

Dans un premier temps, les caractéristiques des échantillons massifs sont présentées et serviront de valeurs de référence. Les caractéristiques des fibres, en termes de microstructure, de cristallographie et de cycle d'hystérésis sont ensuite présentées et comparées avec celles obtenues sur massif.

Pour finir, les tentatives de caractérisations piézoélectriques des fibres à l'aide de la vibrométrie laser et de la micro-traction sont présentées.

III.2. Caractéristiques des massifs équivalents

La caractérisation sous forme de céramiques massives permet d'obtenir toutes les informations (densité, microstructure, propriétés piézoélectriques) à l'aide de techniques usuelles qui ne sont pas forcément adaptées dans le cas des fibres. Les différents échantillons ont été frittés en même temps que les fibres correspondantes pour s'assurer d'avoir le même historique thermique.

Les résultats sont présentés de manière à comparer les différents traitements thermiques entre eux et ainsi observés un effet potentiel sur les propriétés. A l'image des traitements thermiques réalisés sur les fibres, toutes les vitesses de montée et de descente en température sont fixées à 1°C/min.

III.2.1. Diffraction des rayons X

Les diffractogrammes-X mesurés sur les échantillons élaborés à partir des poudres synthétisée et commerciale dans différentes conditions de frittage sont présentées sur les figures III.1 à III.6.

Les échantillons sont réalisés à partir de poudre synthétisée au LMCPA (PLZT 7/60/40) ou à partir de poudre commerciale. Les échantillons sont frittés :

- en une seule fois, à l'image des fibres multicouches frittées une seule fois à 1200°C ;
- en deux temps, à l'image des fibres multicouches consolidées à 950°C et frittées à 1200°C.

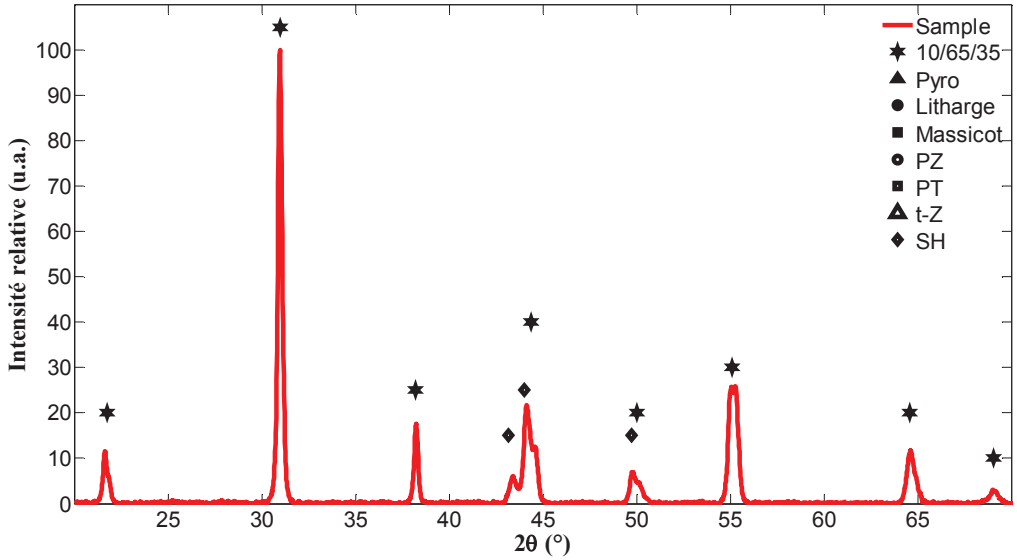


Figure III.1. Diffractogramme-X sur un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre synthétisée et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h.

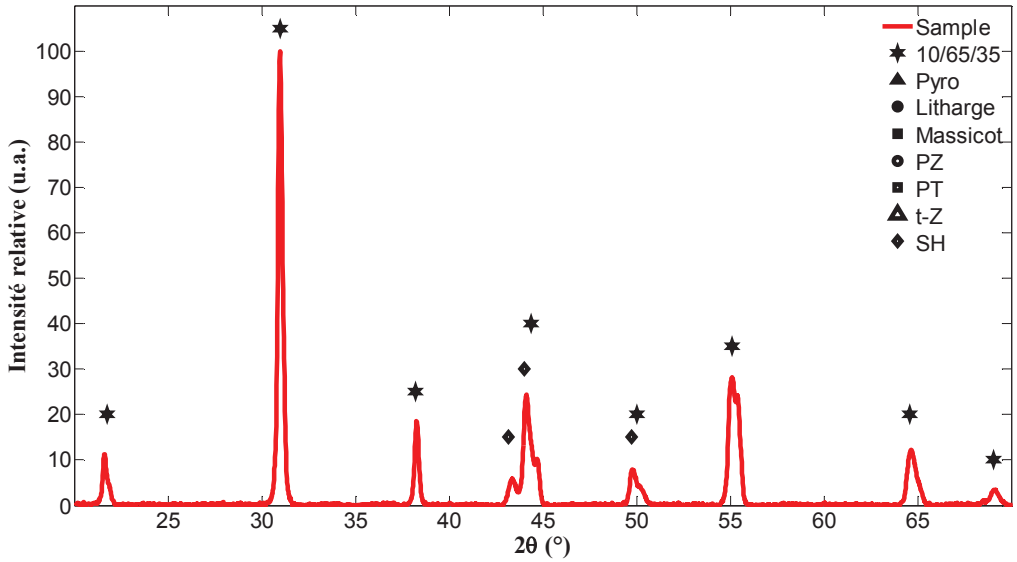


Figure III.2. Diffractogramme-X d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h.

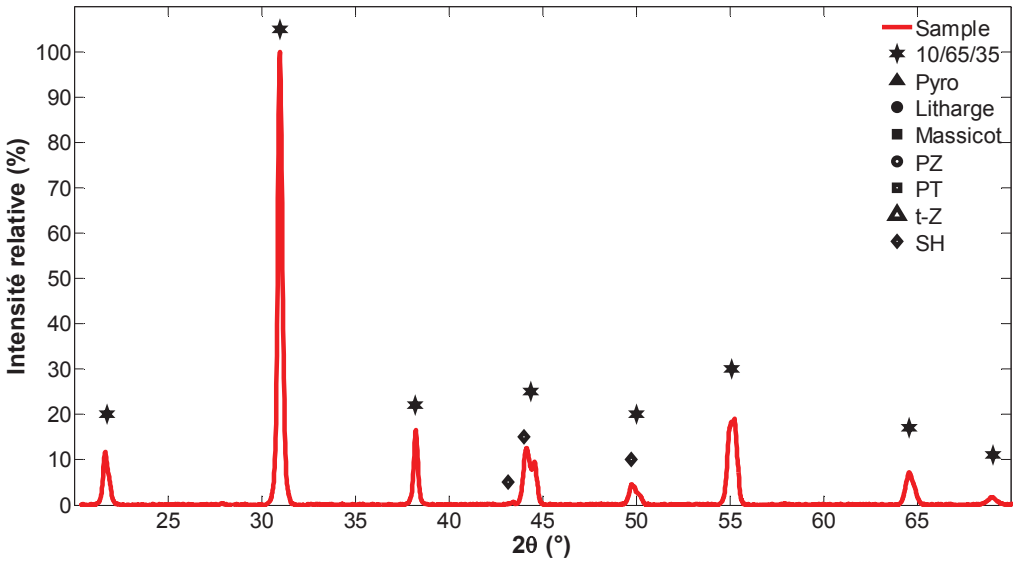


Figure III.3. Diffractogramme-X d'un massif mis en forme par CIP à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) et fritté à 950°C/2h+1200°C/6h.

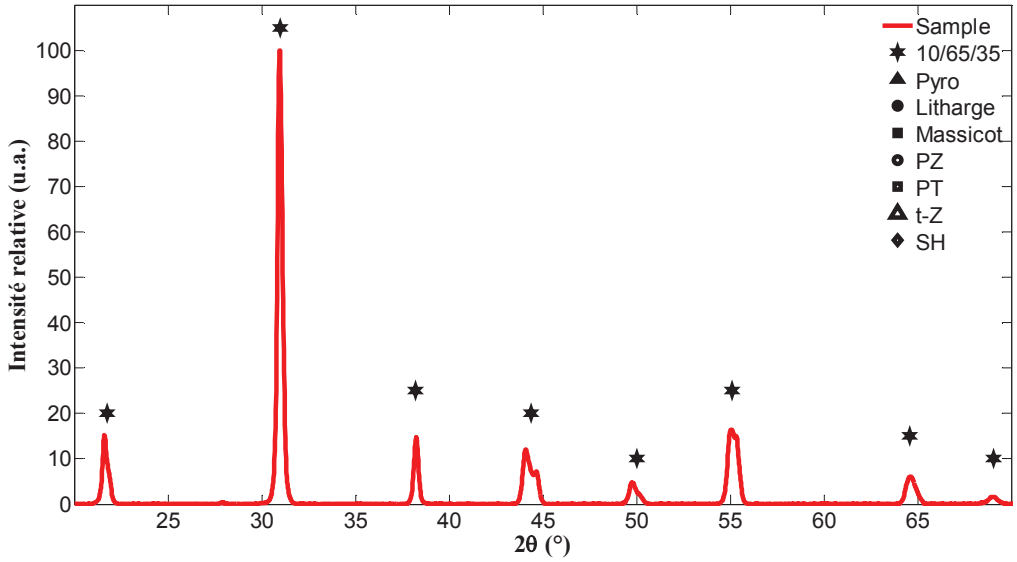


Figure III.4. Diffractogramme d'un massif mis en forme par CIP à partir de la poudre commerciale et fritté 950°C/2h+1200°C/6h.

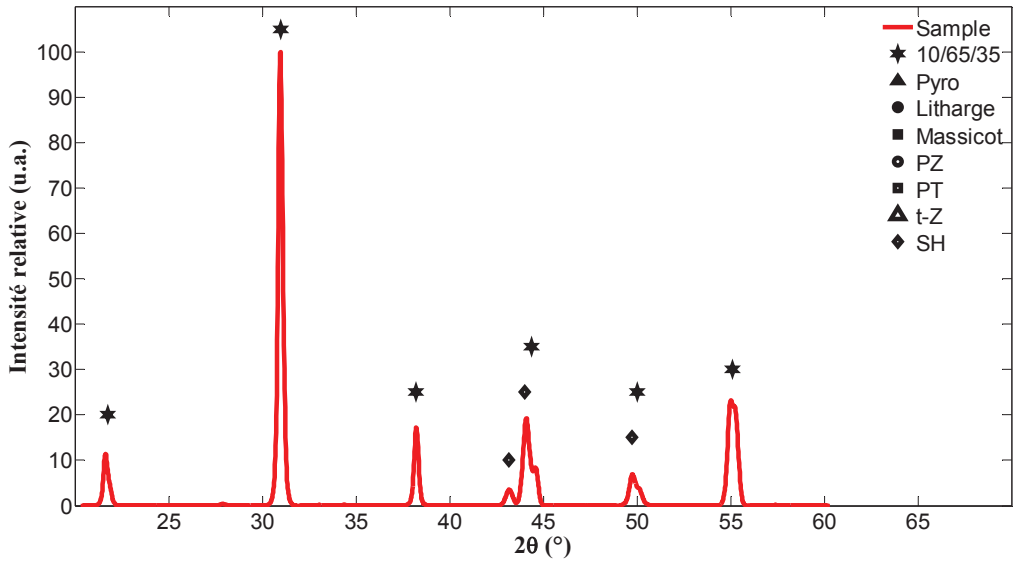


Figure III.5. Diffractogramme-X d'un massif mis en forme par CIP à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) et fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h.

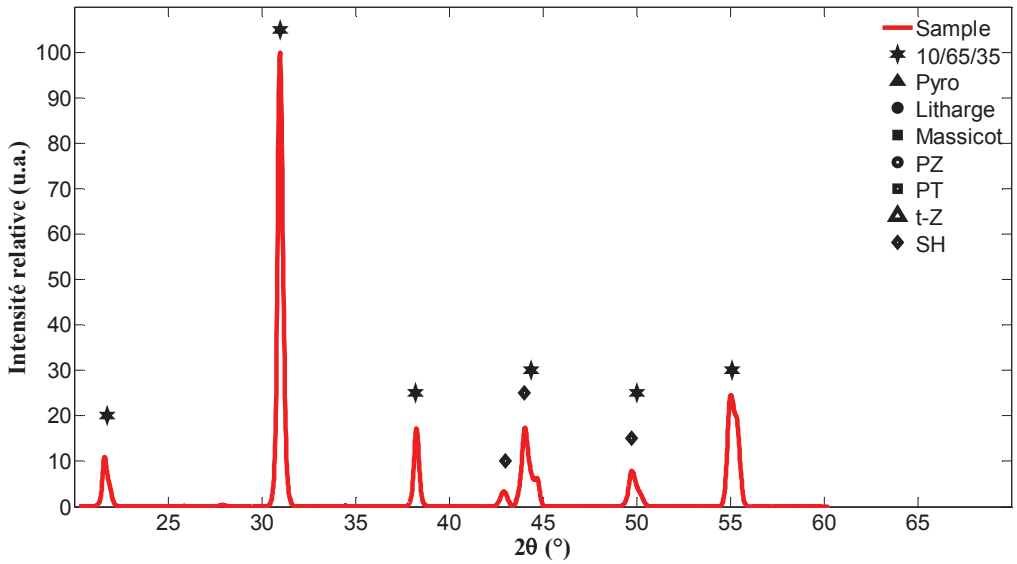


Figure III.6. Diffractogramme d'un massif mis en forme par CIP à partir de la poudre commerciale et fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h.

Dans tous les cas de figures présents ici, les pics sont résolus et parfaitement indexés par une phase PLZT de composition semblable à celle synthétisée. Il n'y a plus de traces d'oxyde de plomb libre, il n'y a pas d'orientation préférentielle ni de phase pyrochlore ou de résidus de media de broyage (poudre synthétisée).

Le Tableau III.1 résume les différentes phases indexées pour les différents échantillons réalisés.

Tableau III.1. Comparaison des indexations pour les échantillons massifs frittés dans des conditions de frittage identiques à celles des fibres.

Fibres équivalentes	Echantillon Conditions de frittage	Indexation
Multicouches Frittage unique	PLZT 7/60/40 (LMCPA) 450°C/1h + 1200°C/6h	PLZT 10/65/35 Porte-échantillons
	Poudre commerciale 450°C/1h + 1200°C/6h	PLZT 10/65/35 Porte-échantillons
Multicouches Consolidation & Frittage	PLZT 7/60/40 (LMCPA) 950°C/2h + 1200°C/6h*	PLZT 10/65/35 Porte-échantillons
	Poudre commerciale 950°C/2h + 1200°C/6h*	PLZT 10/65/35 Porte-échantillons
	PLZT 7/60/40 (LMCPA) 4×950°C/2h + 1200°C/6h*	PLZT 10/65/35 Porte-échantillons
	Poudre commerciale 4×950°C/2h + 1200°C/6h*	PLZT 10/65/35 Porte-échantillons

* Les paliers de déliantage à 450°C ne sont pas indiqués pour alléger l'écriture.

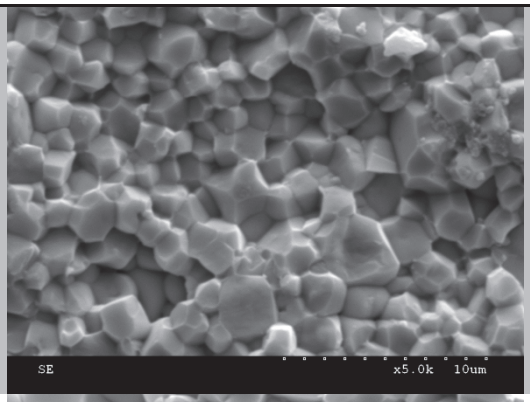
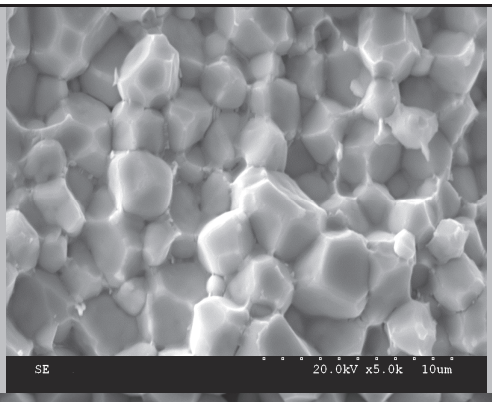
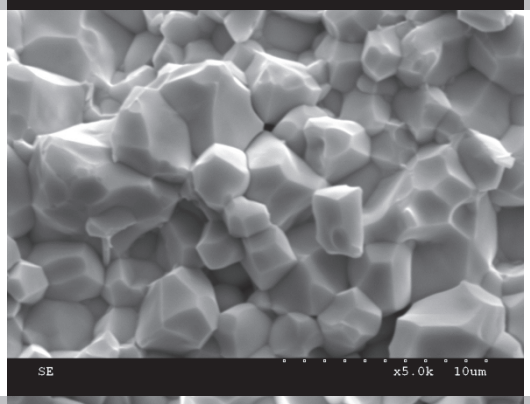
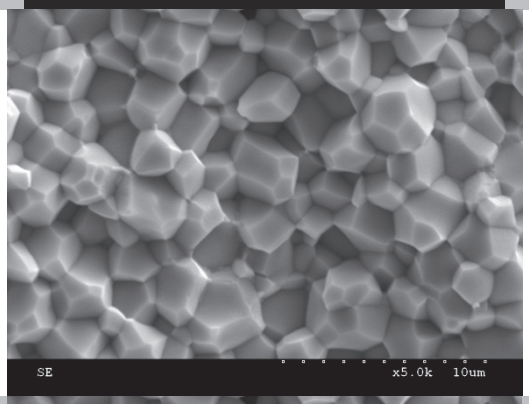
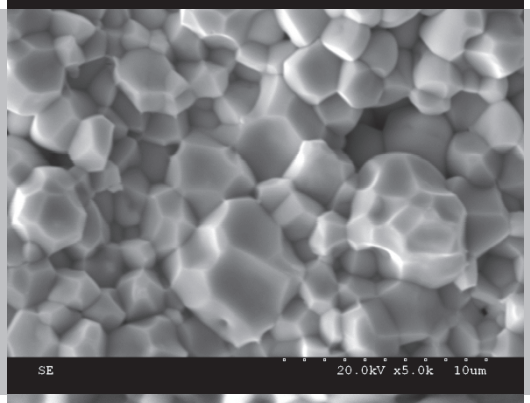
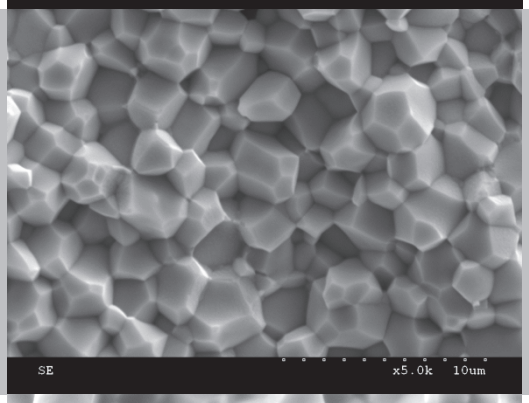
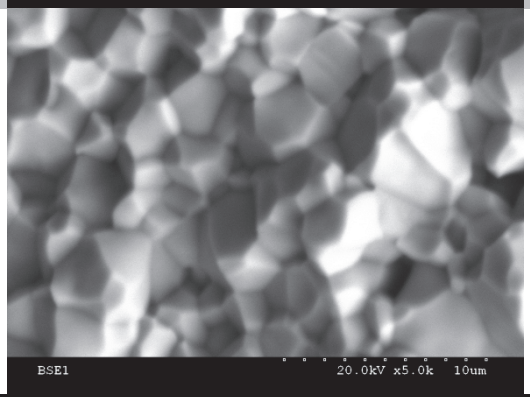
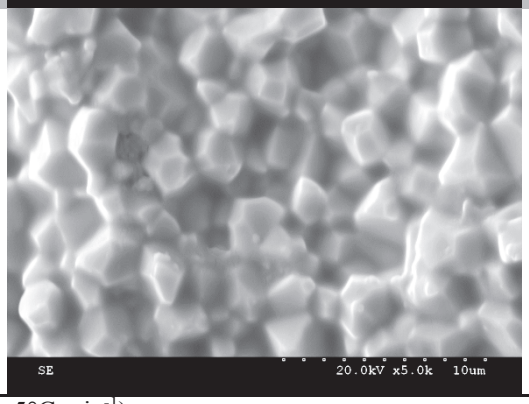
La diffraction des rayons X ne permet donc pas d'observer de différence d'ordre structural suite à l'utilisation des différents traitements thermiques. Ainsi, la succession des traitements thermiques à 950°C, représentatif des traitements de consolidation des différentes couches sur les fibres, ne semble pas modifier la structure cristallographique du matériau piézoélectrique.

III.2.2. Microstructure (microscopie électronique à balayage)

Les microstructures sur fractures observées sur les échantillons élaborés à partir des deux types de poudres (synthétisée et commerciale) dans différentes conditions de frittage sont présentées dans le Tableau III.2.

Pour rappel, les microstructures obtenues dans le cas du frittage standard des massifs piézoélectriques (1200°C/6h/±5°C.min^{-1}) sont présentées dans la première ligne du tableau.

Tableau III.2. Microstructures sur fracture des échantillons massifs mis en forme à partir de la poudre commerciale (PC) et de la poudre synthétisée (PS) dans les différentes conditions de frittage.

	PC	PS
1200/6*		
450/1 1200/6		
950/2 1200/6		
4×950/2 1200/6		

* frittage standard des massifs piézoélectriques (1200°C/6h/±5°C.min^{-1})

Il n'y a pas de différence majeure dans les différents cas de figures : les microstructures sont denses et relativement homogènes avec des faciès de rupture intergranulaires. Par contre, il y a un grossissement de grains notable sur les échantillons élaborés à partir de la poudre

commerciale en passant du traitement standard avec des vitesses de 5°C.min^{-1} aux autres traitements avec des vitesses plus lentes de 1°C.min^{-1}. Quelle que soit la poudre utilisée, les paliers de déliantage et de consolidation n'ont pas d'effet sur la microstructure. C'est bien l'allongement de la durée aux hautes températures en utilisant des vitesses plus lentes qui est responsable du grossissement de grains.

III.2.3. Densité

La Figure III.7 présente l'évolution de la densité des échantillons massifs avec les différents traitements thermiques. Les résultats sont présentés en densité absolue, ne connaissant pas précisément la densité théorique de la poudre synthétisée.

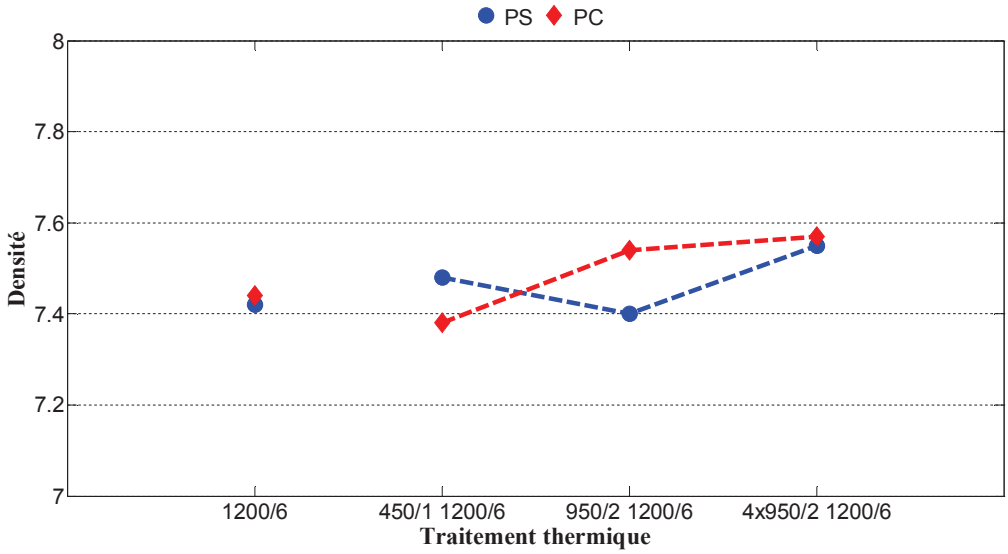


Figure III.7. Evolution de la densité absolue avec les différents traitements thermiques pour les échantillons mis en forme à partir de la poudre commerciale (PC) et la poudre synthétisée (PS).

Pour la poudre commerciale, les densités relatives sont voisines de 100% quel que soit le traitement thermique considéré. Les variations ne sont pas significatives mais la tendance globale est à l'accroissement de la densité avec la prolongation et la répétition des traitements thermiques. Les densités absolues mesurées sont relativement proches pour les échantillons mis en forme à partir de la poudre commerciale et de la poudre synthétisée.

Quelle que soit la poudre utilisée, la répétition des traitements de consolidation à 950°C n'est pas préjudiciable à l'obtention d'un matériau dense. En effet, à cette température, les processus de diffusion des espèces sont encore relativement limités et ne favorisent donc ni la croissance de grains, ni la dé-densification.

III.2.4. Caractéristiques ferroélectriques

Les figures suivantes (III.8 à III.13) présentent les cycles d'hystérésis, mesurés à température ambiante à basse fréquence sous champ maximal croissant et l'évolution des grandeurs ferroélectriques (polarisation maximale, polarisation rémanente et champ coercitif) avec le champ électrique appliqué.

III.2.4.1. Poudre synthétisée (LMCPA)

Les figures III.8 et III.9 concernent l'échantillon élaboré à partir de la poudre synthétisée fritté en une fois à 1200°C.

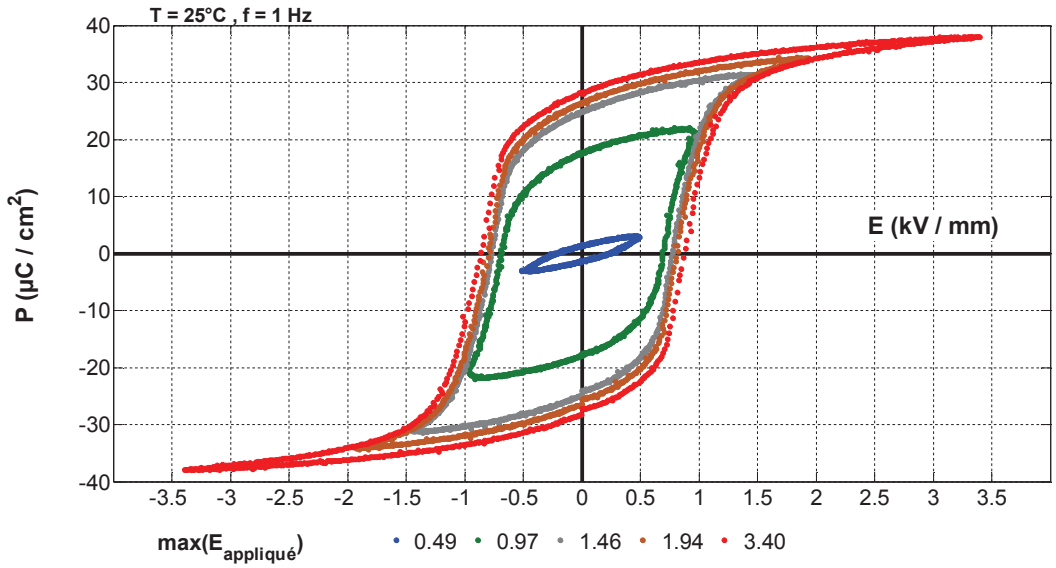


Figure III.8. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h.

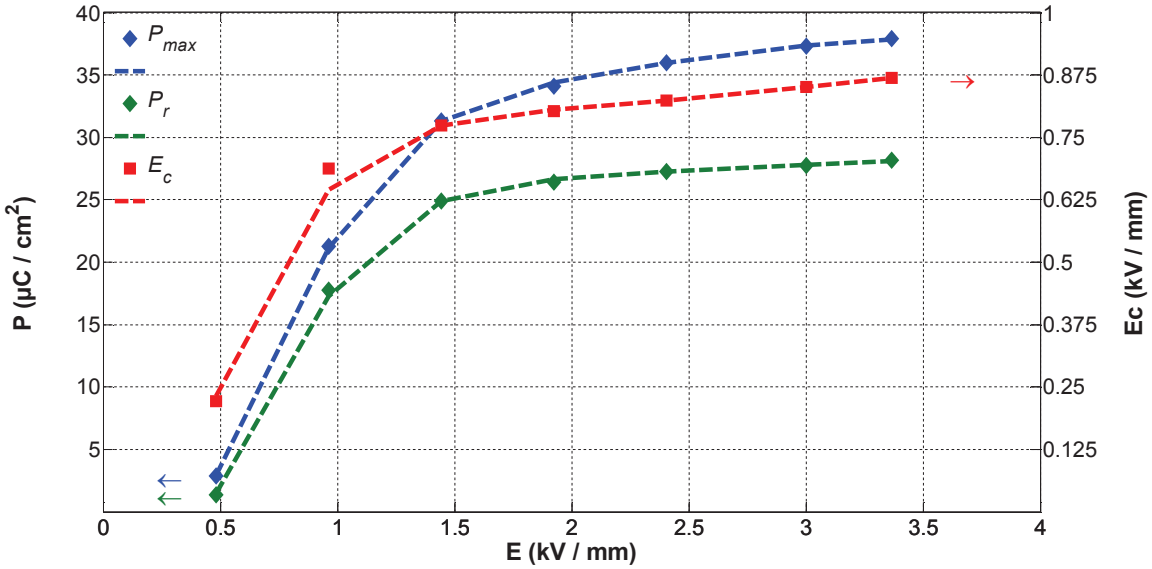


Figure III.9. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h.

Les figures III.10 et III.11 concernent l'échantillon élaboré à partir de la poudre synthétisée consolidé une fois à 950°C et fritté à 1200°C.

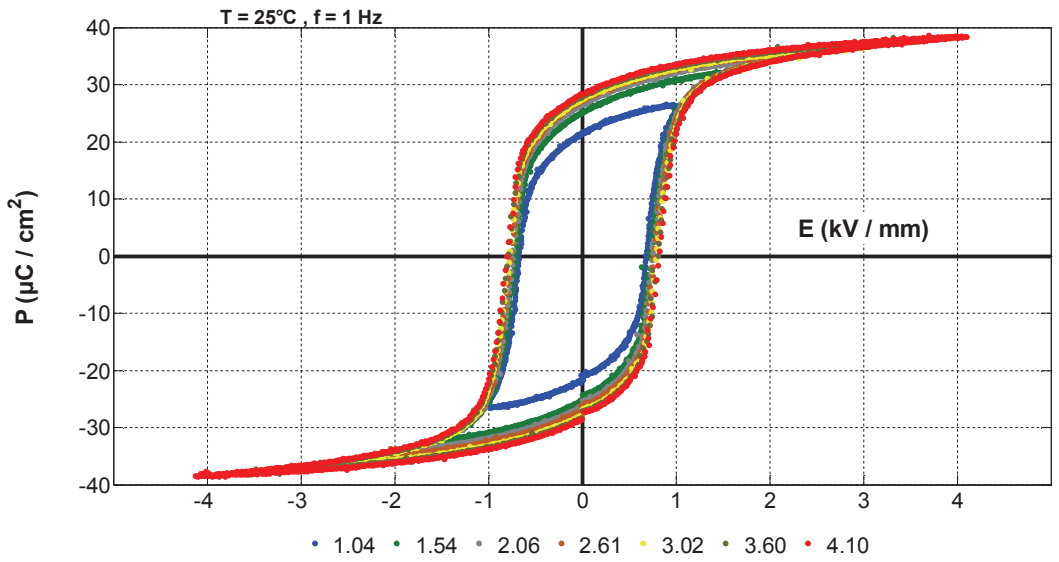


Figure III.10. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) frittée à 950°C/2h+1200°C/6h.

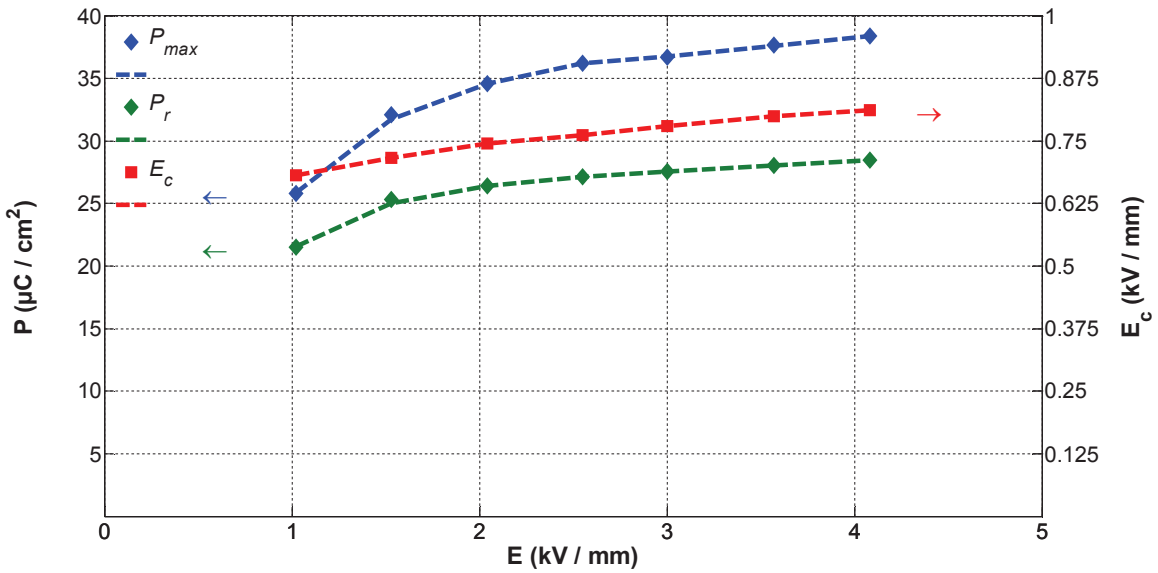


Figure III.11. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) fritté à 950°C/2h+1200°C/6h.

Les figures III.12 et III.13 concernent l'échantillon élaboré à partir de la poudre synthétisée consolidé quatre fois à 950°C et fritté à 1200°C.

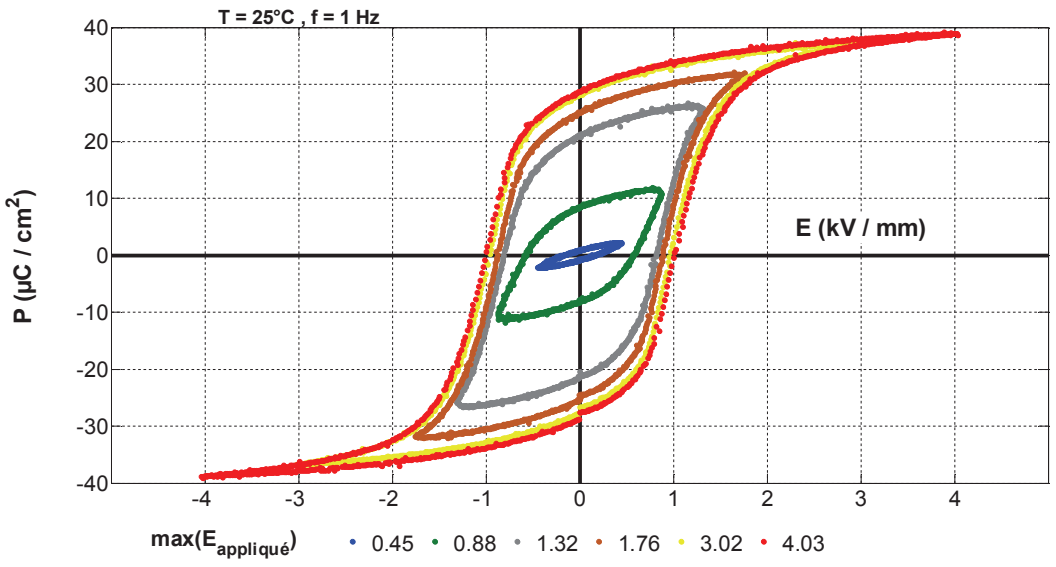


Figure III.12. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) frittée 4×950°C/2h+1200°C/6h.

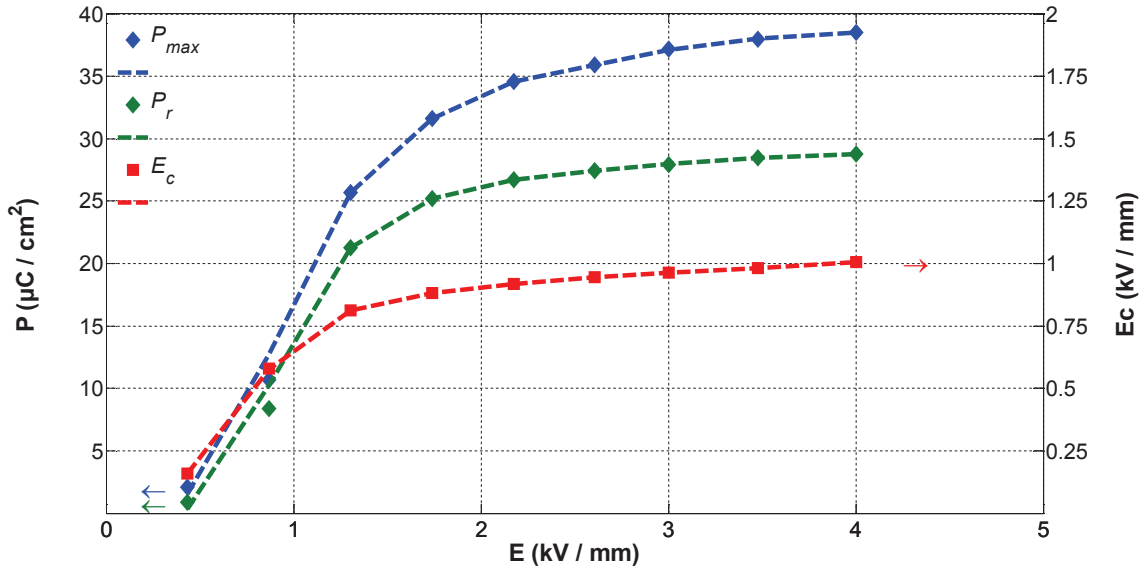


Figure III.13. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre synthétisée (LMCPA) fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h.

Le comportement à la polarisation des échantillons élaborés à partir de la poudre synthétisée et frittés ne semble pas être modifié par les différents traitements thermiques : les cycles sont toujours bien ouverts avec un état de saturation marqué dès que le champ électrique appliqué atteint des valeurs de l'ordre de 2 kV/mm. De la même manière, les valeurs atteintes par la polarisation et le champ coercitif ne sont pas modifiées par les différents traitements thermiques.

III.2.4.2. Poudre commerciale

Les figures III.14 et III.15 concernent l'échantillon élaboré à partir de la poudre commerciale fritté en une fois à 1200°C.

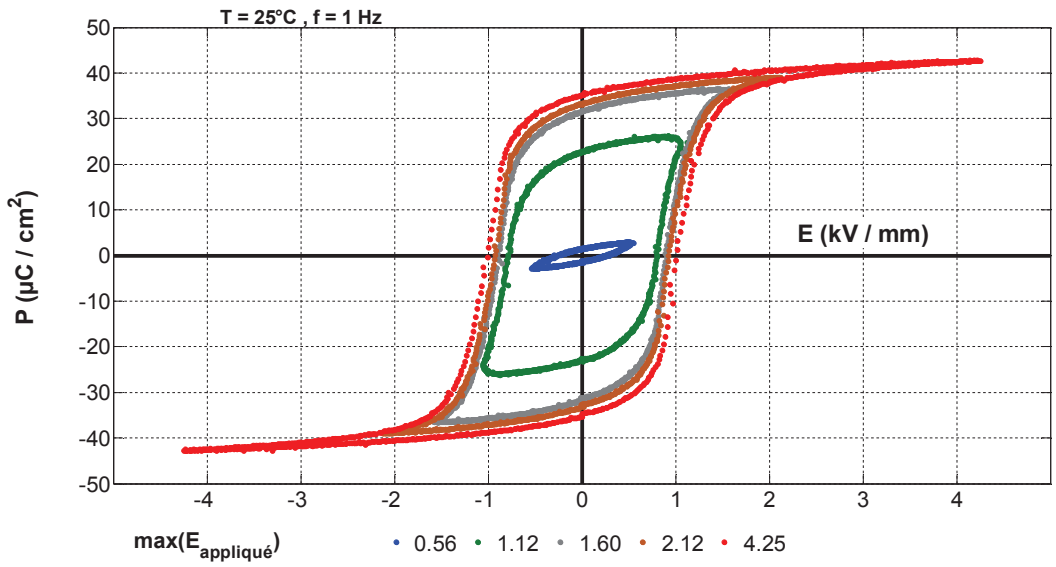


Figure III.14. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h.

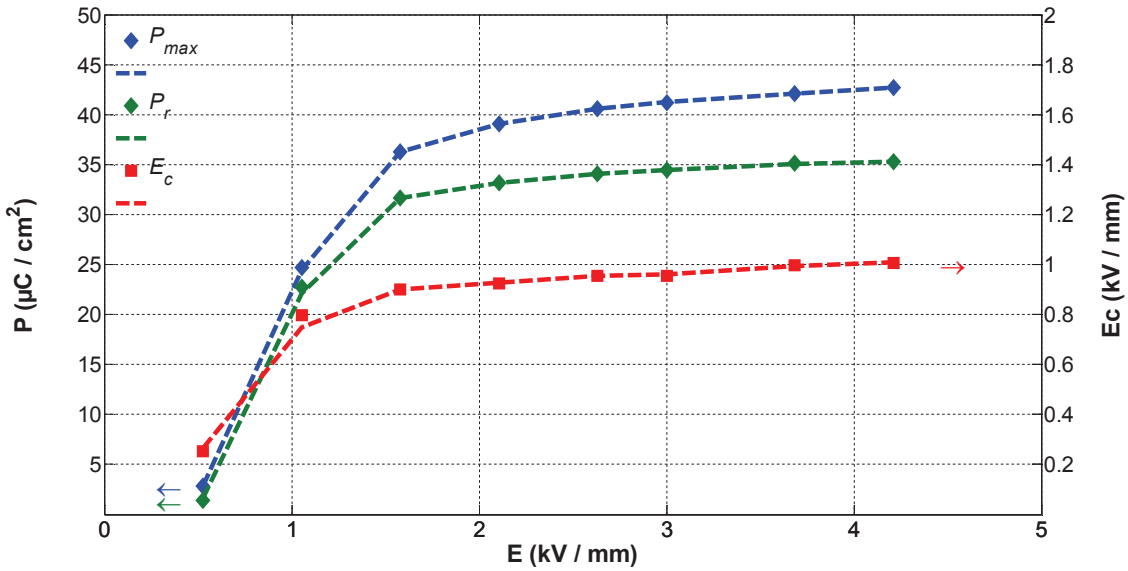


Figure III.15. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté à 450°C/1h+1200°C/6h.

Les figures III.16 et III.17 concernent l'échantillon élaboré à partir de la poudre commerciale consolidé une fois à 950°C et fritté à 1200°C.

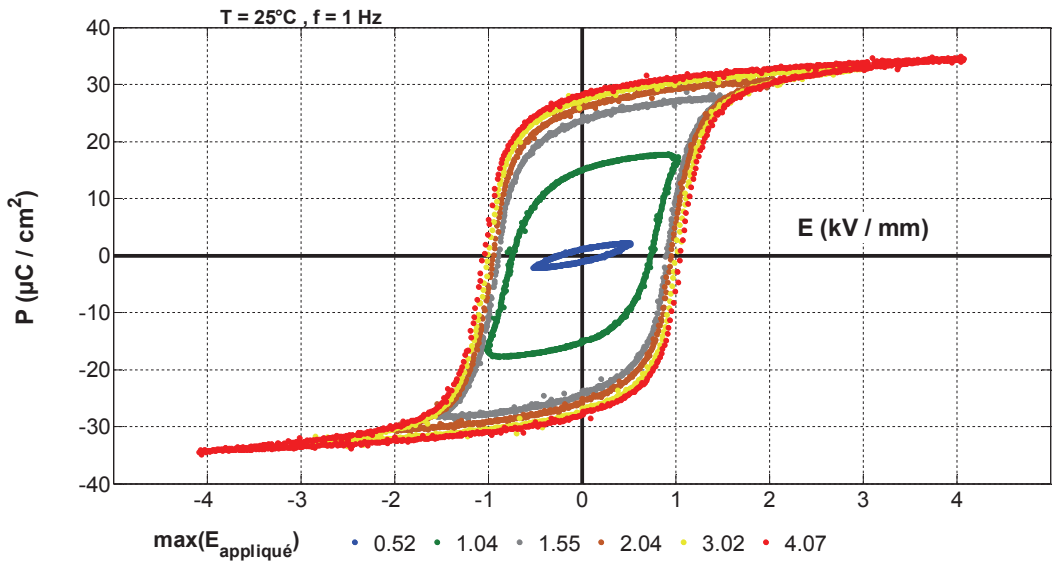


Figure III.16. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté 950°C/2h+1200°C/6h.

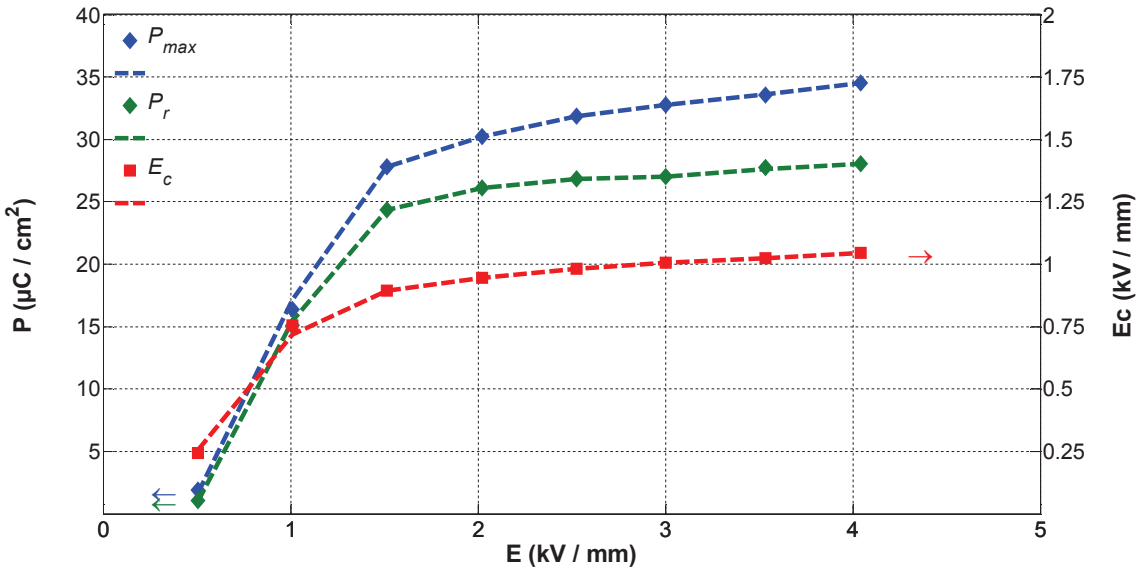


Figure III.17. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale fritté 950°C/2h+1200°C/6h.

Les figures III.18 et III.19 concernent l'échantillon élaboré à partir de la poudre commerciale consolidé quatre fois à 950°C et fritté à 1200°C.

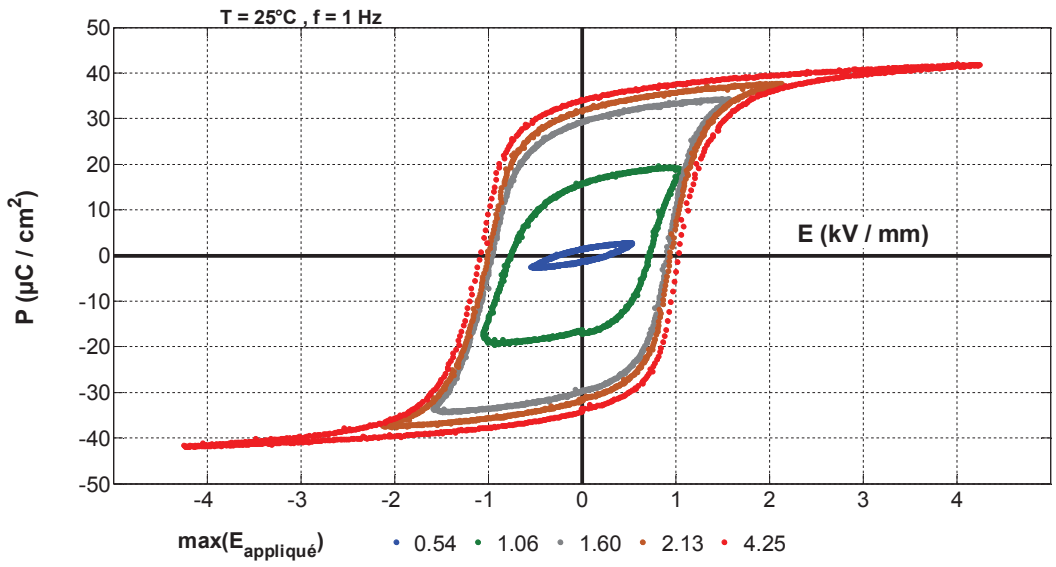


Figure III.18. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale et fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h.

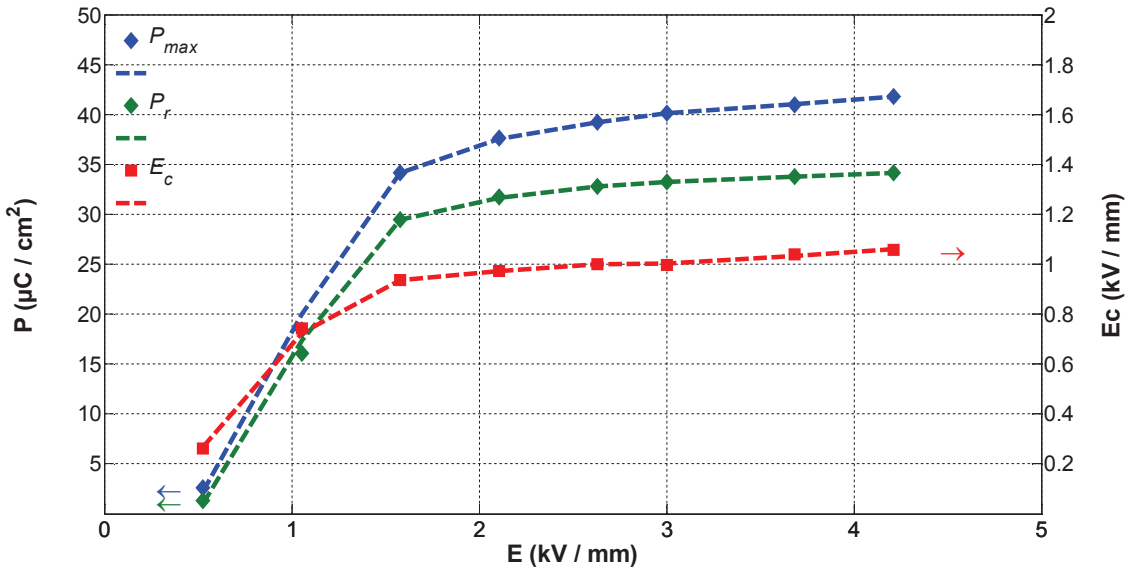


Figure III.19. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale fritté 4×950°C/2h+1200°C/6h.

Comme pour la poudre synthétisée, les différents traitements thermiques ne semblent pas modifier la polarisabilité du matériau. Les valeurs de la polarisation et du champ coercitif ne varient pas non plus de manière significative, bien que la polarisation rémanente de l'échantillon consolidé une fois à 950°C et fritté à 1200°C soit plus faible que tous les autres échantillons.

III.2.4.3. Bilan

Le Tableau III.3 reprend les valeurs de la polarisation rémanente et du champ coercitif obtenues pour un champ électrique de 3 kV/mm.

Tableau III.3. Comparaisons des valeurs atteintes par la polarisation rémanente et le champ coercitif mesurés sur des échantillons élaborés à partir de poudre synthétisée (PS) et commerciale (PC) dans différentes conditions de frittage après polarisation sous un champ électrique de 3 kV/mm.

Traitement thermique	P_r (µC/cm²)		E_c (kV/mm)	
	PS	PC	PS	PC
1200/6*	25,23	30,94	0,70	0,94
450/1 1200/6	27,75	34,45	0,85	0,95
950/2 1200/6	27,55	27,03	0,78	1,01
4×950/2 1200/6	27,95	33,22	0,96	1,00

* frittage standard des massifs piézoélectriques (1200°C/6h/±5°C.min^{-1})

En comparant les valeurs de la polarisation rémanente avec le traitement standard des massifs (1200°C/6h/±5°C.min^{-1}), on constate que les valeurs sont plus élevées lorsque le traitement thermique est prolongé. Comme pour les autres caractéristiques, les traitements de consolidation à 950°C ne semblent pas modifier les propriétés. C'est donc encore une fois la prolongation du traitement thermique à haute température par l'utilisation de vitesses plus lentes qui permet d'augmenter les propriétés ferroélectriques des échantillons.

III.2.5. Caractéristiques piézoélectriques

Les tableaux III.4, III.5 et III.6 présentent les différentes caractéristiques piézoélectriques mesurées sur les échantillons frittés et polarisés. Les valeurs obtenues dans les conditions de frittage standard des massifs (cf. Chapitre II) sont également rappelées.

Tableau III.4. Evolution des coefficients piézoélectriques (d_{33} et d_{31}) pour des échantillons élaborés à partir de poudre synthétisée (PS) et de poudre commerciale (PC) dans les différentes conditions de frittage.

Traitement thermique	d_{33} (×10^{-12} m/V)		d_{31} (×10^{-12} m/V)	
	PS	PC	PS	PC
1200/6	360	460	-115	-190
450/1 1200/6	525	520	-245	-240
950/2 1200/6*	475	505	-210	-180
4×950/2 1200/6*	530	505	-205	-215

* Les paliers de déliantage à 450°C ne sont pas indiqués pour alléger l'écriture.

Tableau III.5. Evolution de caractéristiques piézoélectriques (k_p et s_{11}^E) pour des échantillons élaborés à partir de poudre synthétisée (PS) et de poudre commerciale (PC) dans les différentes conditions de frittage.

Traitement thermique	k_p		s_{11}^E (×10^{-12} m²/N)	
	PS	PC	PS	PC
1200/6	0,27	0,58	18,7	13,7
450/1 1200/6	0,60	0,67	13,9	15,0
950/2 1200/6*	0,54	0,63	13,1	12,3
4×950/2 1200/6*	0,57	0,64	12,9	13,9

* Les paliers de déliantage à 450°C ne sont pas indiqués pour alléger l'écriture.

Tableau III.6. Evolution des caractéristiques diélectriques (ϵ_r et $tan\ \delta$) pour des échantillons élaborés à partir de poudre synthétisée (PS) et de poudre commerciale (PC) dans les différentes conditions de frittage.

Traitement thermique	$\epsilon_r^{1\,kHz}$		$tan\ \delta^{1\,kHz}$	
	PS	PC	PS	PC
1200/6	3200	2400	5,7%	2,3%
450/1 1200/6	3950	2695	2,6%	1,9%
950/2 1200/6*	3430	2100	4,2%	2,1%
4×950/2 1200/6*	3370	3390	2,3%	1,8%

* Les paliers de déliantage à 450°C ne sont pas indiqués pour alléger l'écriture.

Le traitement thermique standard (1200°C/6h/±5°C.min^{-1}) conduit à des caractéristiques relativement faibles, surtout avec la poudre synthétisée. Ces caractéristiques augmentent avec un traitement prolongé à haute température et sont peu impactées par les paliers intermédiaires à 950°C. La poudre commerciale est moins influencée par les différents traitements thermiques : elle permet donc d'obtenir de bonnes propriétés dans des conditions de frittage moins favorables.

III.2.6. Bilan des différents traitements thermiques

Les différentes caractérisations effectuées jusqu'alors sur des échantillons massifs semblent indiquer d'une part que la prolongation de la durée du traitement thermique permet d'améliorer les propriétés (densité, microstructure, polarisation) et que d'autre part, les traitements de consolidation à la température choisie (950°C) ne perturbent pas les propriétés.

Il est donc raisonnable de penser que les fibres traitées thermiquement dans les mêmes conditions sont susceptibles de présenter des propriétés piézoélectriques similaires, sous réserve de présenter des caractéristiques microstructurales semblables (densité, taille de grains) et en négligeant l'effet de la géométrie cylindrique sur la polarisation.

III.3. Fibres individuelles

Les fibres sont caractérisées de la même manière que les échantillons massifs en termes de diffraction des rayons X, de microstructures et de cycles d'hystérésis. Ceci permettra de confirmer l'hypothèse selon laquelle les propriétés piézoélectriques peuvent être semblables à celles mesurées sur massifs si la structure du matériau est la même (cristallographie, microstructure, comportement à la polarisation).

Les fibres multicouches avec un seul traitement thermique à 1200°C ont été réalisées à partir de barbotines de poudre synthétisée. Les fibres multicouches avec les traitements thermiques de consolidation à 950°C et de frittage à 1200°C ont été réalisées à partir de barbotines de poudre commerciale.

III.3.1. Diffractogrammes

Les dimensions des fibres ne permettant pas d'obtenir un signal suffisant, plusieurs fibres d'une même série sont alignées pour améliorer l'intensité et la qualité du diffractogramme (cf. Annexe 1).

III.3.1.1. Fibres 2 couches frittées à 950°C/2h – 1200°C/6h

La Figure III.20 présente le diffractogramme-X mesuré sur 5 fibres élaborées avec 2 couches sur une âme métallique en platine de 500 µm de diamètre.

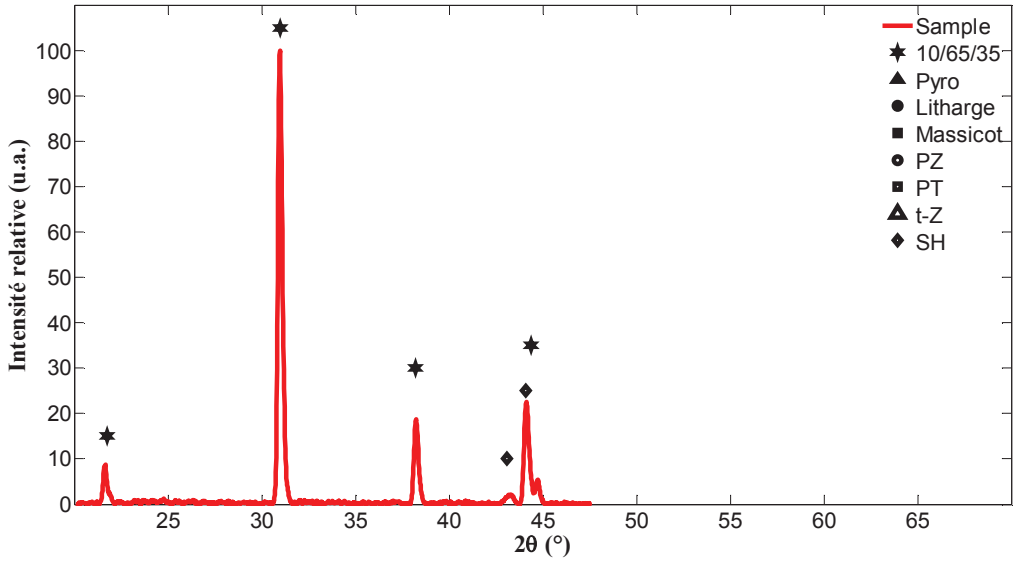


Figure III.20. Diffractogramme-X mesuré sur 5 fibres alignées (fibres 2 couches frittées 950°C/2h - 1200°C/6h).

Un problème d'appareillage n'a pas permis d'étendre la mesure à 2θ > 50°. Néanmoins, les pics identifiés sont bien résolus et indexés par une phase pérovskite. La structure cristallographique est la même que celle sur massif.

III.3.1.2. Fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h – 1200°C6h

La Figure III.21 présente le diffractogramme-X obtenu sur 5 fibres élaborées avec 5 couches sur une âme métallique en platine de 500 µm de diamètre.

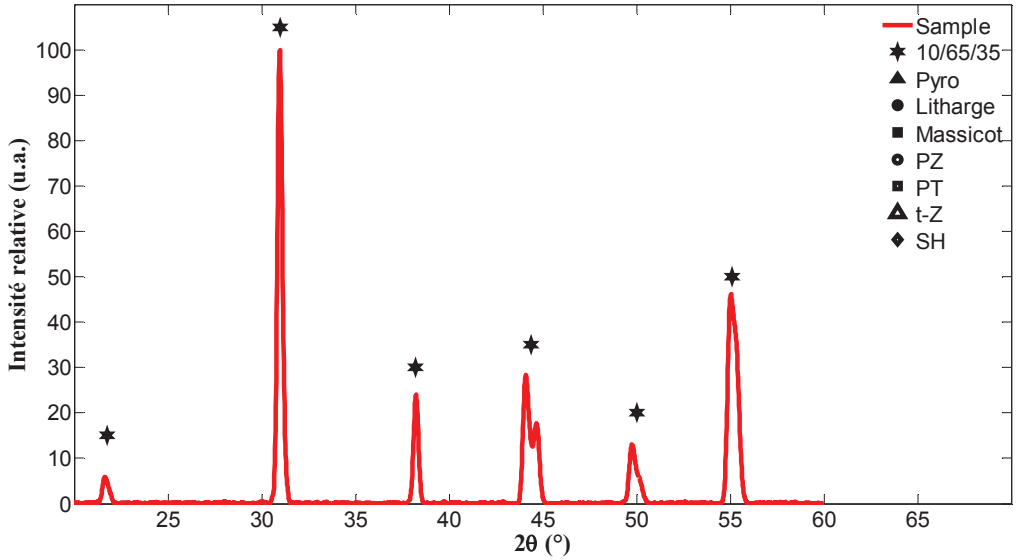


Figure III.21. Diffractogramme mesuré sur 5 fibres alignées (fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h - 1200°C/6h).

Les pics sont une nouvelle fois bien résolus et indexés par une phase pérovskite. La structure cristallographique est la même que celle sur massif.

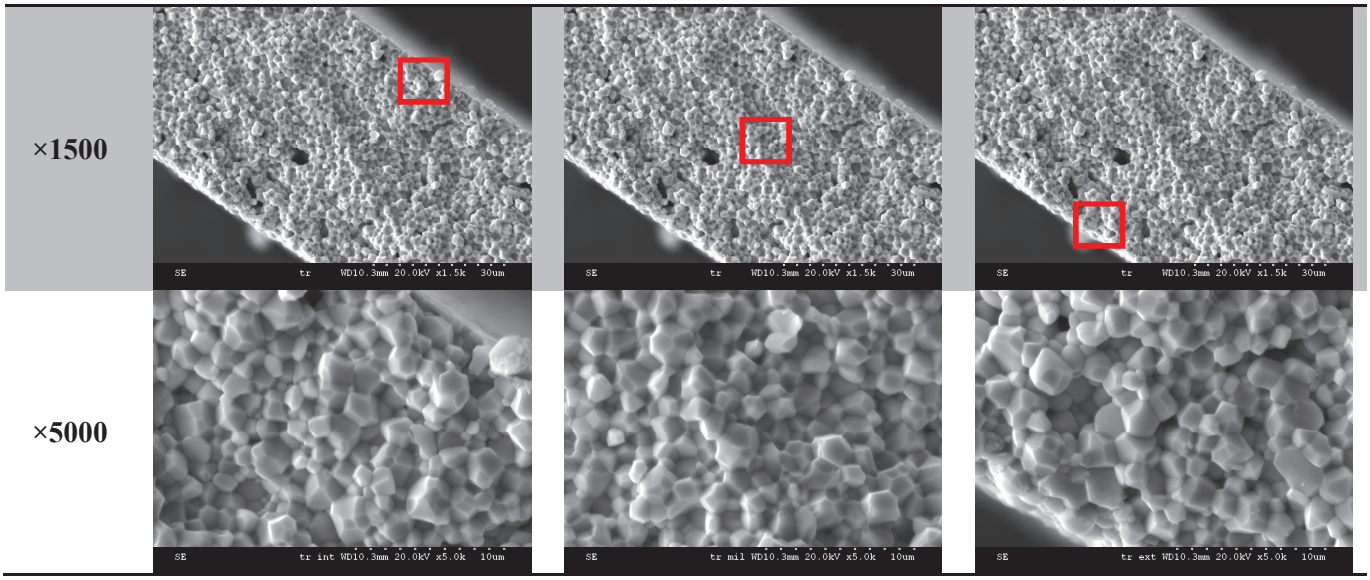
La diffraction des rayons X ne met pas en évidence de différence significative entre les structures cristallographiques des massifs et des fibres.

III.3.2. Microstructures

III.3.2.1. Fibres 2 couches frittées 950°C/2h – 1200°C/6h

Le Tableau III.7 présente la section d'un dépôt de deux couches réalisé sur un fil de platine de 500 µm. La microstructure est observée à fort grossissement le long du rayon : à l'interface avec l'âme métallique, au centre du dépôt céramique et à l'extrémité libre du dépôt.

Tableau III.7. Microstructure d'une section de dépôt d'une fibre 2 couches après une consolidation à 950°C et frittage final à 1200°C.



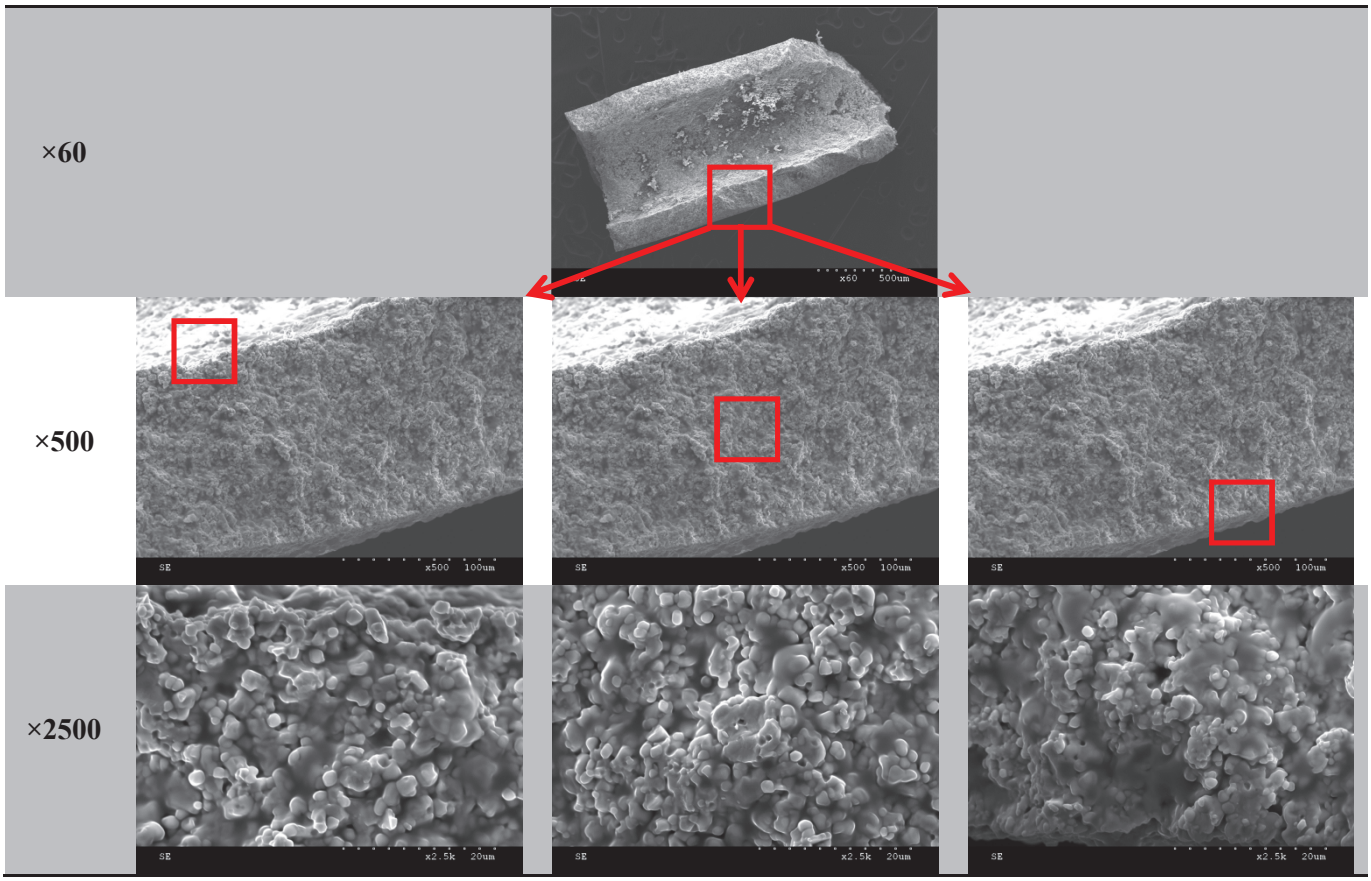
La microstructure est dense et homogène, aussi bien dans la circonférence que selon le rayon. Le faciès de rupture est intergranulaire et la taille des grains est de l'ordre de 2 µm. Ce type de microstructure est identique à celle d'un massif fritté dans les mêmes conditions.

Le dépôt a été réalisé avec 2 couches qui ont subi des traitements thermiques différents : la partie "interne" a subi la consolidation et le frittage alors que la partie "externe" n'a subi que le frittage final. L'observation des microstructures permet de constater qu'il n'y a pas de délaminage des différentes couches et que par conséquent, le traitement de consolidation à 950°C permet d'obtenir un dépôt final homogène.

III.3.2.2. Fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h – 1200°C/6h

Le Tableau III.8 présente la section d'un dépôt de cinq couches réalisé sur un fil de platine de 500 µm. La microstructure est observée une nouvelle fois le long du rayon.

Tableau III.8. Microstructure d'une section de dépôt d'une fibre 5 couches après quatre consolidations à 950°C et frittage final à 1200°C.



Bien que la microstructure semble dense et homogène le long du rayon du dépôt, la morphologie des grains est différente de celle observée sur le dépôt 2 couches et sur le massif correspondant (Tableau III.2). Cette morphologie granulaire n'est pas non plus observée sur des échantillons massifs traités selon le même cycle thermique.

III.3.3. Cycles d'hystérésis

III.3.3.1. Fibres 2 couches frittées 950°C/2h – 1200°C/6h

Les figures suivantes (III.22 à III.27) présentent les cycles d'hystérésis et l'évolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur 3 fibres d'une même série.

Pour les mesures à champ électrique faible (<5 kV/mm), la fréquence de mesure a dû être augmentée pour obtenir des cycles d'hystérésis. Seuls les résultats à des fréquences de 1 hertz sont présentés.

III.3.3.1.i. Fibre n°1

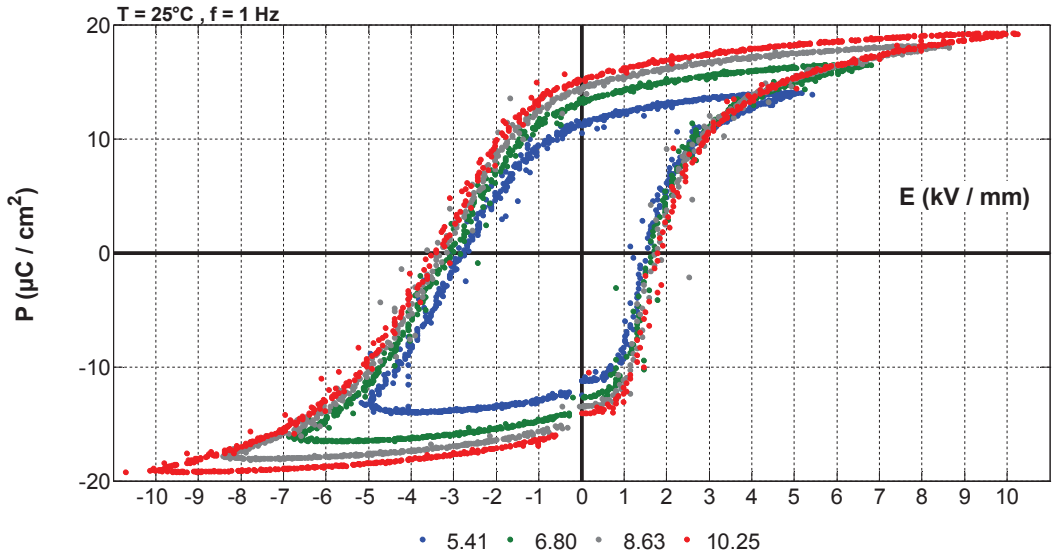


Figure III.22. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt1000-PC-Ag F1) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.

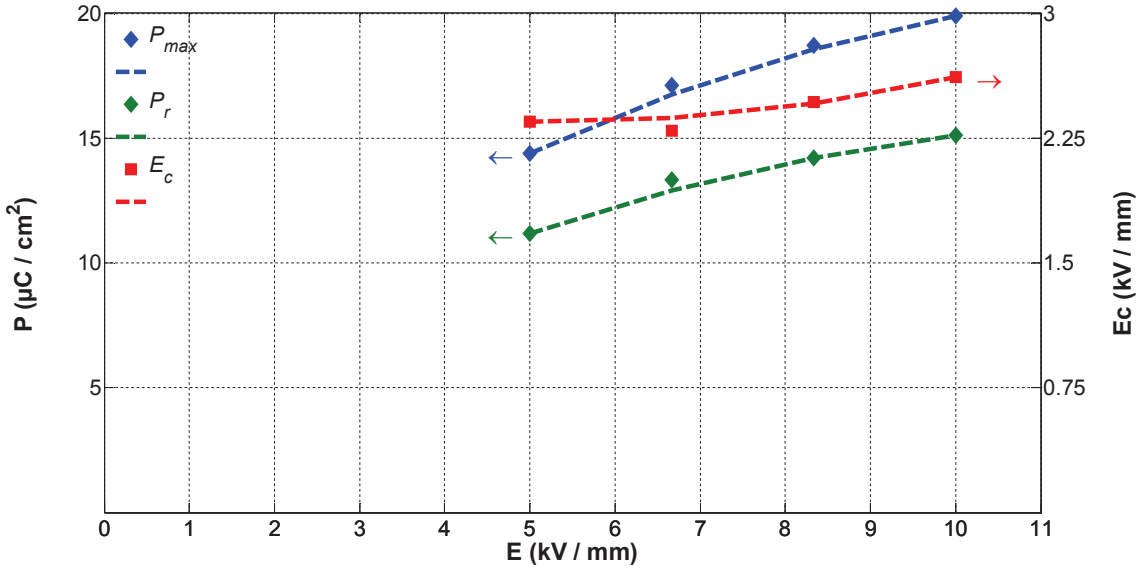


Figure III.23. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt1000-PC-Ag F1) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.

III.3.3.1.ii. Fibre n°2

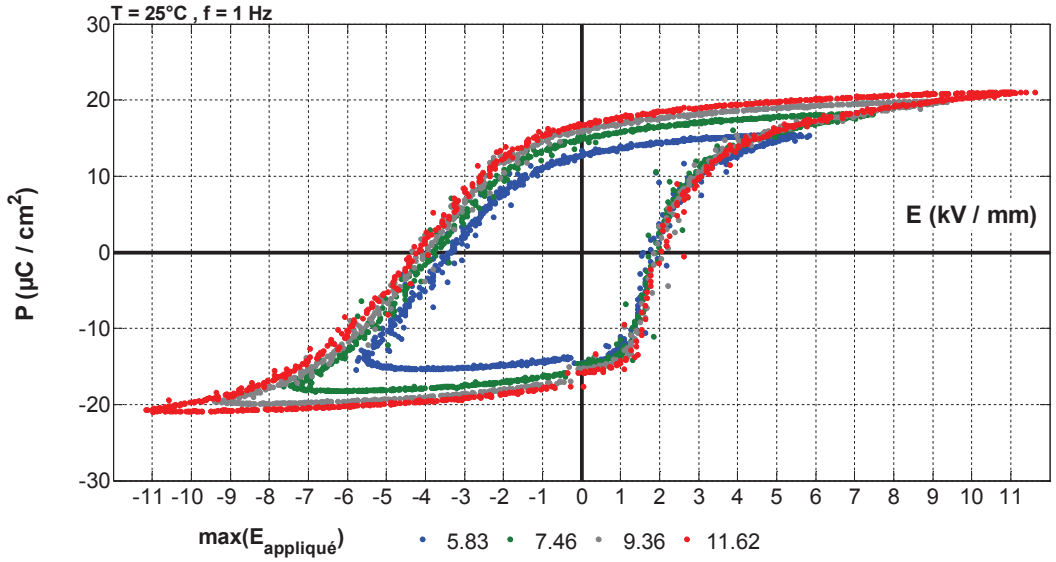


Figure III.24. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt1000-PC-Ag F2) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.

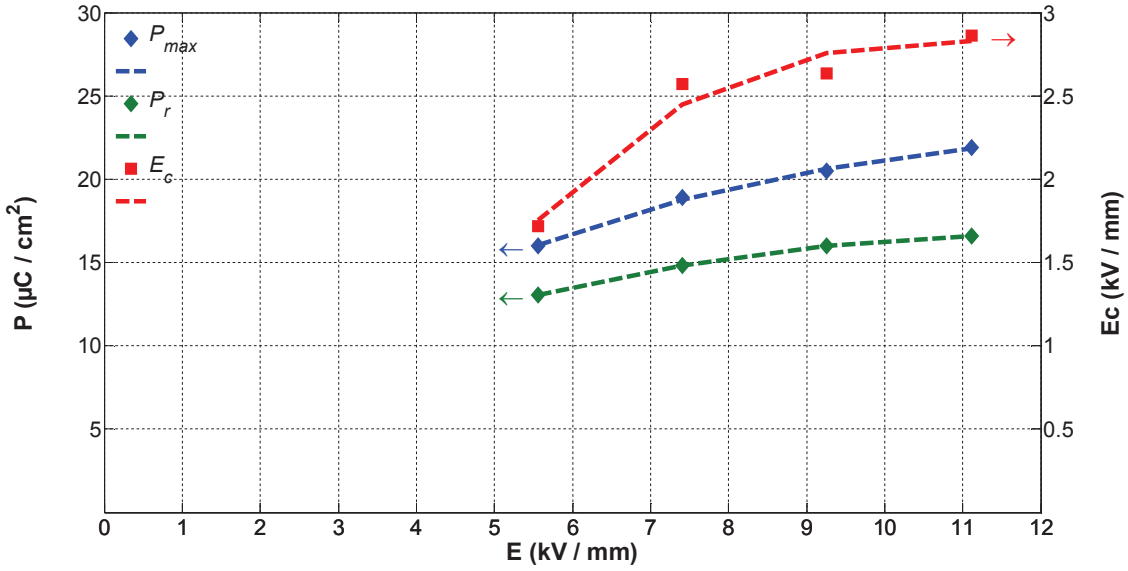


Figure III.25. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt1000-PC-Ag F2) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.

III.3.3.1.iii. Fibre n°3

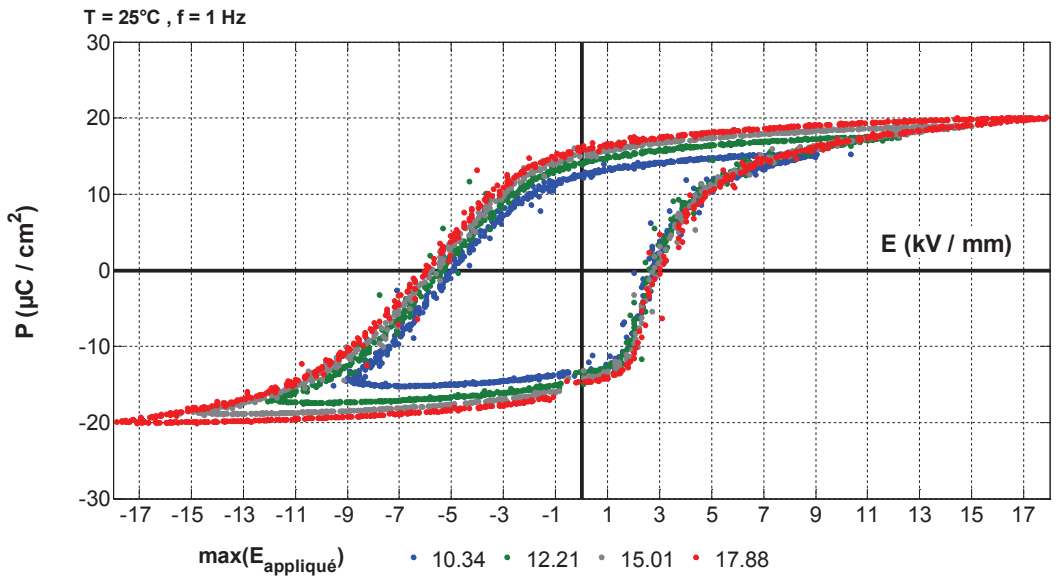


Figure III.26. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt1000-PC-Ag F3) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.

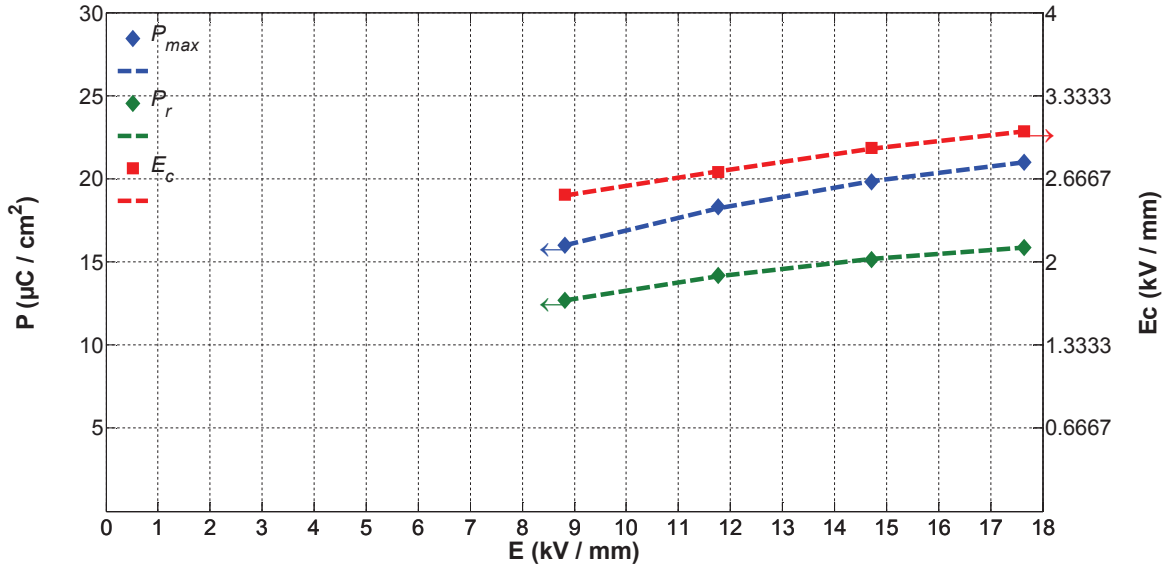


Figure III.27. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt1000-PC-Ag F3) 2 couches frittées à 950°C/2h - 1200°C/6h.

Les épaisseurs de matériau piézoélectrique étant relativement faibles, il est probable que la mesure des cycles à très basse fréquence et à faible champ électrique fasse intervenir des phénomènes annexes qui modifient la réponse du matériau ce qui nécessite alors de réaliser la mesure à des fréquences plus élevées.

Néanmoins, les cycles d'hystérésis sont toujours ouverts et présentent un état de saturation marqué pour des champs électriques appliqués suffisamment intenses. La dissymétrie des cycles d'hystérésis est attribuée à la différence de courbure entre l'électrode interne et l'électrode externe à cause de la géométrie cylindrique du matériau piézoélectrique.

III.3.3.1.iv. Bilan : fibres 2 couches

Le Tableau III.9 reprend les valeurs de polarisation rémanente et de champ coercitif obtenues pour le champ électrique maximal appliqué aux bornes des échantillons.

Tableau III.9. Valeurs des caractéristiques ferroélectriques mesurées à champ électrique équivalent voisin de 3 kV/mm pour les massifs et champ électrique maximal appliqué pour les fibres.

Fibre	E kV/mm	<Pr> µC/cm²	<Ec> kV/mm
n°1	10,00	15,11	2,62
n°2	11,11	16,59	3,18
n°3	17,65	15,73	4,48
Massif 1200/6	3,00	30,94	0,94
Massif 950/2 1200/6	3,00	27,03	1,01

Remarque : bien que les niveaux de polarisation d'un massif fritté à 950/2 1200/6 soient inférieure à un massif fritté à 1200/6, les caractéristiques piézoélectriques sont plus élevées (cf. III.2.5).

La géométrie particulière des fibres (couches minces, forme tubulaire) rend difficile la comparaison des valeurs des grandeurs ferroélectriques avec des échantillons classiques à surfaces planes parallèles. Néanmoins, le comportement global à la polarisation (forme des cycles, saturation) est semblable.

III.3.3.2. Fibres 5 couches frittées 4×950°C/2h – 1200°C/6h

Les figures suivantes (III.28 à III.37) présentent les cycles d'hystérésis et l'évolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur 5 fibres d'une même série.

III.3.3.2.i. Fibre n°1

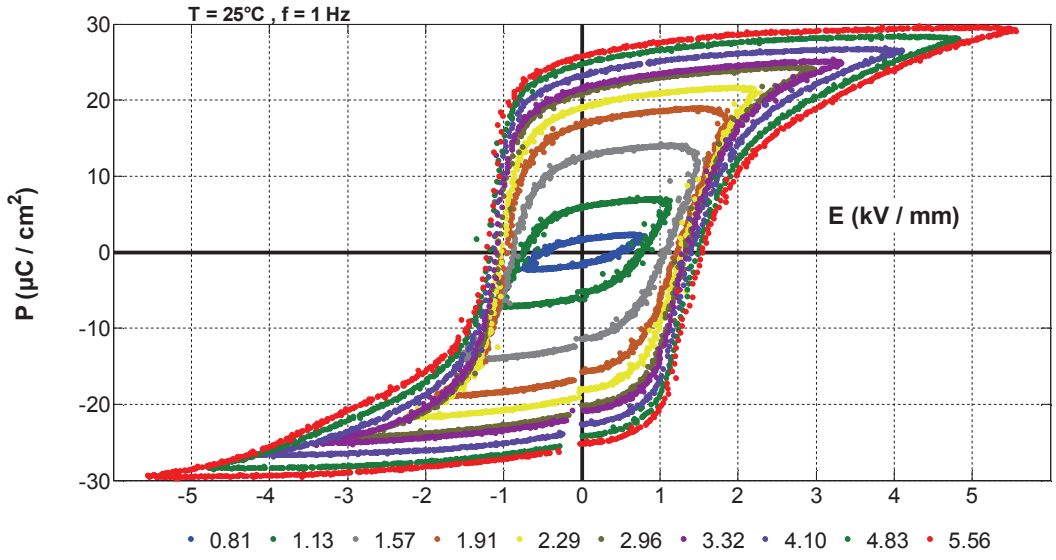


Figure III.28. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F1) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

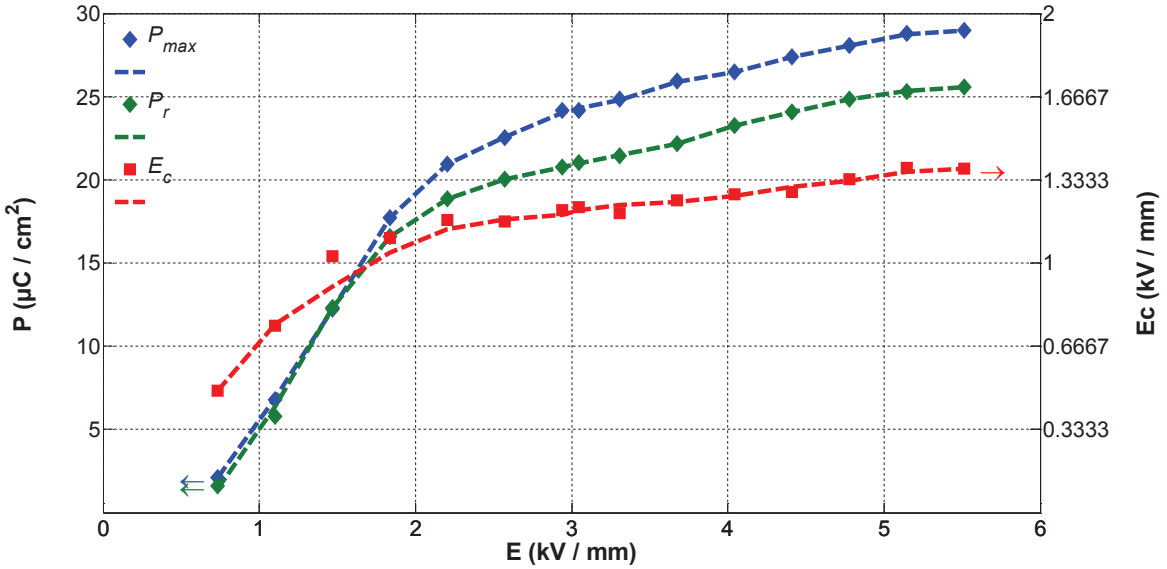


Figure III.29. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F1) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

III.3.3.2.ii. Fibre n°2

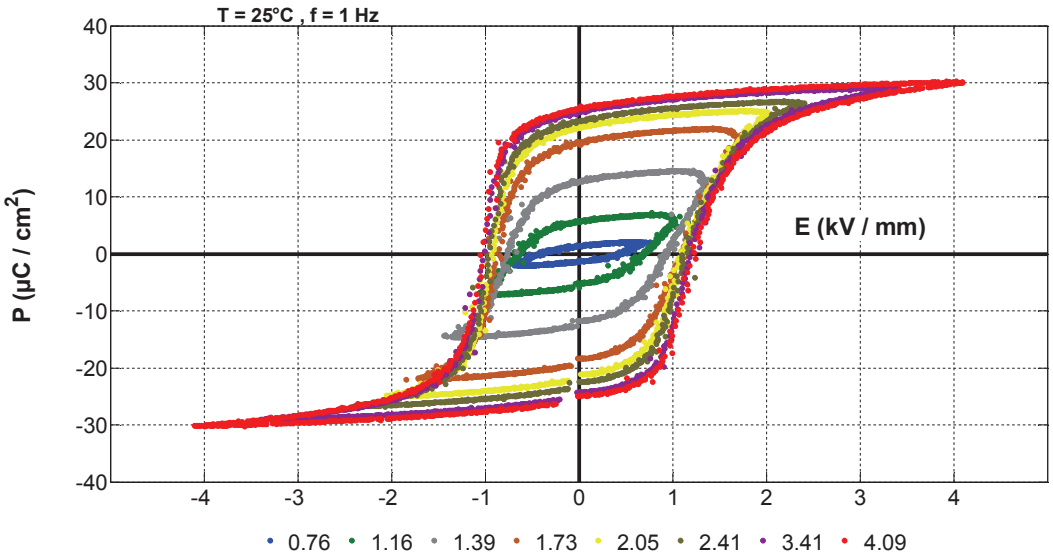


Figure III.30. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F2) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

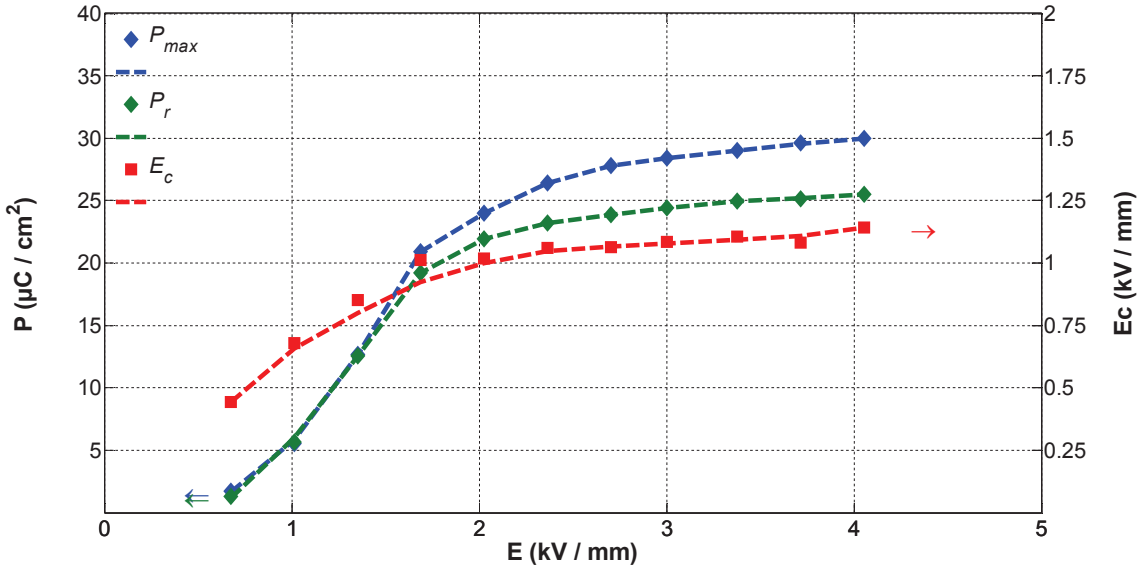


Figure III.31. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F2) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

III.3.3.2.iii. Fibre n°3

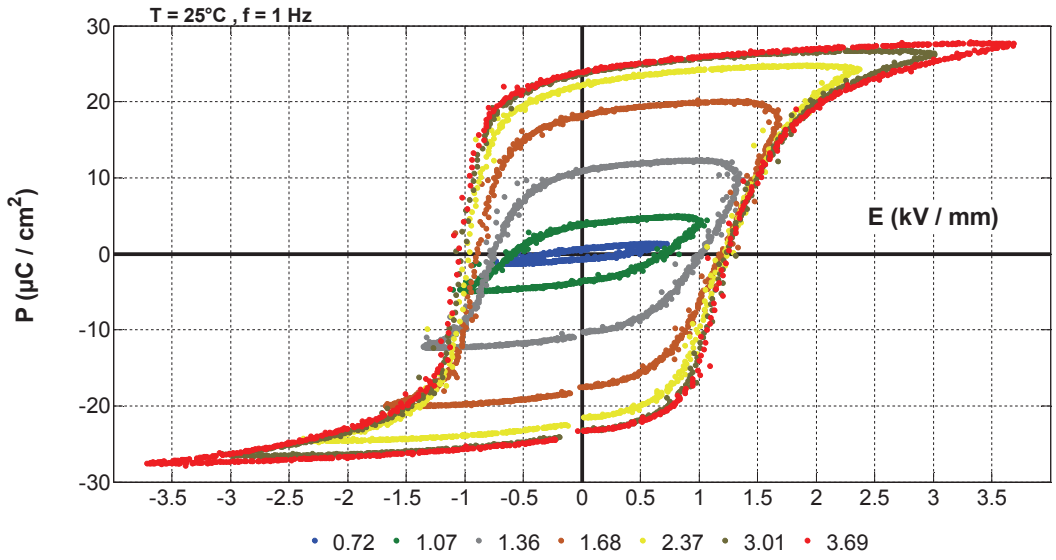


Figure III.32. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F3) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

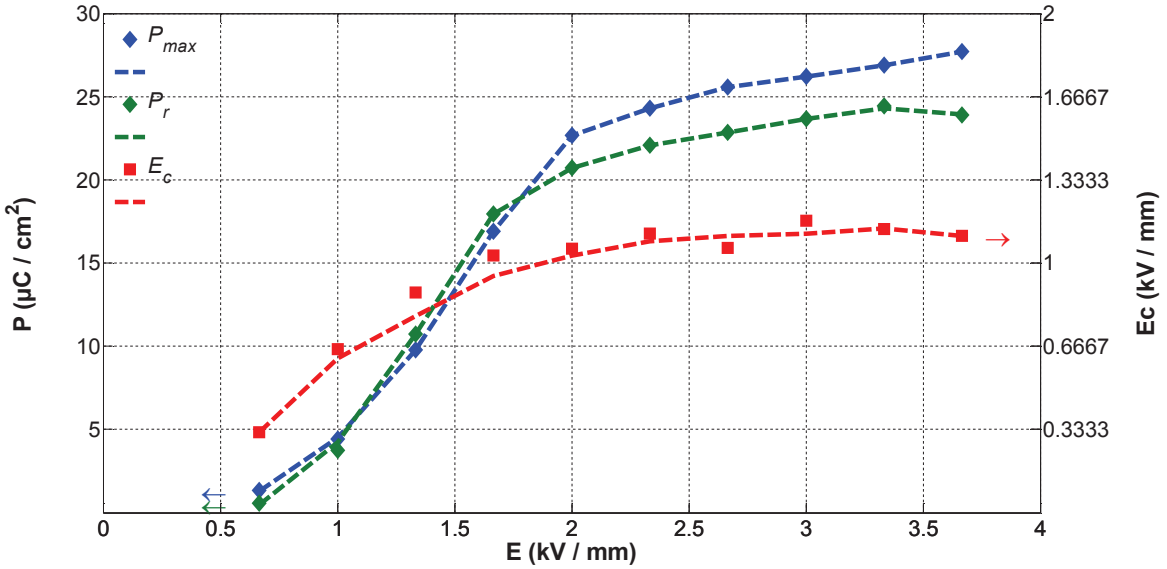


Figure III.33. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F3) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

III.3.3.2.iv. Fibre n°4

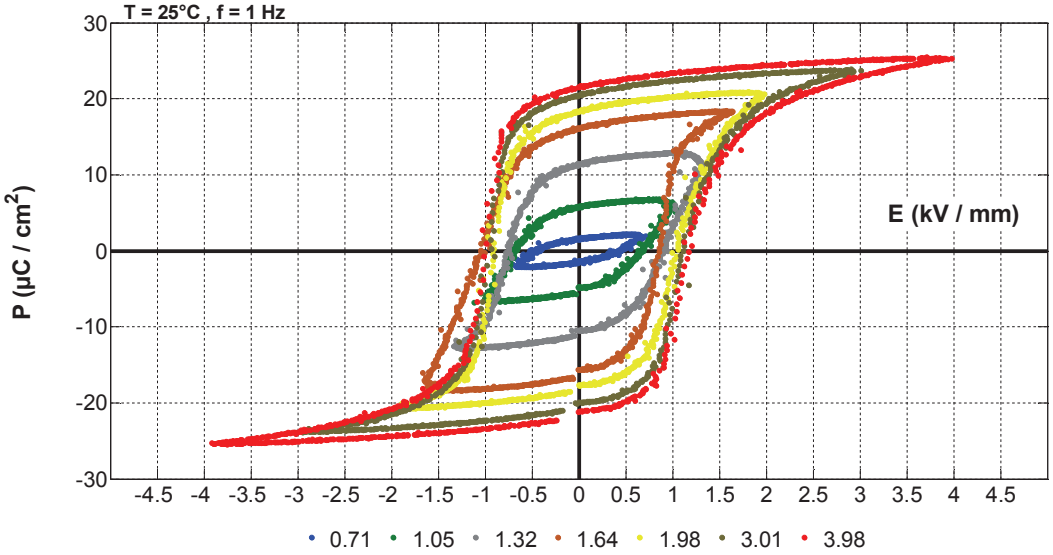


Figure III.34. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F4) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

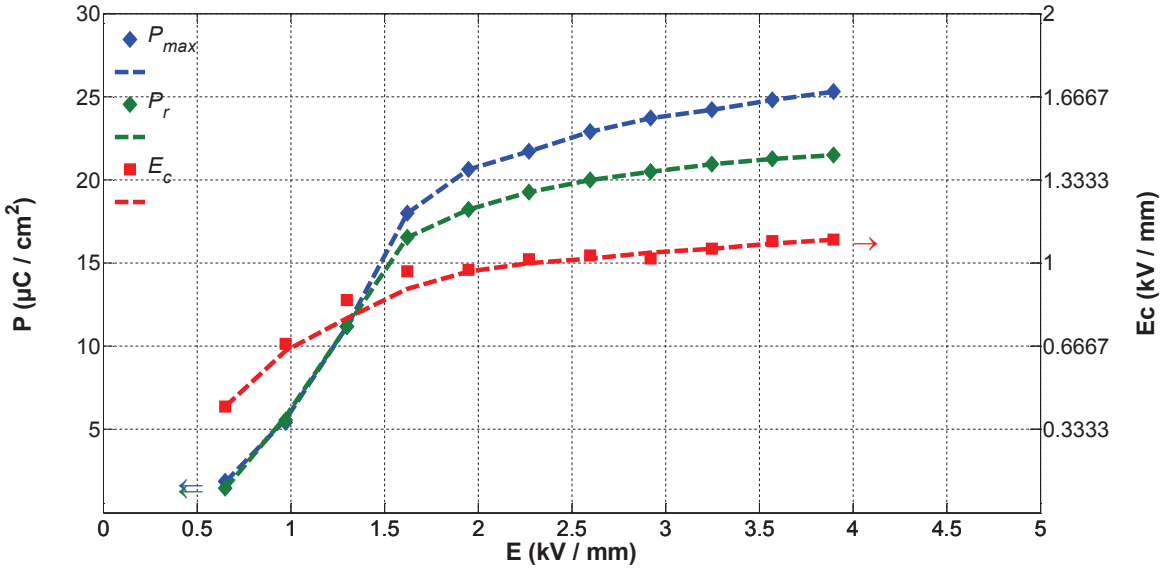


Figure III.35. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F4) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

III.3.3.2.v. Fibre n°5

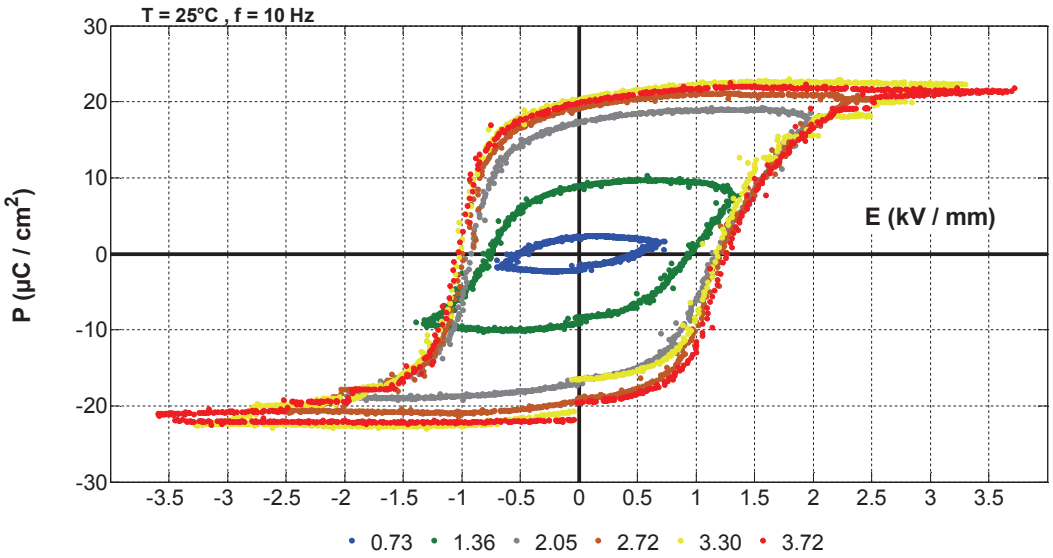


Figure III.36. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-F5) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

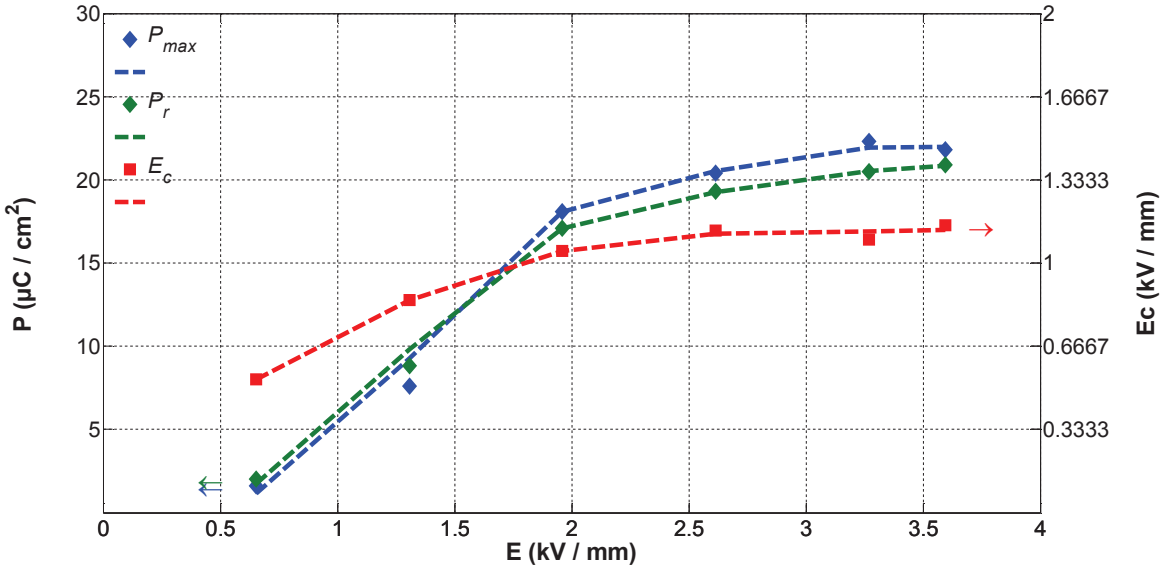


Figure III.37. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-F5) 5 couches frittées à 4×950°C/2h - 1200°C/6h.

Les cycles d'hystérésis mesurés sur des fibres revêtues de 5 couches ont une allure plus proche de celle des cycles d'hystérésis obtenus sur des massifs piézoélectriques : les cycles sont ouverts et symétriques et les valeurs atteintes par la polarisation et les champs électriques appliqués sont du même ordre de grandeur.

Il semble donc que l'augmentation de l'épaisseur, et donc du rapport d'aspect, soit favorable à l'obtention de comportement et de caractéristiques semblables au matériau massif.

III.3.3.2.vi. Bilan : fibres 5 couches

Le Tableau III.10 reprend les valeurs de polarisation rémanente et de champ coercitif obtenues pour le champ électrique appliqué aux bornes des échantillons voisin de 3 kV/mm. Les valeurs obtenues sur les fibres sont comparées à celle des échantillons massifs après un frittage standard (1200°C/6h/5°C.min^{-1}) et un frittage dans les mêmes conditions que les fibres.

Tableau III.10. Valeurs des caractéristiques ferroélectriques mesurées à champ électrique équivalent voisin de 3 kV/mm.

Fibre	E kV/mm	<Pr> µC/cm²	<Ec> kV/mm
n°1	3,04	21,02	1,22
n°2	3,00	24,44	1,08
n°3	3,00	23,69	1,17
n°4	2,92	20,51	1,02
n°5	3,27	20,50	1,09
Massif 1200/6	3,00	30,94	0,94
Massif 4×950/2 1200/6	3,00	33,22	1,00

Les valeurs relevées pour un champ électrique appliqué de 3 kV/mm confirment les observations faites précédemment. Les valeurs de polarisation ont augmenté en passant de 2 à 5 couches et les valeurs de champ coercitif se rapprochent de celle d'un matériau massif.

III.3.4. Conclusion : caractéristiques microstructurales

Les caractérisations par diffraction des rayons X, les microstructures et les cycles d'hystérésis obtenus sur les fibres réalisées par enduction montrent des caractéristiques semblables à celles obtenues sur des massifs piézoélectriques frittés dans les mêmes conditions. Il est donc possible de supposer que les caractéristiques piézoélectriques soient également semblables puisque les structures cristallographiques sont identiques, les microstructures après frittage sont semblables, de même que leur comportement à la polarisation.

III.4. Caractérisations électromécaniques des fibres

La géométrie et les dimensions des fibres réalisées rendent difficile leur caractérisation d'un point de vue piézoélectrique. Deux techniques de caractérisations, la vibrométrie laser et la micro-traction, ont été envisagées pour permettre d'une part, de vérifier le caractère piézoélectrique des fibres et d'autre part, d'obtenir des caractéristiques piézoélectriques intrinsèques sous forme de fibre à cœur métallique.

III.4.1. Vibrométrie laser

III.4.1.1. Fibres seules

Les premières tentatives de caractérisations consistaient à encastrer la fibre au niveau de l'extrémité en platine et à l'alimenter sous tension sinusoïdale pour mesurer le déplacement de l'extrémité libre de la fibre à l'aide d'un vibromètre laser.

D'après la géométrie de la fibre, on devrait s'attendre à observer une déformation longitudinale de la fibre (en quasi-statique), comme le confirme la modélisation. Néanmoins, les particularités des fibres réalisées (encastrement, variations d'épaisseurs, électrode externe ne recouvrant que partiellement le dépôt, fibres non rectilignes *et cetera*) ne permettent pas de mesurer un déplacement longitudinal. Le laser a alors été déplacé pour mesurer les déplacements dans la direction transverse, comme dans la configuration d'une poutre encastrée. Dans cette direction, qui correspondrait à une flexion pour une poutre, des déplacements sont effectivement mesurés.

Il est ainsi possible de mesurer un déplacement dans la direction transverse, qui devrait être dû à la variation du diamètre suite à l'effet 33. Pour vérifier cela, la mesure est répétée en déplaçant le laser de 90°. Néanmoins, il est peu probable de détecter cette variation de diamètre si les déplacements les plus importants *i.e.* le déplacement longitudinal n'est pas mesurable. Il s'agit donc plus probablement d'une déformation multiaxiale due aux différents écarts au cas idéal cités précédemment.

La Figure III.38 présente ces différentes configurations.

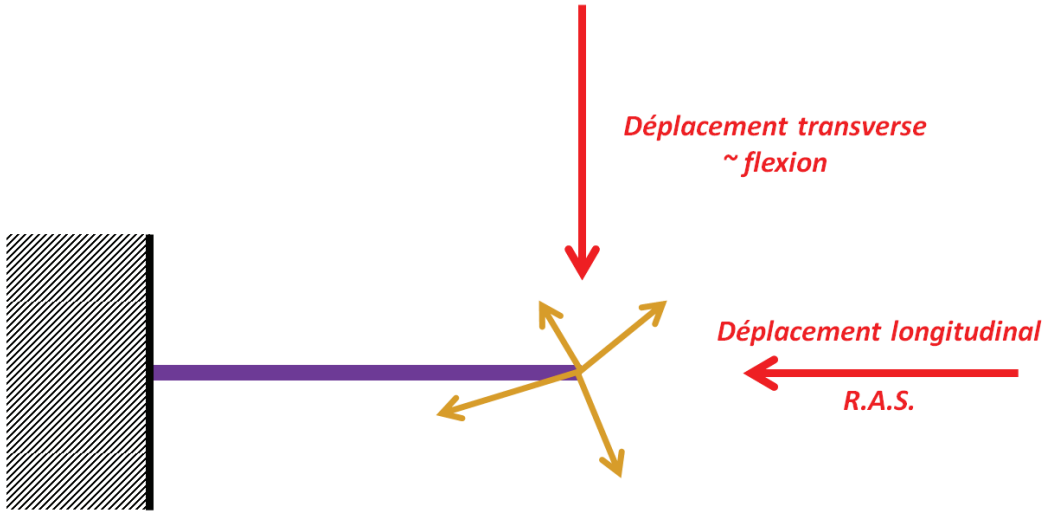


Figure III.38. Schéma de principe de caractérisation par vibrométrie laser dans la configuration la plus simple.

La Figure III.39 présente les déplacements mesurés en bout de fibre dans la direction transverse (2 mesures à 90°) pour une fibre avec un fil de platine de 400 µm de diamètre et un dépôt céramique de 125 µm (3 couches successives, frittage) sous une tension sinusoïdale d'environ 100 V d'amplitude.

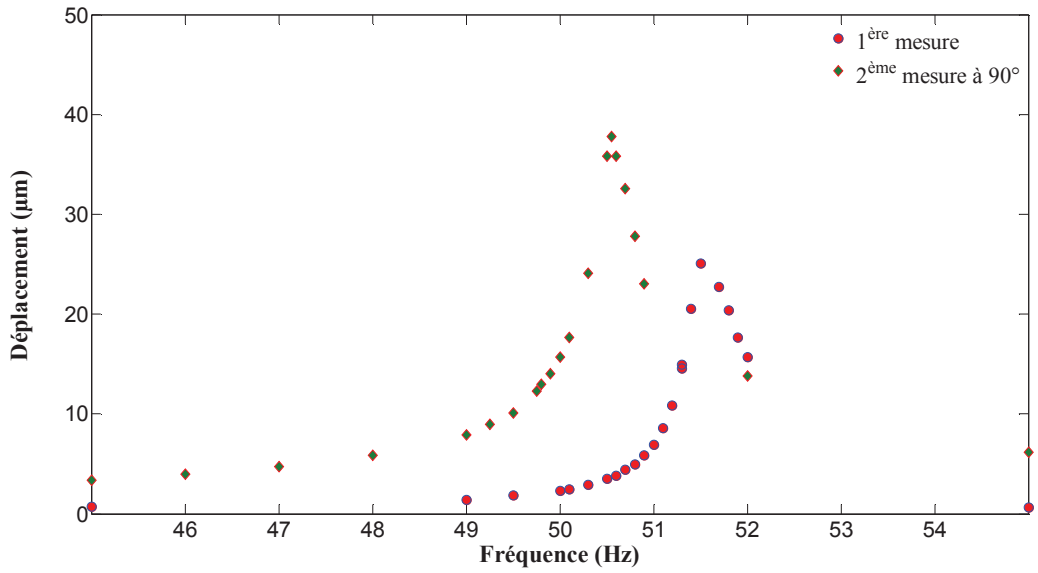


Figure III.39. Evolution du déplacement transverse dans 2 positions de mesures proches de la résonance.

Les deux mesures font état d'une résonance proche de 51 Hz avec des déplacements maximaux variant entre 25 et 40 µm selon le sens de la mesure. Les valeurs de déplacements suggèrent qu'il s'agisse bien d'une déformation multiaxiale.

L'hypothèse posée est la suivante : la fibre se déforme bien longitudinalement. Néanmoins, les déviations rencontrées par rapport à une fibre parfaitement rectiligne conduisent à des déformations hors plan. La Figure III.40 illustre cette hypothèse.

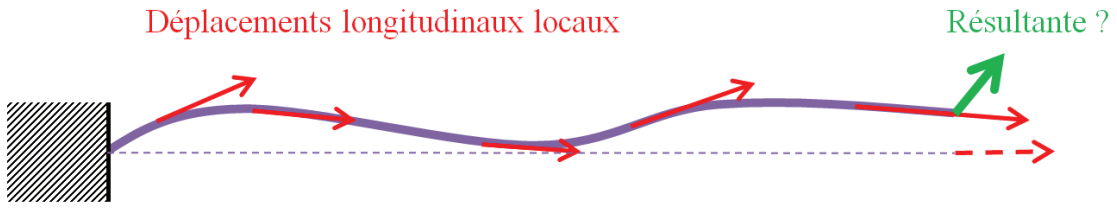


Figure III.40. Déplacement global non longitudinal dû aux écarts par rapport à une fibre parfaitement rectiligne.

L'idée est alors venue de contraindre la fibre pour garder les composantes des différents déplacements dans la direction de la fibre. La fibre est alors entourée par deux fines plaques en mousse. Ce système est posé sur un support avant qu'un bloc d'acier soit placé sur la partie supérieure du système. Un carré de feuille de cuivre autocollante est collé au bout de la fibre pour présenter au faisceau laser une section plane de plus grandes dimensions car il est difficile de focaliser le faisceau laser sur une dimension si petite et arrondie.

La Figure III.41 présente le nouveau système de caractérisation.

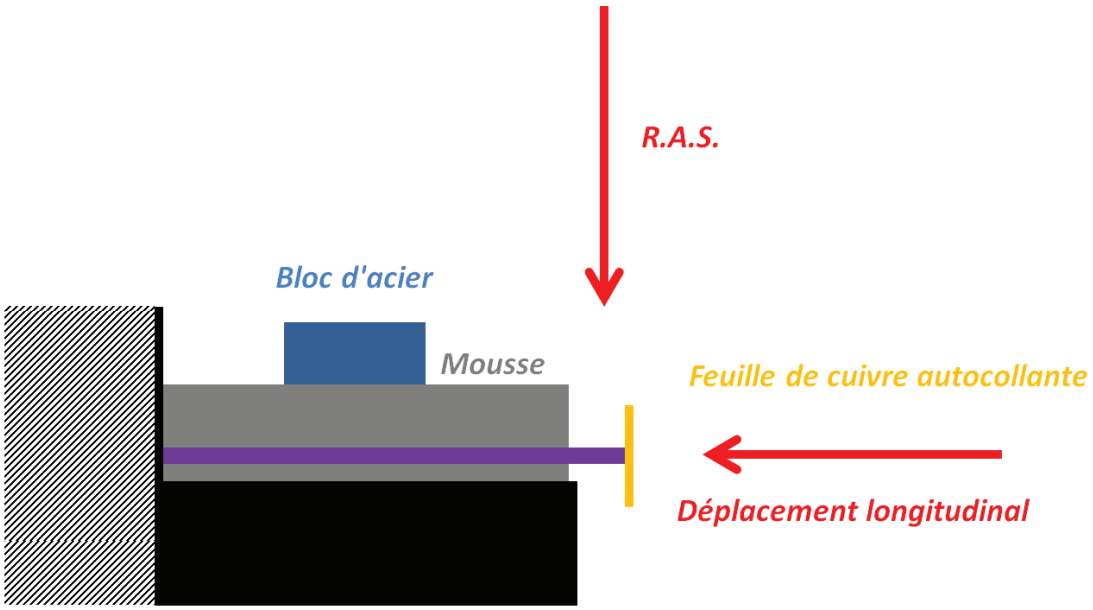


Figure III.41. Schéma de principe de caractérisation du déplacement longitudinal par vibrométrie laser.

Avec ce nouveau système, il est possible d'éliminer les composantes du déplacement en dehors de la direction de la fibre et donc, de caractériser la déformation longitudinale.

L'expérience est réalisée sur une fibre avec un fil de platine de 500 µm et un dépôt céramique de 150 µm (5 couches, consolidation/frittage). Le premier mode de résonance correspondant *a priori* à une vibration longitudinale apparait à une fréquence beaucoup plus élevée : 2,1 kHz. Pour tenter d'obtenir une caractéristique piézoélectrique, l'expérience est poursuivie en répétant la mesure à basse fréquence (loin de la résonance) en faisant varier la tension aux bornes de la fibre.

La Figure III.42 présente l'évolution de la déformation longitudinale en fonction du champ électrique appliqué, issue des relevés de déplacements en fonction de la tension appliquée.

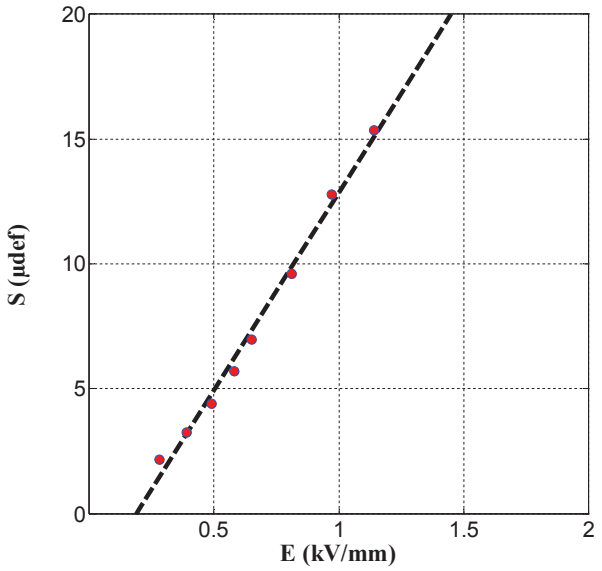


Figure III.42. Evolution de la déformation longitudinale avec le champ électrique appliqué (MCPF α = 0,38).

La déformation augmente de façon relativement linéaire avec le champ électrique appliqué aux bornes de la fibre. En considérant l'équation d'état piézoélectrique (équation I.1) et en négligeant le terme lié aux contraintes, la pente de la courbe S(E) correspond au coefficient piézoélectrique d_{31}. Dans le cas de la Figure III.42, il vient :

$$S_{31} = -d_{31} \times E_3$$
$$d_{31} = -16 \times 10^{-12} \text{ m/V}$$

La valeur du coefficient piézoélectrique est très faible en comparaison de la valeur obtenue sur un massif fritté dans les mêmes conditions ($|d_{31}| > 200 \times 10^{-12}$ m/V). Il est probable que les contraintes exercées pour supprimer les déformations "parasites" réduisent la déformation longitudinale de la fibre.

Par ailleurs, la relation du premier ordre liant la déformation au champ électrique est rapidement mise en défaut pour des champs électriques avoisinant 1 kV/mm. La Figure III.43 présente un ajustement quadratique avec un polynôme de degré 2, ce qui permet d'améliorer la corrélation entre la déformation mesurée et le champ électrique appliqué.

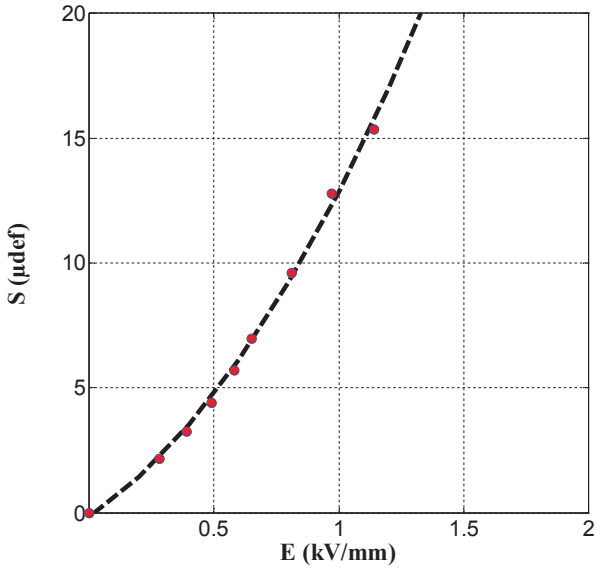


Figure III.43. Evolution de la déformation longitudinale avec le champ électrique appliqué (MCPF α = 0,38) et ajustement quadratique (degré 2).

La suppression des composantes multiaxiales de la déformation en bout de fibre permet effectivement de mesurer une déformation longitudinale. Néanmoins, cette méthode conduit à une déformation résultante réduite ce qui ne permet pas de remonter au coefficient piézoélectrique de la fibre. Il faudrait donc pouvoir réaliser, dans les conditions opératoires actuelles, des fibres parfaitement rectilignes. Le principal inconvénient rencontré jusqu'à présent est la réception du fil métallique en bobine. Les fils sont donc redressés à la main avant la procédure d'enduction. Il serait intéressant de trouver un fournisseur capable de livrer des fils droits. Ceci a été possible pour les fils d'alliages mais non pour les fils de platine. De plus, les opérations de manipulations des fibres ont également tendance à déformer les fibres, d'autant plus que le fil est fin, long et peu rigide comme le platine.

D'autres tentatives de caractérisation sont alors envisagées pour obtenir les caractéristiques des fibres élaborées par enduction.

III.4.1.2. Patchs multifibres

III.4.1.2.i. Mise en forme des patchs

Les patchs sont réalisés avec des fibres venant d'une même série et ayant une épaisseur voisine pour espérer qu'elles aient toutes le même comportement. Les fibres sont d'abord métallisées sur une partie de la longueur du dépôt avec de la laque d'argent appliquée au pinceau. Les fibres sont ensuite alignées sur une feuille de Kapton®. Quelques points de colles sont réalisés pour maintenir les fibres en place. Des contacts électriques sont ensuite réalisés pour amener l'une des bornes du générateur sur le dépôt, la seconde étant directement connectée sur les extrémités en platine. Une seconde feuille de Kapton® est alors déposée sur la partie supérieure des fibres et de nouveaux points de colle sont déposés pour maintenir l'ensemble.

Les figures III.44 et III.45 présentent des photographies d'un patch pendant sa préparation et une fois terminé.

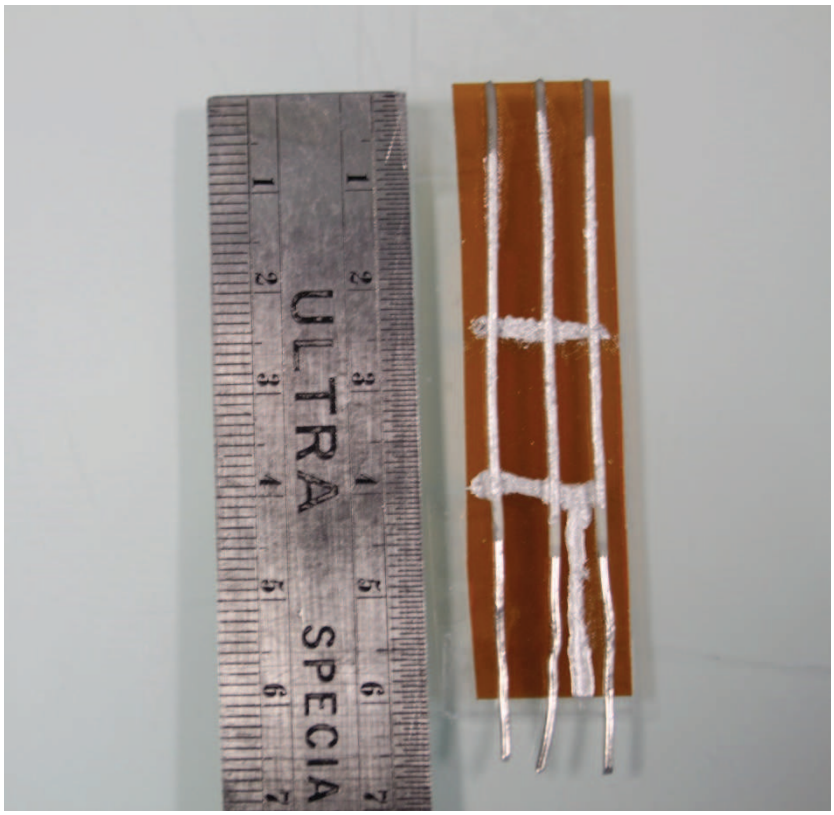


Figure III.44. Préparation d'un patch sur la première feuille de Kapton®.

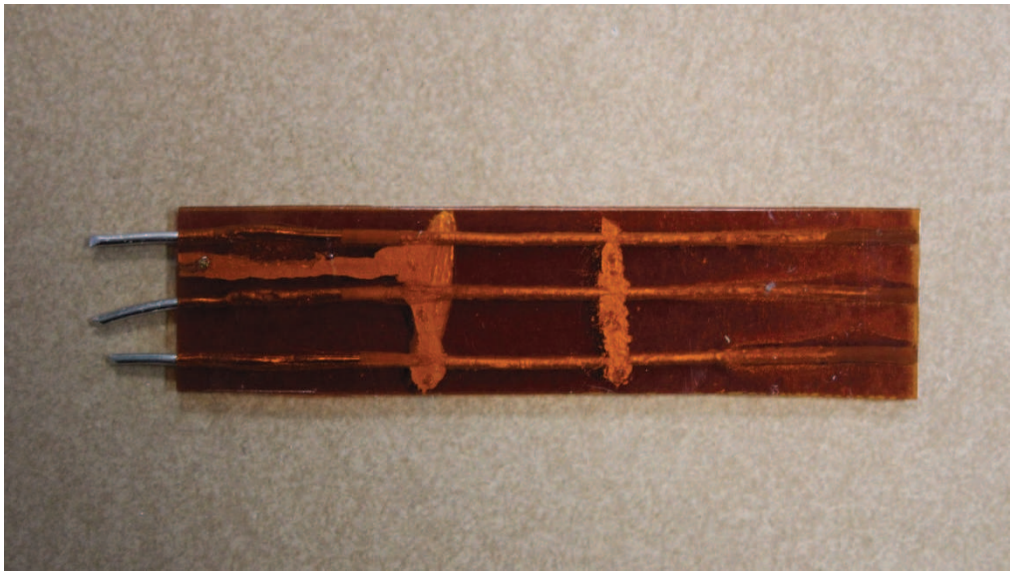


Figure III.45. Photographie d'un patch avec 3 fibres terminé.

De la même manière que pour la réalisation des fibres, malgré toutes les précautions prises pendant la réalisation du patch, il est difficile d'obtenir l'alignement des fibres ainsi que le même espacement entre chacune d'elles.

III.4.1.2.ii. Caractérisation en actionnement

Les fibres utilisées pour réaliser ce patch sont élaborées à partir d'un fil de platine de 1 mm de diamètre revêtu de 2 couches de poudre commerciale. Le rapport d'aspect des fibres utilisées dans ce cas est de 0,05.

L'extrémité du patch, de laquelle les fils de platine non revêtus dépassent, est encastrée. La mesure s'effectue dans un premier temps en mode transverse ("flexion") à l'extrémité du patch, soit pour une longueur libre d'environ 50 mm. En effet, avec le faible rapport d'aspect de ces fibres, les déplacements longitudinaux admis par la modélisation sont beaucoup trop faibles pour être mesurés, sans compter les écarts expérimentaux (encastrement, variation entre les fibres…). La Figure III.46 présente le schéma de principe de la mesure.

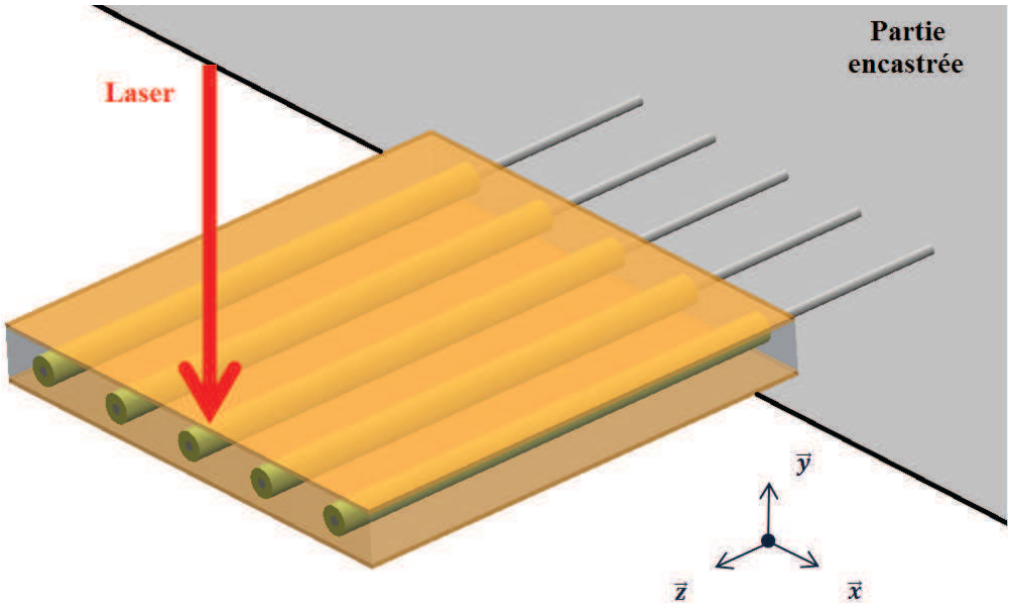


Figure III.46. Schéma de principe de la mesure de déplacement par vibrométrie laser sur un patch encastré-libre.

La Figure III.47 présente l'évolution du déplacement à l'extrémité libre du patch (U_y) en fonction de la fréquence, pour une tension sinusoïdale de 20 volts d'amplitude.

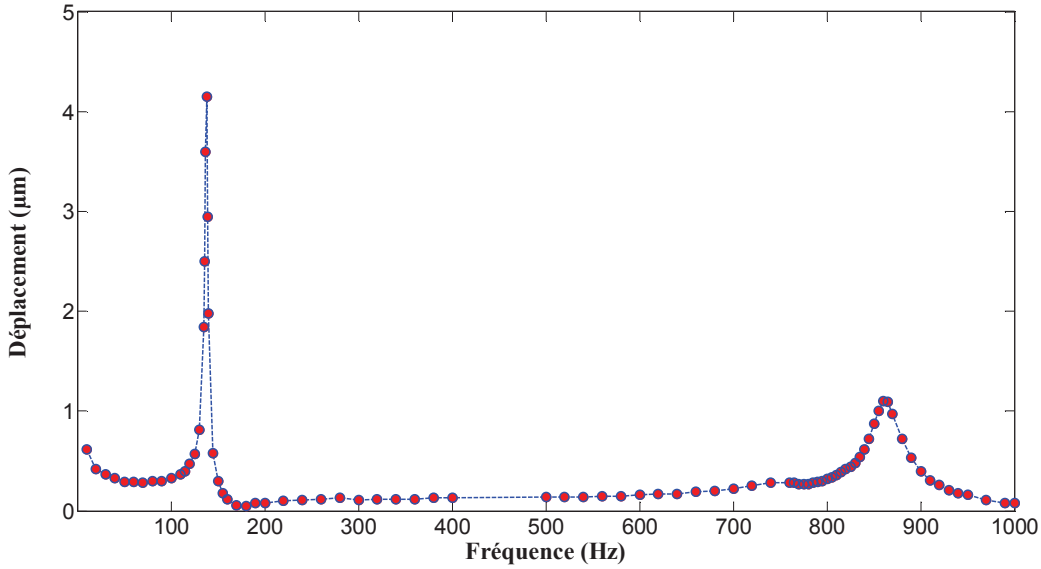


Figure III.47. Evolution du déplacement transverse en fonction de la fréquence pour un patch composé de 3 fibres alignées (α = 0,05).

Le premier mode de résonance, s'apparentant à de la flexion, apparait à une fréquence d'environ 140 Hz. Le déplacement maximal correspondant, équivalent à la flèche du patch, est légèrement supérieur à 4 µm.

Les déformations multiaxiales des fibres sont contraintes par la géométrie du patch, ce qui conduit à observer une déformée équivalente à de la flexion.

De la même manière que précédemment, le déplacement est mesuré en faisant varier l'amplitude de la tension à basse fréquence. La Figure III.48 présente l'évolution du déplacement mesuré à l'extrémité du patch en fonction de l'amplitude de la tension sinusoïdale appliquée aux bornes des fibres à une fréquence de 10 Hz.

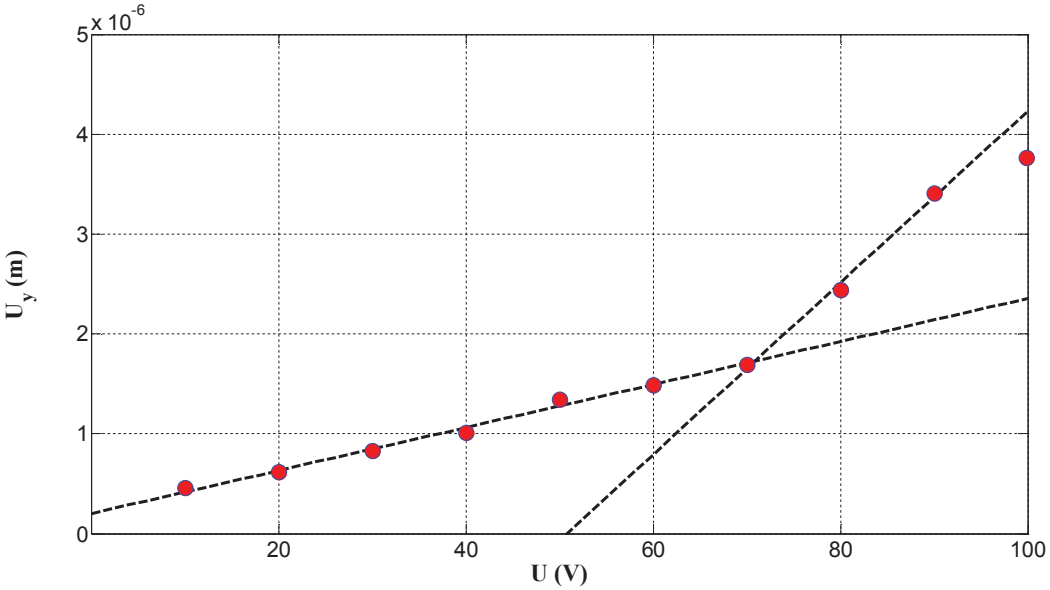


Figure III.48. Evolution du déplacement U_y (flèche) du patch composé de 3 fibres (α = 0,05) en fonction de la tension appliquée à une fréquence de 10 Hz.

Le déplacement augmente bien avec la tension appliquée. Le déplacement maximal pour la tension maximale appliquée (U=100 V ⇔ E≈3,65 kV/mm) atteint environ 4 µm.

Le déplacement augmente avec la tension appliquée de façon linéaire jusqu'à environ 70V (E≈2,56 kV/mm) puis l'évolution est de nouveau linéaire mais avec un changement de pente important. Dans la première zone, la pente est d'environ 21 nm/V alors que dans la seconde zone, la pente est d'environ 86 nm/V. Ces valeurs sont bien supérieures à celle d'un coefficient piézoélectrique standard sur un échantillon massif (0,1 ~ 0,5 nm/V).

Lorsque l'on considère la flèche d'une poutre encastrée-libre purement piézoélectrique, la pente de la courbe déplacement-tension est le produit du coefficient piézoélectrique et d'un terme dépendant de la géométrie de la poutre. Ceci pourrait expliquer la valeur de la pente mesurée dans ce cas de figure. Le problème majeur vient du fait que le patch ne devrait pas se déformer en flexion en quasi-statique : ce sont les dissymétries du patch (fibres non rectilignes, espacement, alignement, encastrement…) qui provoquent cette déformée et il est par conséquent difficile, encore une fois, de remonter à la caractéristique intrinsèque des fibres par cette méthode. Par ailleurs, le changement de pente observé peut être attribué aux modifications des conditions expérimentales à partir d'une certaine valeur de la tension qui peut par exemple, modifier les conditions de collage, provoquer la rupture dans des zones partielles des fibres… de même, par analogie à une poutre soumise à une déformée de flexion, le patch est soumis à une succession de traction/compression. Les contraintes augmentant avec la tension appliquée, il est possible qu'une instabilité de flambage apparaisse à partir d'un certain seuil, ce qui peut également expliquer le changement de pente brutal.

III.4.1.2.iii. Caractérisation en fonctionnement capteur

Après avoir vérifié le fonctionnement en tant qu'actionneur, le patch est utilisé pour vérifier le comportement en tant que capteur.

Pour ce faire, la partie encastrée du patch est cette fois reliée à un générateur de vibrations. Le vibromètre laser mesure le déplacement à l'extrémité libre du patch tandis que la tension est mesurée aux bornes des fibres. La Figure III.49 illustre le principe de cette mesure.

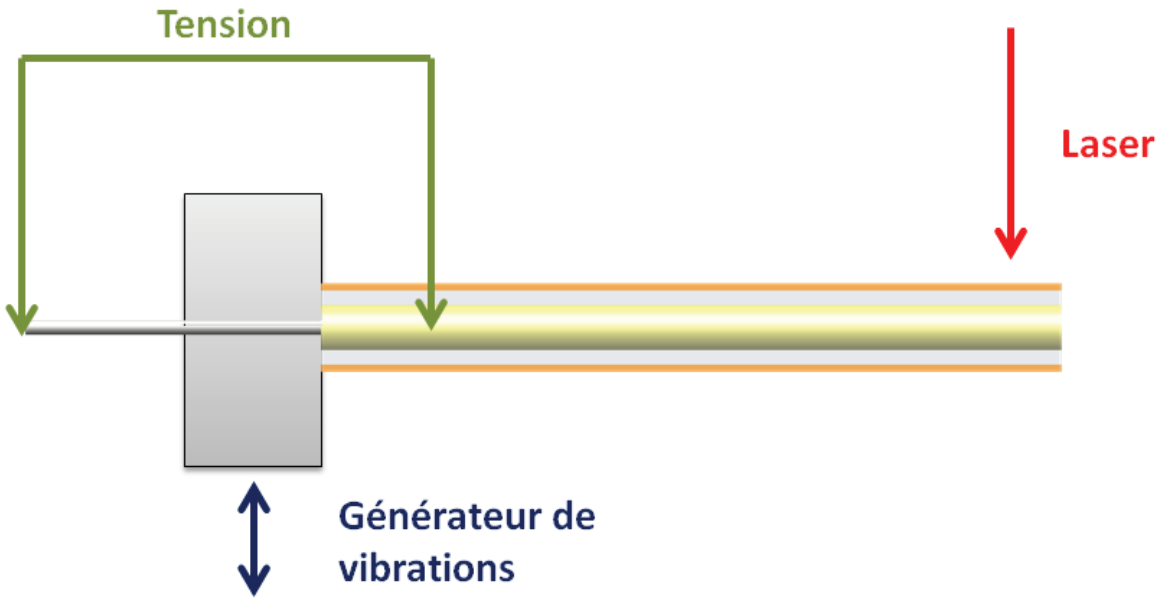


Figure III.49. Schéma de principe de la caractérisation du patch en fonctionnement capteur.

La Figure III.50 présente une photographie du dispositif expérimental mis en œuvre.

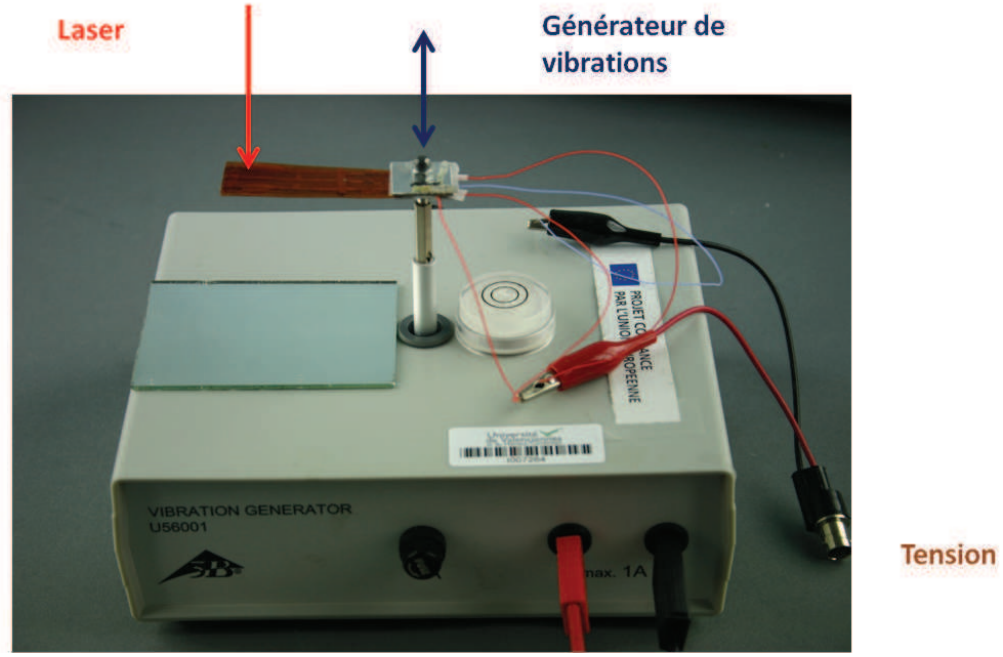


Figure III.50. Photographie du montage expérimental pour la caractérisation en fonctionnement capteur.

Dans un premier temps, sous une excitation de faible amplitude, la fréquence des vibrations est modifiée pour déterminer la résonance du patch pour laquelle le déplacement mesuré par le laser est maximal.

Dans cette configuration, la fréquence de résonance est de 108 hertz.

Dans un second temps, à cette fréquence, la tension d'entrée et donc l'amplitude de l'excitation est augmentée de manière à observer la réponse des fibres. La tension est mesurée une première fois aux bornes de chaque fibre puis une seconde fois aux bornes de toutes les fibres qui sont alors en parallèles.

La Figure III.51 présente l'évolution de la tension mesurée aux bornes des trois fibres du patch en fonction du déplacement mesuré à l'extrémité libre du patch.

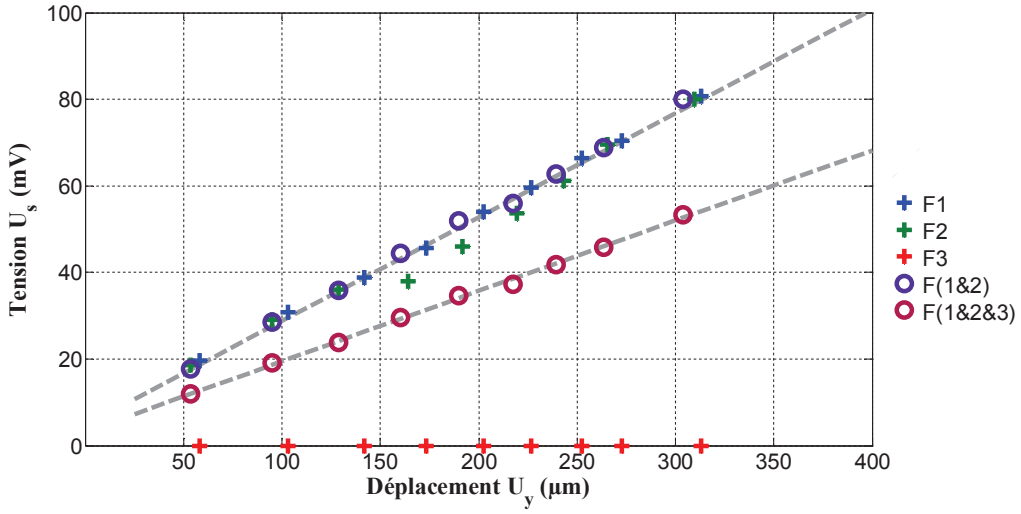


Figure III.51. Evolution de la tension mesurée aux bornes des fibres en fonction de l'amplitude du déplacement de l'extrémité libre du patch.

La tension aux bornes des fibres individuelles (marqueur ✚) est sensiblement la même sur les fibres n°1 et 2 alors qu'elle est nulle aux bornes de la 3ème fibre. L'inactivité de la fibre n°3 peut être due à ses connectivités ou à son endommagement lors de sa manipulation.

En mesurant la tension aux bornes de groupe de fibres (marqueur ○), on constate que la tension aux bornes des fibres actives est la même que celle des fibres individuelles, alors que la tension aux bornes de toutes les fibres dont l'une est inactive est réduite d'un facteur 1/3 environ.

La tension aux bornes des fibres actives est bien proportionnelle à l'amplitude de la déformation imposée. L'utilisation en tant que capteur est donc possible.

III.4.2. Micro-traction

III.4.2.1. Principe

Les machines de micro-traction fonctionnent selon le même principe qu'une machine de traction "classique" (type Instron®), illustré sur la Figure III.52.

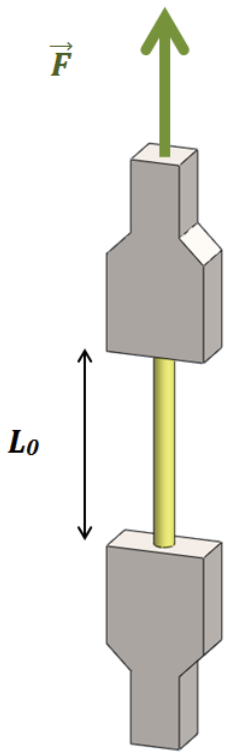


Figure III.52. Principe de fonctionnement d'une machine de traction.

Les machines de micro-traction utilisent des capteurs de déplacements plus sensibles et des cellules de chargement plus faibles. Le but n'est donc pas ici de les utiliser dans le cadre de leur utilisation standard mais plutôt en tant que capteur.

En effet, l'objectif imaginé à l'aide de ce type de machine est dans un premier temps de pouvoir tendre la fibre à l'aide d'une force minimale, juste suffisante pour obtenir l'alignement de la fibre. Dans un second temps, la fibre peut être activée en appliquant un champ électrique dans la paroi piézoélectrique pour mesurer les variations de force et/ou de déplacement résultantes. En considérant que la force nécessaire pour obtenir l'alignement de la fibre ne contraigne pas son déplacement, l'évolution du déplacement en fonction de la tension appliquée pourrait permettre d'obtenir le coefficient piézoélectrique de la fibre.

Il est par ailleurs possible d'aller plus loin et d'obtenir les caractéristiques de fonctionnement de la fibre en traçant la courbe force-déplacement à l'aide de deux points :

- le déplacement libre de la fibre, en utilisant l'expérience ci-dessus ;
- appliquer une force sur la fibre pour obtenir un déplacement puis appliquer une tension qui provoque le retour à l'état initial de la fibre.

La Figure III.53 illustre une courbe de fonctionnement réalisable à partir de la mesure de ces deux points.

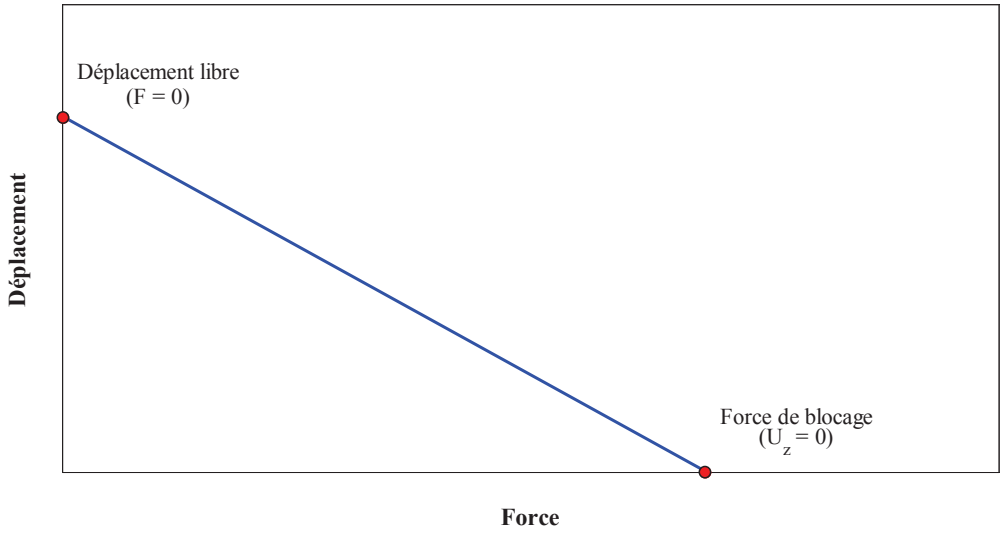


Figure III.53. Courbe de fonctionnement d'une MCPF obtenue à l'aide d'une machine de micro-traction.

Ne disposant pas de matériel adéquat pour la réalisation de ces essais, des collaborations ont été entreprises avec le laboratoire UMET de l'Université Sciences et Technologies de Lille et le département Génie Civil et Environnemental de l'école des Mines de Douai.

III.4.2.2. Equipements

L'UMET dispose d'une machine *RSA 3* de *TA Instruments* asservie en déformation avec une cellule de chargement de quelques newtons et une sensibilité en déplacement de 0,1 µm. La Figure III.54 présente une photographie du dispositif. Une première gamme d'essais a été réalisée sur cette machine.

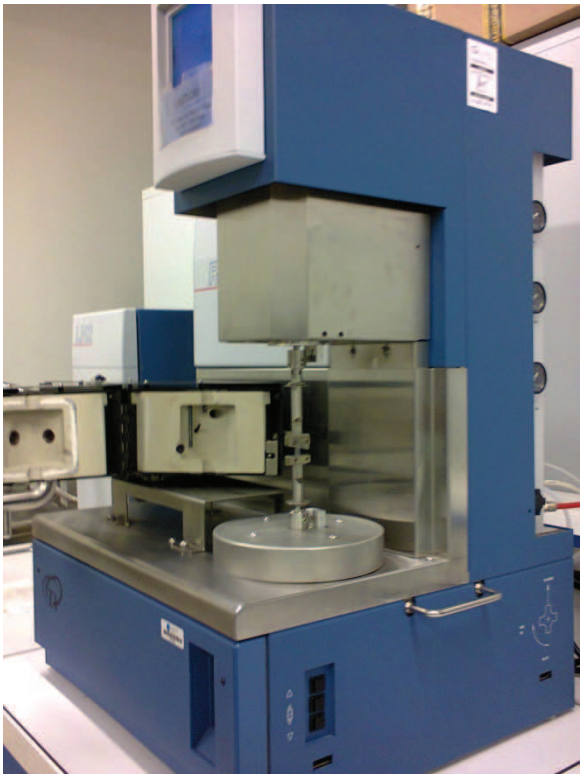


Figure III.54. Dispositif de micro-traction de l'UMET.

L'EDM dispose d'une machine de *Kaamrath & Weiss GmbH* réalisée selon les besoins de l'EDM. Dans la configuration testée, la machine est asservie en force avec une cellule de chargement de 100 N. La Figure III.55 présente des photographies du dispositif. De nouveaux essais ont été entrepris pour profiter de la mesure de déplacement avec une sensibilité de 0,5 µm.

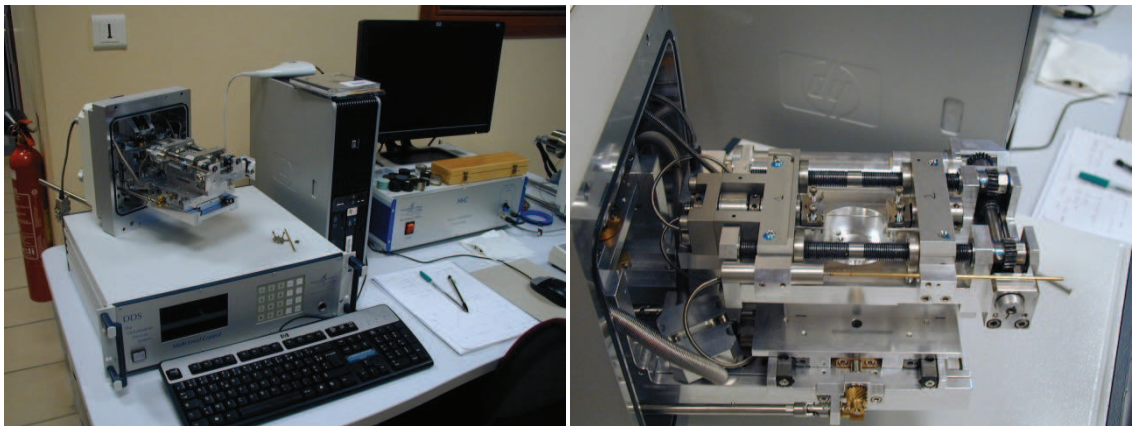


Figure III.55. Dispositif de micro-traction de l'école des Mines.

III.4.2.3. 1ère gamme d'essais (UMET)

Tous les essais ont été effectués sur les fibres présentant le meilleur rapport d'aspect (α ~ 0,4 ; L ~ 6 cm) pour avoir, dans les conditions actuelles, les meilleures capacités de déformations et d'efforts afin d'obtenir des grandeurs mesurables.

L'utilisation de tensions continues élevées (>100 V) pour l'activation des fibres conduit à isoler les mors du système pour éviter la détérioration des nombreux appareils électroniques qui composent le système. La Figure III.56 représente le schéma du montage d'une fibre sur la machine de micro-traction. Le système est orienté verticalement.

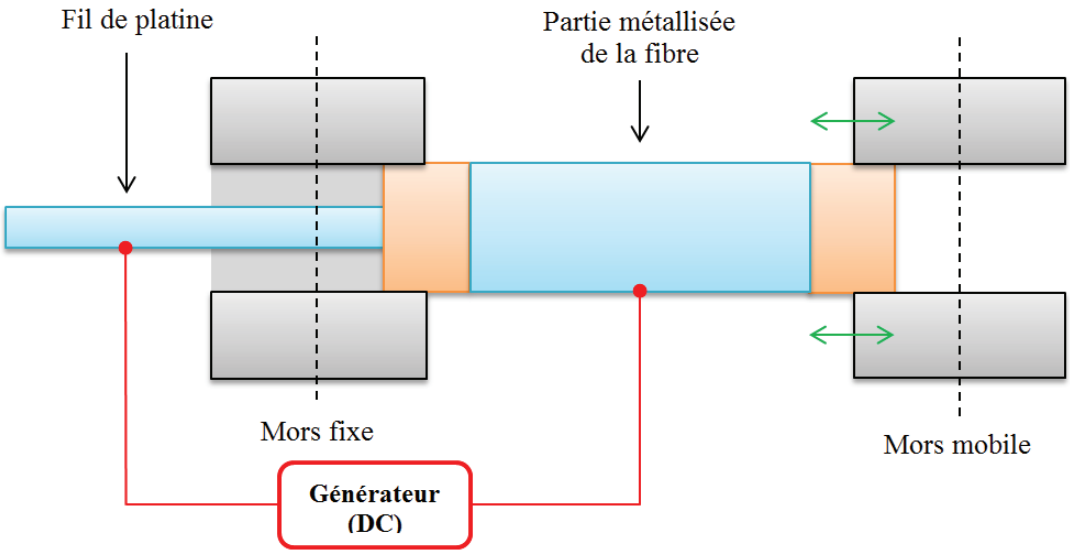


Figure III.56. Schéma de mise en place des fibres dans le système de micro-traction.

III.4.2.3.i. Essai préliminaire

Une première fibre est testée selon un essai de traction classique contrainte-déformation pour déterminer dans quelle mesure il est possible de déformer la fibre sans glissement dans les mors ni rupture de la fibre. La vitesse de déformation a été arbitrairement fixée à 0,5 mm/s. La Figure III.57 présente le courbe contrainte-déformation jusque 1% de déformation. Les niveaux de contraintes ne sont pas indiqués suite à l'impossibilité de retrouver les données d'entrées (géométrie et dimensions des échantillons) normalement enregistrées par le programme d'acquisition.

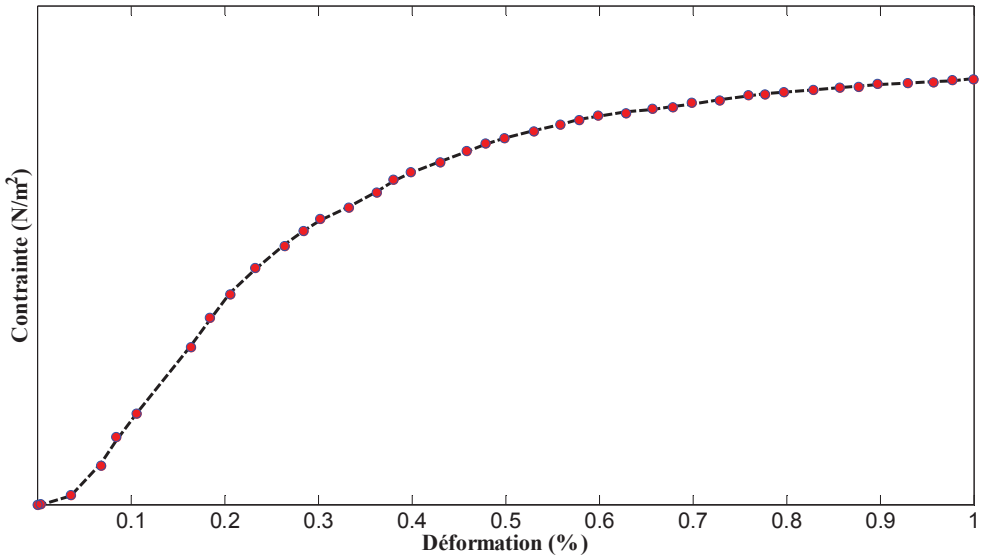


Figure III.57. Essai de traction contrainte-déformation sur une fibre 5 couches (α = 0,38).

Jusque 0,2% de déformation, la courbe reste dans le domaine élastique. Ensuite, la courbe commence à dévier du domaine linéaire. Il est peu probable d'attribuer cette déviation à un domaine plastique mais plutôt à la fissuration et à l'écaillage du dépôt céramique. En effet, à l'état recuit, la limite d'élasticité du platine est de 70 MPa et l'allongement à rupture est de 40 %.

Ces constations sont cohérentes avec celles réalisées par Sato *et al.* sur une machine de *pull-out* [SATO 2005a]. En testant 5 MCPF (âme en platine, α ~ 0,75), l'élongation à rupture est de l'ordre de 0,1 à 0,2 % pour des modules élastiques de 30 à 50 GPa. D'après les auteurs, la dispersion des résultats est attribuée aux variations de diamètres entre les différentes fibres et à leurs différentes ondulations respectives.

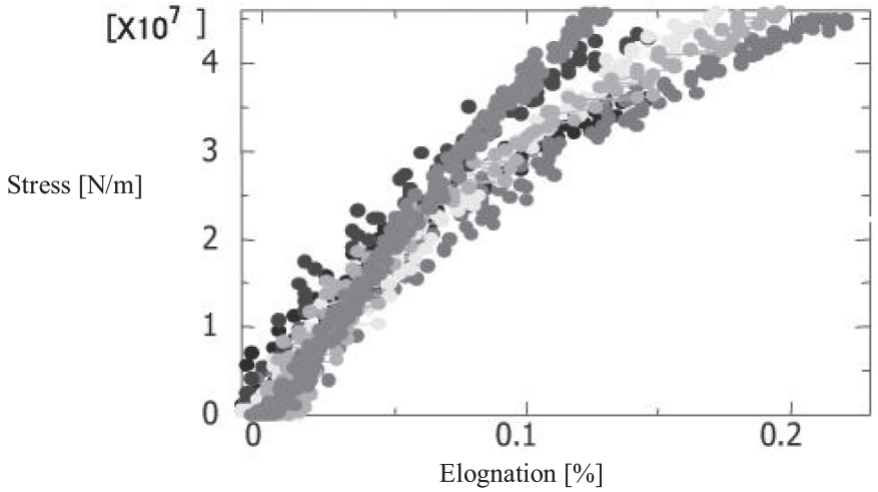


Figure III.58. Essais de traction sur 5 MCPF avec une machine de pull-out [SATO 2005a].

En traction, si l'on suppose que la fissuration a lieu radialement et potentiellement jusqu'à la décohésion d'un tronçon du dépôt, il est possible de garder la fonctionnalité de la fibre dès lors que l'électrode reste continue sur les différentes parties actives. L'utilisation de matrices conductrices (CFRP) permet d'assurer la continuité de l'électrode externe.

III.4.2.3.ii. Caractérisation de la déformation libre

Une nouvelle fibre est alors mise en place pour tenter de caractériser la fibre en tant qu'actionneur. Il est à noter que la déformation initiale à imposer pour obtenir l'alignement de la fibre est différente de celle de la première fibre étant donné que les fibres ne sont pas déformées de la même manière lors de leur manipulation.

L'essai consiste à étudier les variations d'efforts à déformation constante. La déformation appliquée pour cet essai est la valeur minimale de l'appareil, soit 10^{-5} %. La déformation est donc maintenue et le système suit les variations de force dans le temps. La fibre est alors alimentée sous 100, 200 et 300 volts pendant environ 30 secondes. La polarité est choisie telle que la longueur de la fibre se réduise et tire sur le capteur d'effort. Lors de l'acquisition, l'échantillonnage est de 3 points par seconde. La Figure III.59 présente les variations de forces mesurées dans le temps sous ces différentes tensions.

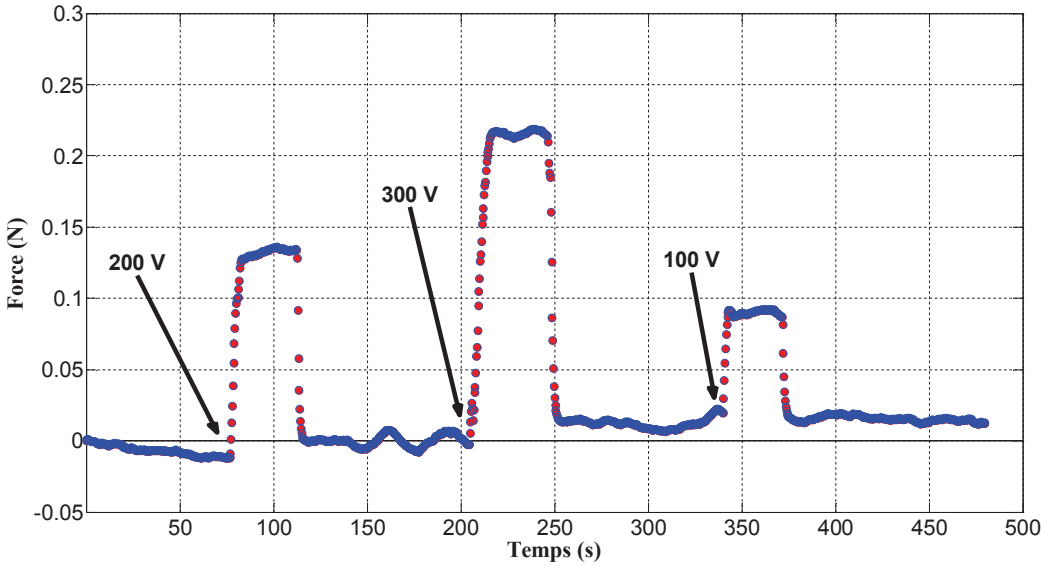


Figure III.59. Evolution de la force mesurée en fonction du temps sous différentes tensions d'activation.

Hors des zones d'activations, la force mesurée est quasi nulle et relativement stable. Après l'activation sous 300 V, le retour à une force non nulle peut être dû au non déchargement de la fibre (mise en court-circuit) qui n'est alors pas retournée à son état initial. Sous tension, la force est également relativement stable. Les efforts mesurés sont bien dépendant de la tension appliquée.

En considérant la force moyenne mesurée pendant une période sous tension et la ligne de base quelques secondes avant et après activation, il est possible de tracer l'évolution de la force en fonction de la tension appliquée. La Figure III.60 présente le graphique idéalisé en considérant les variations de force comme la différence entre la force moyenne atteinte sous une tension avec la ligne de base moyenne.

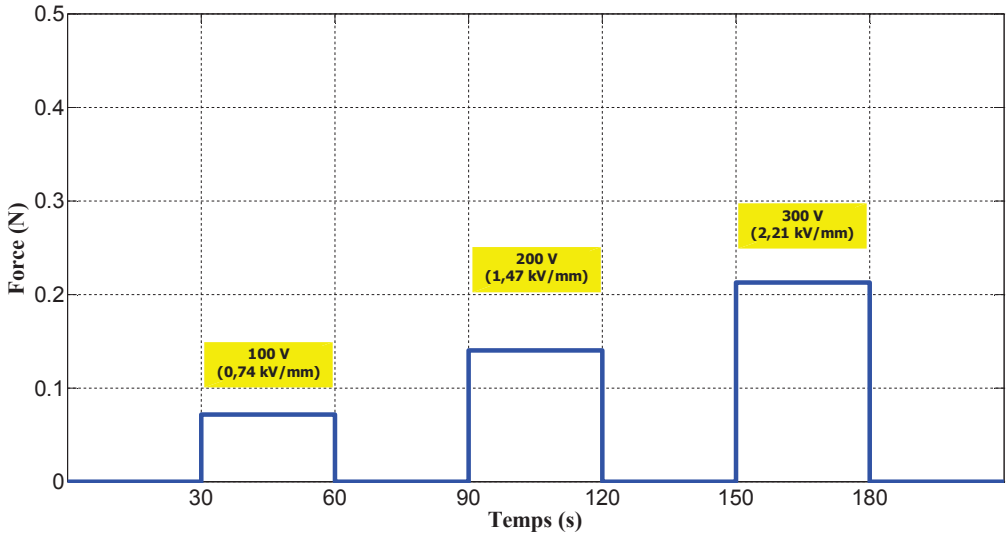


Figure III.60. Représentation idéalisée en considérant les valeurs moyennes de l'essai d'activation des fibres sous différentes tensions.

La Figure III.61 présente l'évolution de la force avec la tension. Notons que si les valeurs de forces paraissent faibles, elles sont à relativiser avec la section de la fibre, soit environ 0,50 mm², et une surface de matériau actif de 0,27 mm².

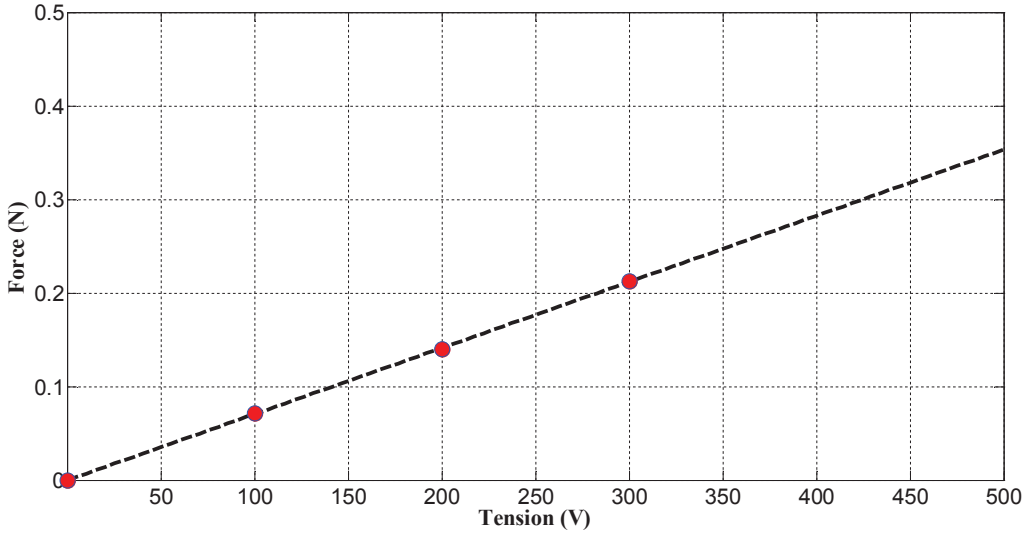


Figure III.61. Evolution de la force développée par la fibre en fonction de la tension.

L'évolution de la force avec la tension suit une tendance linéaire (R^2 = 0,9999), ce qui est conforme avec l'expression du modèle analytique (cf. Chapitre IV). Il est cependant délicat d'utiliser cette expression pour calculer la valeur du d_{31} correspondant car elle fait intervenir le module élastique du matériau piézoélectrique qui n'a pu être déterminé précisément lors de l'essai de traction. De plus l'état de contrainte initial peut modifier la force effectivement développée par la fibre. Si on applique la relation en considérant la valeur théorique du module élastique (~ 61 GPa) et en considérant des contraintes initiales nulles, pour les trois tensions d'activations utilisées, on obtient :

$$d_{31} = -6{,}33 \times 10^{-12} \text{ m/V}$$

De plus, dans les données de sortie de l'essai, il existe un champ intitulé "déplacement". Sachant que l'essai se déroule à déformation, donc à déplacement constant, les variations de déplacements indiquées pourraient correspondre aux déplacements effectifs si le système ne les avait pas compensés en modifiant la force appliquée. Cette hypothèse n'a pas encore pu être confirmée par le constructeur de l'appareil.

Ces données suivent la même allure que les variations de force de la Figure III.59. Ainsi, la Figure III.62 présente l'évolution du déplacement équivalent (déplacement supposé compensé par l'appareil) en fonction de la tension appliquée. La Figure III.63 transpose la courbe précédente en termes de déformation et de champ électrique.

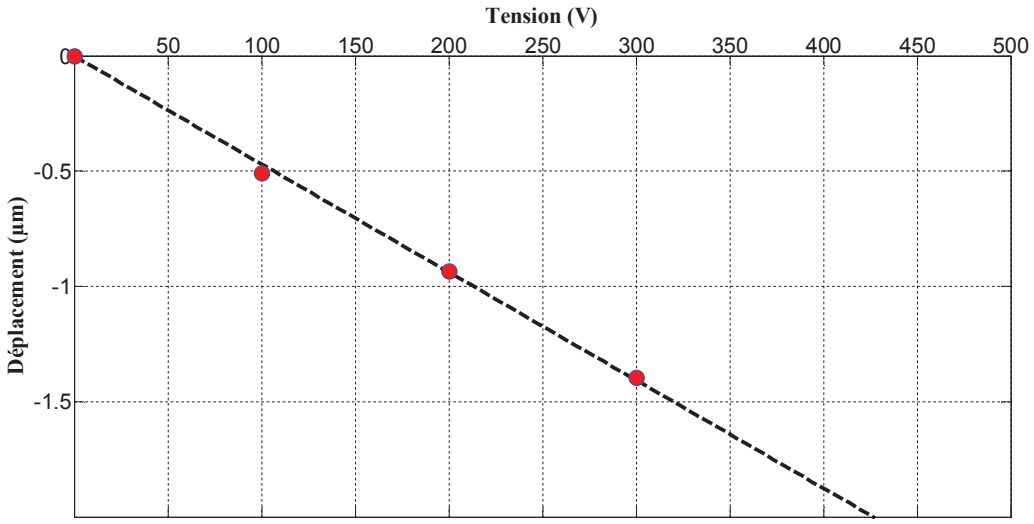


Figure III.62. Evolution du déplacement équivalent en fonction de la tension appliquée.

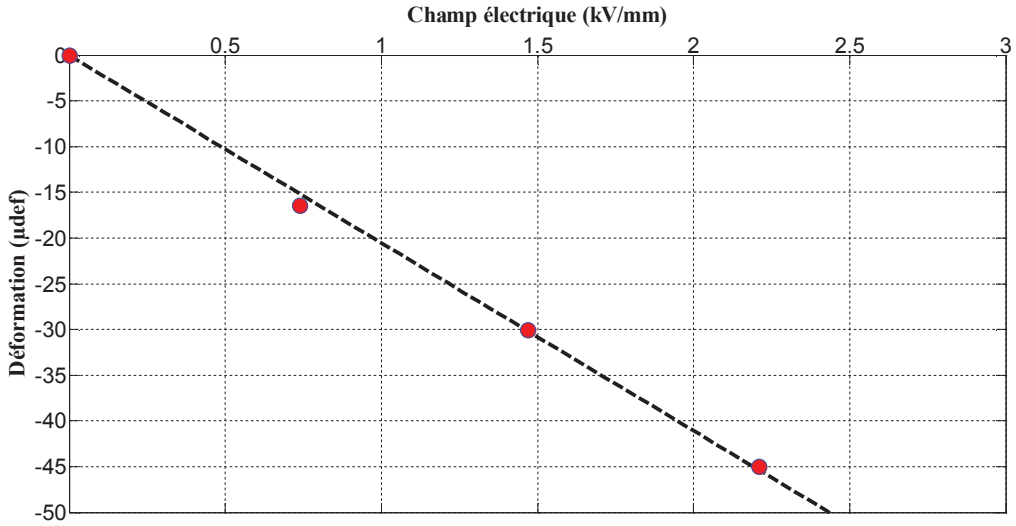


Figure III.63. Evolution de la déformation équivalente en fonction du champ électrique.

L'évolution est une nouvelle fois linéaire (R^2 = 0,9989) et si l'on considère l'absence de contrainte extérieure, le coefficient directeur de la courbe déformation-champ électrique donne la valeur du coefficient piézoélectrique transverse d_{31}, soit :

$$d_{31} = -20{,}77 \times 10^{-12} \text{ m/V}$$

Cette valeur se rapproche de la valeur mesurée en utilisant la vibrométrie laser. Pour rappel, la valeur était de -16 pm/V. Ces valeurs, du même ordre de grandeur, peuvent laisser entendre qu'il s'agisse du coefficient piézoélectrique effectif de la fibre, sous réserve de relier la déformation directement au champ électrique appliqué, en négligeant le terme supplémentaire caractéristique de l'état de contraintes.

III.4.2.3.iii. Détermination de la courbe de fonctionnement

L'objectif est de réaliser le même type d'essai que le précédent à déformation initiale non nulle. L'objectif est de contraindre la fibre pour réduire sa capacité de déformation (sens de la contrainte opposé au déplacement de la fibre).

La Figure III.64 présente l'évolution de la force mesurée en fonction du temps lors d'essais d'activation sous 300 V avec des taux de déformation initiaux variant de 0,02 à 0,40%.

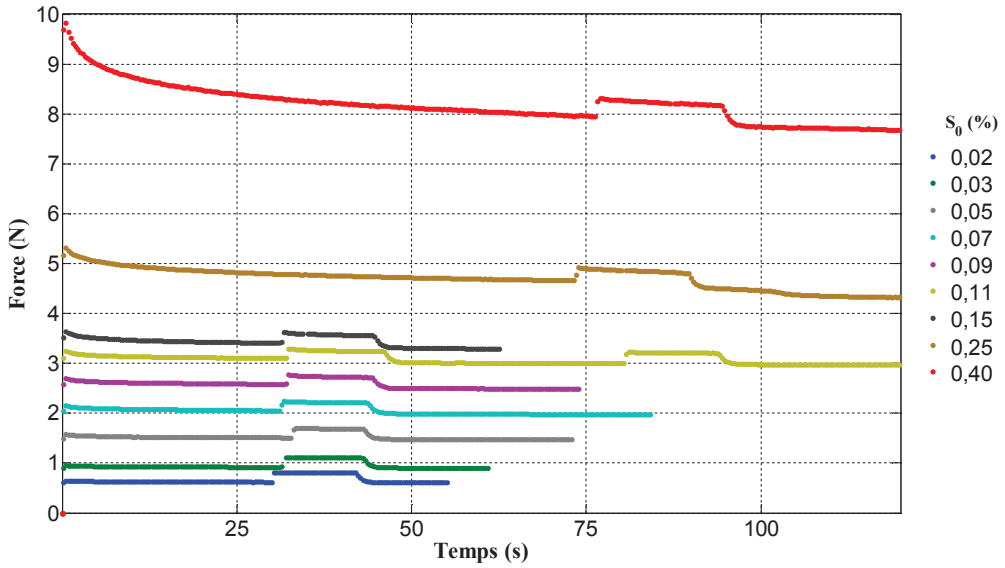


Figure III.64. Evolution de la force mesurée avec le temps lors d'essai d'activation avec différents taux de déformation initiaux.

Les premiers points des courbes correspondent à la mise en traction de la fibre pour atteindre l'état de déformation choisi. Pour des taux de déformations relativement faibles (S_0 < 0,1%), la déformation est quasiment constante en fonction du temps. Pour les taux de déformations plus élevés, la force diminue lentement avec le temps. Cette évolution correspond à une relaxation des contraintes qui produit une variation des efforts sur le capteur. Lors de l'activation de la fibre, la variation de force induite suit la même pente que celle observée pendant la relaxation.

La Figure III.65 présente l'évolution de la variation de force due à l'activation de la fibre en fonction du taux de déformation initial.

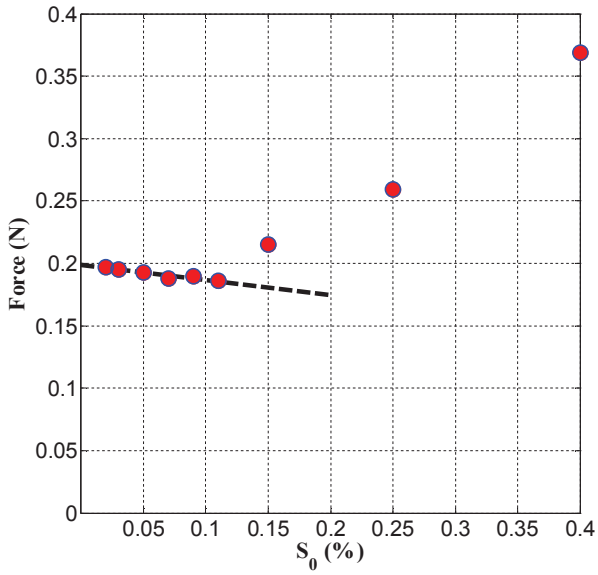


Figure III.65. Evolution de la variation de force due à l'activation de la fibre en fonction du taux de déformation initial.

Aux faibles taux de déformation (≤ 0,1%), la force mesurée due à l'action de la fibre varie peu et ce, de manière décroissante. Aux taux de déformation plus élevés, la tendance change de sens et augmente de façon significative. Ceci peut être dû au phénomène de relaxation observé aux taux de déformations élevés.

Il semble donc que la démarche établie pour tenter de déterminer la force de blocage soit erronée. En effet, l'idée était d'appliquer une force initiale afin d'étirer la fibre puis de la mettre sous tension pour revenir à l'état initial. Cependant, dans les conditions d'essais, la déformation est constante et il n'est pas possible de caractériser cet état, que ce soit par l'intermédiaire du capteur de forces ou de déplacements.

III.4.2.4. 2nd gamme d'essais (EDM)

Les essais ont été réalisés sur les mêmes fibres que celles utilisées sur la machine précédente.

Le système est similaire au système de mesure précédent (Figure III.56), mise à part que celui-ci est horizontal. Pour isoler les mors de la fibre et enrober les extrémités de la fibre, une gaine thermoplastique est disposée sur les extrémités des fibres.

Le principe de caractérisation reste le même : il s'agit dans un premier temps de tendre légèrement la fibre pour obtenir son alignement. Ensuite, dans cet état de contraintes initial supposé suffisamment faible pour être négligé, l'application d'une tension aux bornes de la fibre permet de mesurer son déplacement libre.

Malheureusement, il s'est avéré extrêmement difficile d'isoler les fibres de la machine, malgré toutes les précautions qui ont été prises. Après le serrage des mors, des courts-circuits apparaissaient. Ceci a conduit à la destruction de nombreux échantillons (dont le nombre est très limité) en les manipulant sur le dispositif en tentant de les isoler du système.

Avec les deux fibres qui ont pu être isolées sans les endommager, il n'a pas été possible de mesurer des variations significatives de déplacement. En appliquant des charges initiales de 1 et 5 N, en appliquant des tensions de 100 à 500 V, les déplacements mesurés n'ont jamais dépassé les 0,5 µm, qui correspondent aux fluctuations naturelles du capteur de déplacement dans la configuration testée.

Le nombre de fibres avec les rapports d'aspect les plus élevés à disposition ($\alpha \sim 0,4$) étant limité, il n'a pas été possible de réaliser d'autres essais pour améliorer la fixation dans les mors et tester d'autres configurations.

III.4.3. Conclusion : caractéristiques électromécaniques

La caractérisation des fibres individuelles par vibrométrie laser s'est avérée délicate suite à l'apparition de déformations hors de l'axe longitudinale des fibres. La mise en contrainte de la fibre pour observer sa déformation longitudinale fonctionne mais conduit sans doute à diminuer sa capacité de déplacement. Pour espérer utiliser cette méthode de caractérisation, il sera donc nécessaire de produire des fibres avec des rapports d'aspect plus élevés (déplacements plus importants à mesurer) mais surtout, produire des fibres plus rectilignes pour faciliter la mesure de déformation longitudinale.

La mise en commun de fibres au sein d'un patch est sujette aux mêmes problématiques pour la caractérisation de la déformation longitudinale. Néanmoins, dans cette configuration, le comportement de capteur a pu être vérifié. L'obtention d'une tension proportionnelle à la

déformation de la fibre (de quelque nature qu'elle soit) permet bien d'une part, de détecter un environnement vibratoire et d'autre part, d'effectuer un contrôle santé intégré en comparant les tensions d'un réseau de fibres (dans le cas présent, c'est le non fonctionnement d'une fibre qui est détecté).

L'utilisation de machine de micro-traction est très attractive pour tenter de caractériser les fibres, surtout du point de vue des efforts qu'elles peuvent développer. Il s'avère qu'avec les fibres réalisées, la mise en œuvre de cette technique de caractérisation est délicate. Néanmoins, lors des premiers essais, des efforts de 0,2 N ont été mesurés sous 300V pour une fibre avec $\alpha = 0{,}38$ et une section de 0,5 mm². Plusieurs pistes sont à envisager afin de pouvoir utiliser cette méthode pour la caractérisation des fibres :

- améliorer le système de fixation des mors pour appliquer les efforts sur le dépôt céramique ET le fil métallique. En effet, dans les conditions actuelles, il est probable que la traction du fil sollicite principalement le dépôt céramique et les caractéristiques d'adhésion peuvent alors entrer en jeu de manière prépondérante lors de la mesure ;
- améliorer l'encastrement du côté de la partie fixe pour que l'ensemble des déplacements/efforts soient bien répercutés sur l'extrémité libre ;
- la fixation dans les mors à l'aide de vis de serrage peut conduire à la fissuration du dépôt. L'enrobage des extrémités de la fibre à fixer peut limiter l'état de contraintes sur le dépôt ;
- utiliser des fibres initialement rectilignes pour ne pas à avoir à appliquer une traction initiale susceptible de bloquer la capacité de déformation de la fibre.

Avec les limitations décrites dans ces deux méthodes de caractérisation, la valeur du coefficient piézoélectrique transverse d_{31} obtenue sur les fibres 5 couches ($\alpha \sim 0{,}38$) réalisées par enduction est de l'ordre de -20 pm/V. Malgré la nécessité d'améliorer les dispositifs pour conforter l'interprétation des résultats, cette valeur peut constituer une première indication sur les propriétés piézoélectriques des MCPF dont le rapport d'aspect est voisin de 0,4.

D'une manière plus générale, la caractérisation des fibres individuelles est délicate dès lors que les déplacements/déformations/efforts à mesurer sont faibles à l'échelle des dimensions des fibres. De plus, les écarts expérimentaux à une fibre idéale (diamètres constants, linéarité, conditions d'encastrement…) conduisent à de nombreuses difficultés de mesure expérimentale. Des développements approfondis doivent être menés pour améliorer l'utilisation de ces techniques pour la détermination des caractéristiques piézoélectriques des fibres piézoélectriques à cœur métallique.

III.5. Conclusion

Les dimensions et la géométrie des fibres posent un réel problème pour leur caractérisation. C'est pour cela que dans un premier temps, des massifs piézoélectriques frittés dans les mêmes conditions que les fibres sont caractérisés à l'aide des techniques usuelles.

Le but est d'une part d'estimer les propriétés que pourraient avoir les fibres et d'autre part, de vérifier que le procédé d'enduction multicouche développé, qui nécessite de multiplier les traitements thermiques de consolidation, ne provoque pas de modifications structurales ou à une réduction des propriétés piézoélectriques. Il a ainsi été montré que les consolidations à 950°C n'impactent que très peu les propriétés piézoélectriques qui restent élevées (d_{33} > 500 pm/V, k_p > 0,60).

Les caractérisations des fibres, d'un point de vue de leur microstructure et de leur comportement à la polarisation, ont montré que le procédé multicouche permettait l'obtention d'un dépôt continu et homogène malgré la suite de traitements thermiques sur les différentes couches. Les diffractogrammes-X, les microstructures et les cycles d'hystérésis sont semblables quel que soit le nombre de couches, et donc de traitements thermiques, considéré. Par ailleurs, l'augmentation de l'épaisseur du matériau piézoélectrique avec le nombre de couches déposées favorise l'obtention de cycles d'hystérésis ferroélectriques proches de ceux des massifs piézoélectriques.

Les structures cristallographiques, les microstructures, les cycles d'hystérésis ferroélectriques étant similaires sur les massifs et sur les fibres (dès lors que le rapport d'aspect est suffisamment élevé), l'hypothèse est posée que les caractéristiques piézoélectriques sont également similaires.

Les caractérisations électromécaniques devaient normalement permettre de remonter aux caractéristiques intrinsèques en mesurant l'état de déformation des fibres sous champ électrique. Néanmoins, les écarts expérimentaux à une géométrie idéale (fibre rectiligne à diamètres constants) ne permettent pas de caractériser simplement la déformation longitudinale attendue. En effet, l'apparition d'une déformation globalement multiaxiale rend difficile la mesure et l'interprétation des résultats par vibrométrie laser. La mise en œuvre de la caractérisation des fibres par micro-traction s'est confrontée aux mêmes difficultés et il n'a pas été possible de déterminer les conditions opératoires appropriées lors des essais préliminaires en collaboration avec d'autres laboratoires. Cependant, la micro-traction s'avère intéressante pour assurer le déplacement longitudinal d'une fibre en la précontraignant en traction. De plus, cette technique pourrait être utilisée pour déterminer les efforts et les forces de blocage des fibres. Des travaux complémentaires doivent être menés sur cette technique pour développer une méthode de caractérisation sur ce type de fibres.

Les caractérisations électromécaniques des fibres ont permis de vérifier le fonctionnement en tant que capteur et actionneur. La mise en parallèle de fibres et le suivi des tensions aux bornes de celles-ci permet de simuler un contrôle santé, même si dans le cas présent c'est le non fonctionnement d'une fibre qui a été caractérisé. Ce résultat peut être extrapolé en imaginant que la structure est endommagée localement avec une fibre et que par conséquent, l'état électrique du réseau de fibre permet de renseigner sur l'état de santé de la structure.

Le chapitre suivant, qui s'intéresse à la modélisation de ces fibres, devrait permettre d'évaluer numériquement les caractéristiques des fibres et de simuler leur comportement dans des cas d'intégration complexe.

Bibliographie du Chapitre III

Sato H. Nagamine M. (2005) *Mechanical properties of metal-core piezoelectric fiber*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2005: Smart Structures and Integrated Systems, Proceedings of SPIE, San Diego, CA (USA), p. 623‑629.

Chapitre IV

Modélisation des MCPF

Chapitre IV MODELISATION DES MCPF

La modélisation des MCPF poursuit un double objectif :

- dans un premier temps, il s'agit d'estimer les propriétés intrinsèques des fibres afin de déterminer les déformations et les efforts développés par les fibres dans un cadre idéalisé ;
- dans un second temps, il s'agit d'évaluer le comportement de structures dans lesquelles les MCPF seront intégrées afin d'explorer différentes configurations et différents dimensionnements pour exploiter les fonctions d'actionneur et de capteur des MCPF.

Dans ce sens, un modèle analytique unidimensionnel développé par différents auteurs est utilisé pour étudier l'influence de l'épaisseur du matériau céramique actif et des propriétés élastiques des différents éléments présents (cœur métallique, matrice) sur les déformations obtenues en actionnement longitudinal.

Le calcul numérique en utilisant la méthode des éléments finis est ensuite mis en œuvre pour rendre compte des effets d'interface et des effets transverses qui sont négligés dans le modèle analytique. La méthode des éléments finis est également utilisée afin de simuler le comportement de matériaux plus ou moins rigides dans lesquels ces fibres sont intégrées, de manière uniforme ou non.

IV.1. Modélisation analytique

Les travaux de Zhang *et al.* [ZHANG 2005], Yoon *et al.* [YOON 2006], Sebald *et al.* [SEBALD 2005a, 2005b], Lin *et al.* [LIN 2008], Berger *et al.* [BERGER 2005a, 2005b], permettent de corriger le coefficient piézoélectrique transverse d_{31} d'une MCPF en tenant compte d'une part, de l'effet de gradient de champ électrique du fait de la géométrie cylindrique et d'autre part, de l'association à des éléments de rigidités différentes (cœur, matrice).

Dans le but d'étudier uniquement la déformation longitudinale des fibres, les hypothèses posées pour l'établissement du modèle analytique unidimensionnel sont les suivantes :

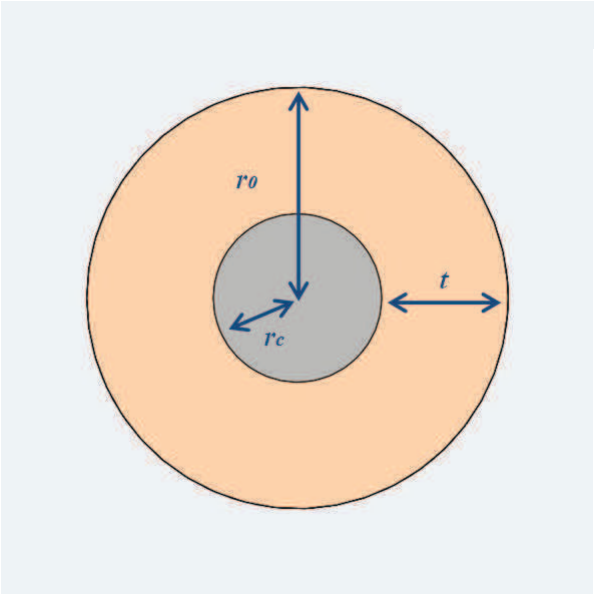
- la longueur de la fibre est bien supérieure à son diamètre ;
- il n'y a pas de charges électriques libres dans le matériau céramique ;
- l'âme métallique est beaucoup plus rigide que la céramique ;
- les contraintes angulaires et radiales sont négligées ;
- la déformation est homogène dans la section de la fibre.

Ceci permet d'exprimer un coefficient piézoélectrique corrigé en fonction de la géométrie et des propriétés élastiques des matériaux considérés pour garder une expression linéaire équivalente de la déformation longitudinale :

$$S_{31} = d_{31}^{corr} \times E_3 = d_{31}^{corr} \times \frac{V}{t} \qquad (\text{IV.1})$$

Les éléments suivants permettent d'établir (sans en donner la démonstration complète) l'expression des coefficients piézoélectriques corrigés par la contribution du gradient de champ électrique induit par la géométrie cylindrique et par la contribution du cœur rigide.

Le schéma de la Figure IV.1 présente les notations prises en compte dans les équations établies avec l'équivalence des axes du repère cylindrique et la convention d'axes en piézoélectricité.



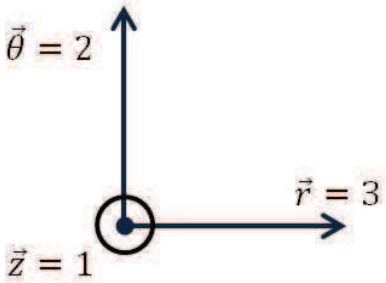


Figure IV.1. Schéma et convention d'axes pour l'établissement du modèle analytique.

t	épaisseur de la céramique
r_0	rayon total de la fibre
r_c	rayon du cœur
E	champ électrique
V	tension électrique
Y_i	module d'élasticité longitudinal du matériau i (cœur c, céramique piézoélectrique p, matrice m)
v_i	fraction volumique du matériau i (cœur c, céramique piézoélectrique p, matrice m)

Le rapport d'aspect est définit par l'équation IV.2 :

$$\alpha = \frac{t}{r_0} \qquad (\text{IV.2})$$

En considérant uniquement les contraintes-déformations longitudinales (les composantes suivant r et θ sont négligées), le champ électrique peut se mettre sous la forme décrite par l'équation IV.3 :

$$E_r(r) = \frac{V}{r \times ln(1-\alpha)} \qquad (\text{IV.3})$$

IV.1.1. Tube piézoélectrique

Il est ici question de décrire dans un premier temps l'influence de la géométrie cylindrique sur la déformation de la fibre.

En élasticité linéaire, la loi de Hooke relie la déformation longitudinale à la contrainte en fonction du module l'élasticité. Dans le cas présent, il est possible d'écrire :

$$T_{31} = Y_p \times S_{31} = Y_p \times d_{31} E_r$$
$$S_{31} = \frac{T_{31}}{Y_p} = \frac{F_p}{A_p Y_p} \qquad (IV.4)$$

La force développée par l'élément piézoélectrique est obtenue en intégrant la contrainte sur la section du tube piézoélectrique :

$$F_p = Y_p d_{31} \int_0^{2\pi} \int_{r_i}^{r_0} E(r).rdrd\theta = -2\pi Y_p d_{31} \times \frac{Vt}{ln(1-\alpha)} \qquad (IV.5)$$

En combinant ces deux dernières équations, l'expression de la déformation devient :

$$S_{31} = \frac{-d_{31}}{\left(\frac{1}{\alpha} - \frac{1}{2}\right) \times ln(1-\alpha)} \times \frac{V}{t} \qquad (IV.6)$$

Il est alors possible de considérer un coefficient piézoélectrique corrigé pour le tube piézoélectrique qui dépend uniquement du rapport d'aspect α :

$$d_{31}^{tube} = \frac{-d_{31}}{\left(\frac{1}{\alpha} - \frac{1}{2}\right) \times ln(1-\alpha)} \qquad (IV.7)$$

La Figure IV.2 présente l'évolution du rapport d_{31}^{tube}/d_{31}décrit par l'équation IV.7.

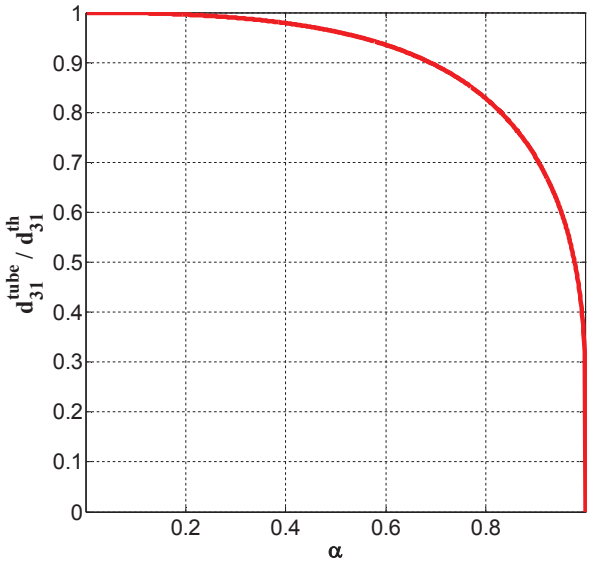


Figure IV.2. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{tube} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect *α*.

Pour de faibles rapports d'aspect (α → 0), le gradient de champ électrique est limité et le coefficient piézoélectrique du tube tend vers le coefficient piézoélectrique théorique. Jusque α = 0,7, les deux coefficients ne diffèrent que de moins de 10% et au-delà, le coefficient piézoélectrique du tube chute drastiquement.

Pour un tube piézoélectrique seul, il faut donc privilégier les faibles rapports d'aspect pour limiter l'effet du gradient de champ électrique dans la paroi piézoélectrique.

IV.1.2. Fibre piézoélectrique à cœur métallique

En utilisant une loi de mélange, le module d'élasticité longitudinal de la fibre à cœur métallique peut s'exprimer par :

$$Y_{MCPF} = \nu_p Y_p + (1 - \nu_p) Y_c \qquad (\text{IV.8})$$

En considérant des longueurs identiques, les fractions volumiques sont égales aux fractions surfaciques des éléments, soit :

$$\nu_p = 2\pi r_0 t (1 - \alpha/2) \qquad (\text{IV.9})$$

De la même manière que précédemment, la déformation longitudinale peut s'exprimer à l'aide de la loi de Hooke pour écrire un coefficient piézoélectrique équivalent de la fibre piézoélectrique à cœur métallique qui dépend du rapport d'aspect α et des propriétés élastiques du cœur :

$$d_{31}^{MCPF} = \frac{\nu_p Y_p}{Y_{MCPF}} \times d_{31}^{tube} \qquad (\text{IV.10})$$

La Figure IV.3 présente l'évolution du rapport $d_{31}^{MCPF}/d_{31}^{th}$ décrit par l'équation IV.10.

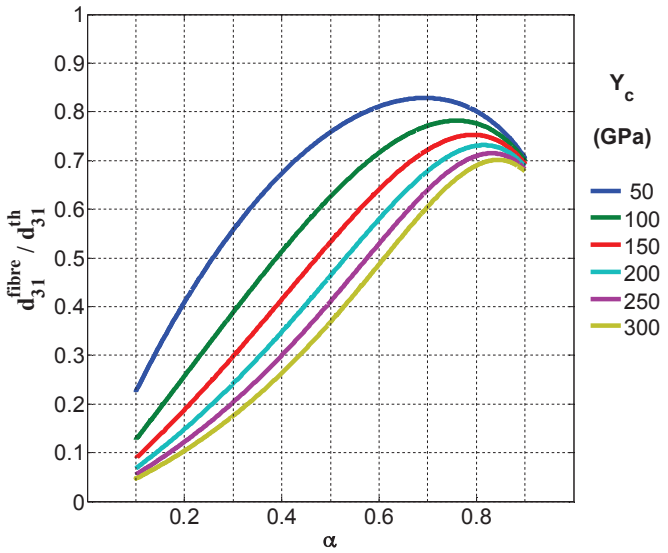


Figure IV.3. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{MCPF} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour des cœurs de rigidités différentes.

La présence du cœur rigide au centre de la fibre réduit la déformation de l'ensemble. Ainsi pour de faibles rapports d'aspect, il n'y a pas assez de matériau actif pour déformer l'ensemble de la fibre et la capacité de déformation est alors très faible. Ensuite, plus le rapport d'aspect augmente, plus la capacité de déformation augmente et ce, jusqu'à passer par un maximum au-delà duquel l'effet du gradient de champ électrique redevient prédominant et réduit à nouveau la capacité de déformation.

La dérivée du premier ordre des courbes de la Figure IV.3 permet d'évaluer l'évolution du maximum de la capacité de déformation de déformation des fibres et de déterminer les rapports d'aspect optimums. Ceci fait l'objet des figures IV.4 et IV.5.

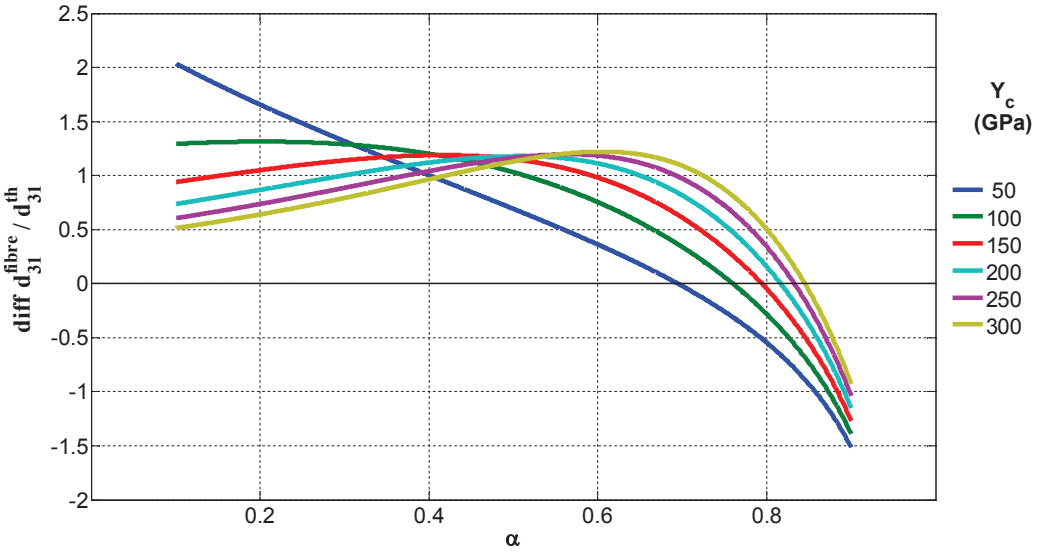


Figure IV.4. Différentielles des courbes $d_{31}^{MCPF} / d_{31}^{th} = f(\alpha)$ pour la détermination des rapports d'aspect optimums.

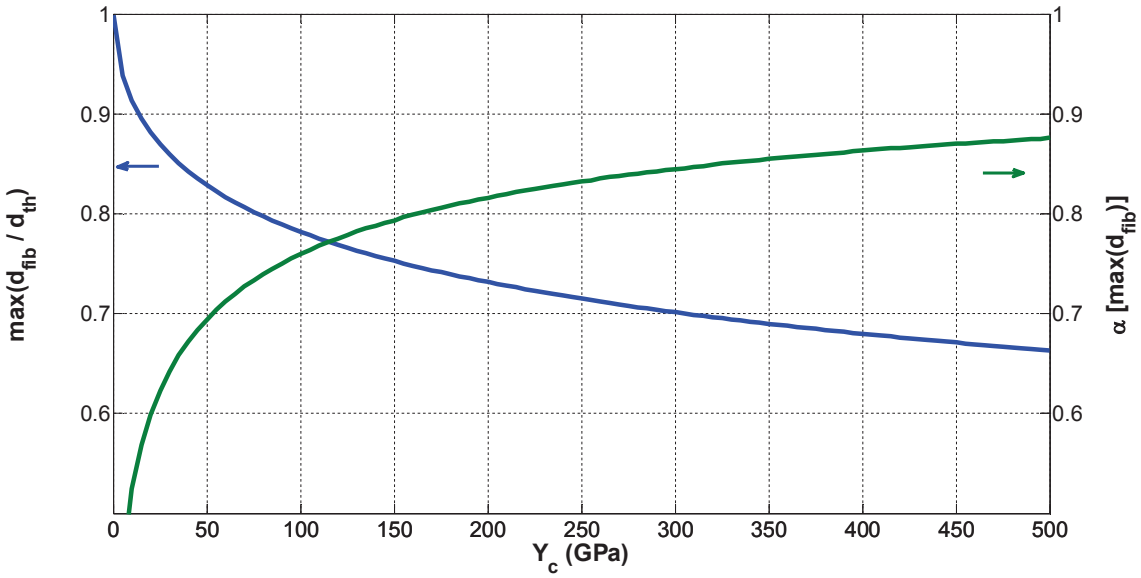


Figure IV.5. Evolution des maxima du coefficient piézoélectrique corrigé et des rapports d'aspect optimums avec le module d'élasticité longitudinal du cœur.

On constate ainsi que l'utilisation d'un cœur plus ou moins rigide à deux effets : d'une part, la capacité de déformation maximale diminue avec l'augmentation de la rigidité du cœur et d'autre part, la capacité de déformation maximale est atteinte pour des rapports d'aspect α plus élevés lorsque la rigidité du cœur augmente.

La Figure IV.6 résume l'ensemble de ces constatations avec le graphique tridimensionnel qui permet de comparer à la fois l'effet de la géométrie et l'effet de la présence du corps rigide.

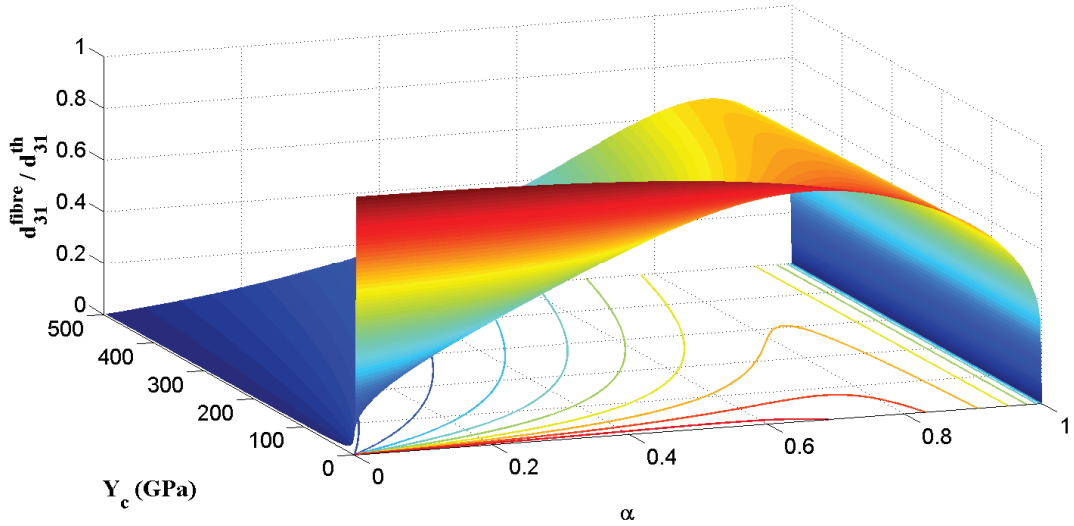


Figure IV.6. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{MCPF} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et du module d'élasticité du cœur Y_c.

IV.1.3. Intégration uniforme dans une matrice

On considère à présent des fibres alignées uniformément distribuées dans une matrice. Les fibres représentent alors une fraction volumique v_f de la matrice de module d'élasticité Y_m. Une nouvelle loi de mélange permet d'exprimer le module d'élasticité global du composite ainsi formé :

$$Y_{comp} = Y_m + v_p(Y_p - Y_m) + v_c(Y_c - Y_m) \qquad (\text{IV.11})$$

Toujours avec la même démarche, l'expression du coefficient piézoélectrique corrigé par l'effet de la géométrie cylindrique et par la présence des corps rigides au centre et autour de la fibre peut s'écrire :

$$d_{31}^{comp} = \frac{v_p Y_p}{Y_{comp}} \times d_{31}^{tube} \qquad (\text{IV.12})$$

Considérons d'abord des fibres à âme peu rigide (Y_c = 100 GPa) représentative de matériaux comme l'argent, l'or, le cuivre, le titane ou le palladium dans une matrice souple (type résine, Y_m = 5 GPa) ou rigide (type CFRP UD, Y_m = 135 GPa). Les graphiques présentés sur les figures IV.7, IV.8, IV.9 et IV.10 permettent d'observer l'influence de la fraction volumique de fibre v_f et du rapport d'aspect α dans ces deux cas de figures.

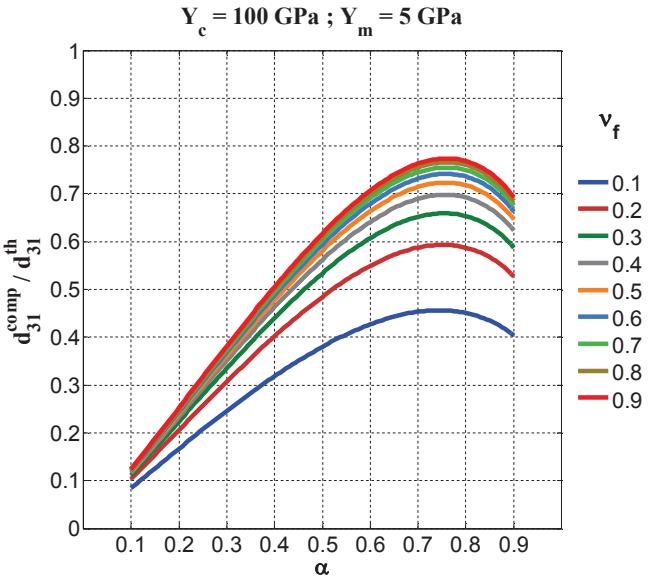


Figure IV.7. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques v_f dans le cas d'un cœur "souple" et d'une matrice "souple".

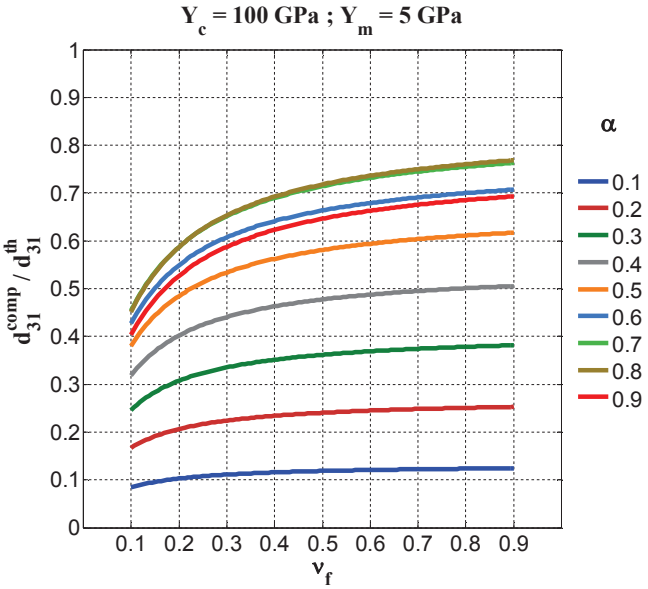


Figure IV.8. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différents rapport d'aspect α dans le cas d'un cœur "souple" et d'une matrice "souple".

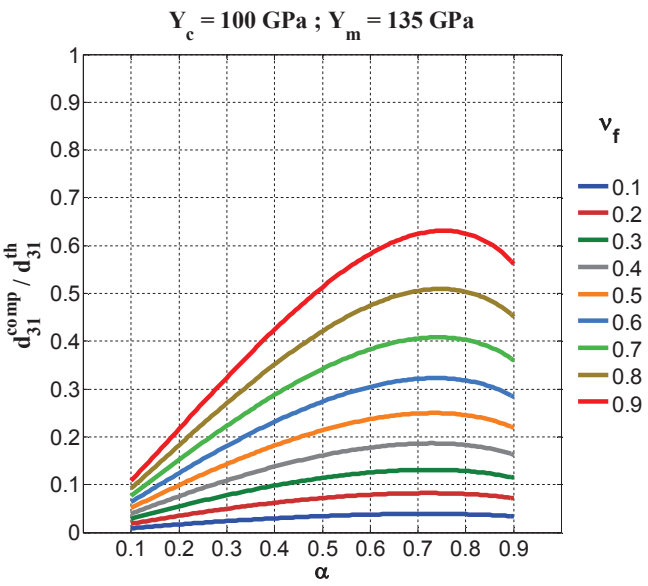


Figure IV.9. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques v_f dans le cas d'un cœur "souple" et d'une matrice "rigide".

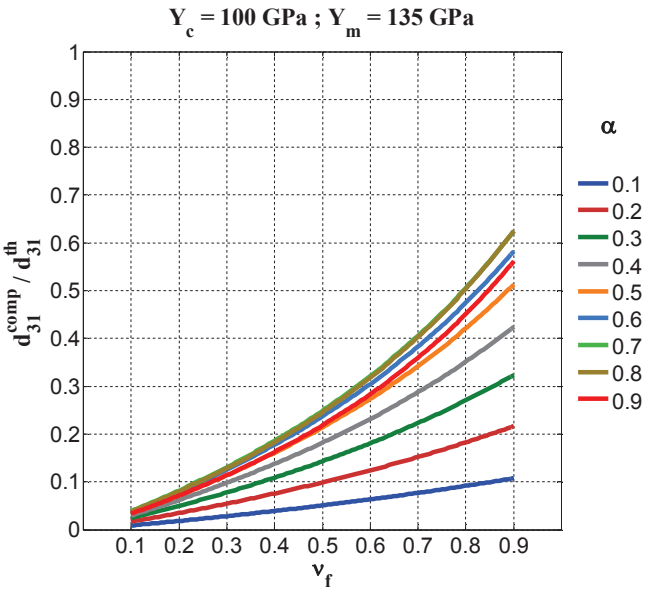


Figure IV.10. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différents rapport d'aspect α dans le cas d'un cœur "souple" et d'une matrice "rigide".

Pour une matrice "souple", les rapports d'aspect élevés permettent d'obtenir les meilleurs coefficients piézoélectriques corrigés. L'influence de la fraction volumique de fibres est par ailleurs notable à partir de α = 0,5. Par ailleurs, quel que soit α, le coefficient piézoélectrique corrigé augmente avec v_f.

Pour une matrice "rigide", le coefficient piézoélectrique corrigé chute drastiquement et il devient nécessaire d'atteindre des fractions volumiques élevées pour dépasser 50% de la valeur théorique du d_{31}.

Considérons à présent des fibres à âme rigide (Y_c = 200 GPa) représentative de matériaux comme le platine, le cobalt, le nickel ou des alliages de nickel pour les mêmes matrices. Les graphiques présentés sur les figures IV.11, IV.12, IV.13 et IV.14 permettent d'observer

l'influence de la fraction volumique de fibre v_f et du rapport d'aspect α dans ces deux nouveaux cas de figures.

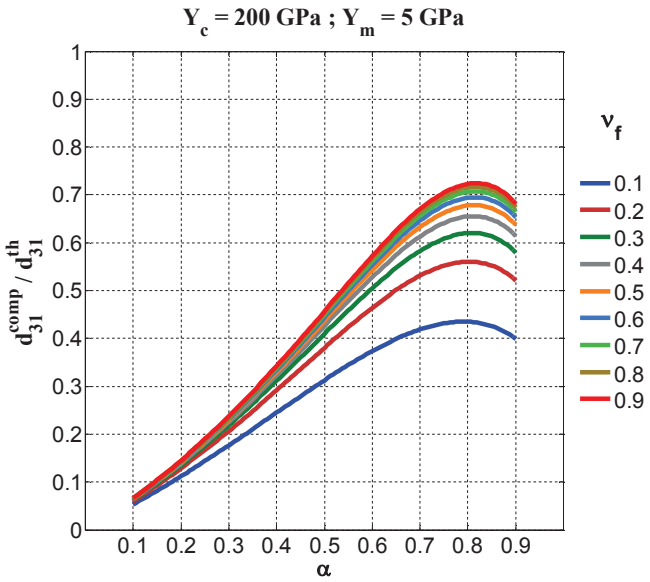


Figure IV.11. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques v_f dans le cas d'un cœur "rigide" et d'une matrice "souple".

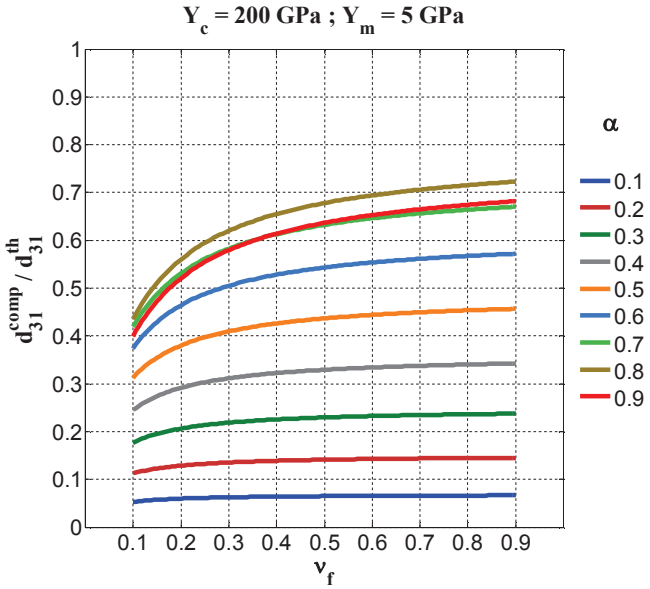


Figure IV.12. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différents rapports d'aspect α dans le cas d'un cœur "rigide" et d'une matrice "souple".

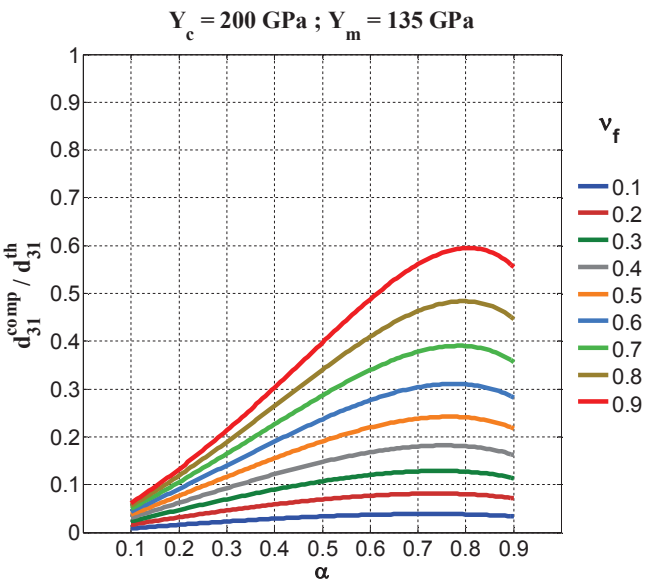


Figure IV.13. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction du rapport d'aspect α et pour différentes fractions volumiques v_f dans le cas d'un cœur "rigide" et d'une matrice "rigide".

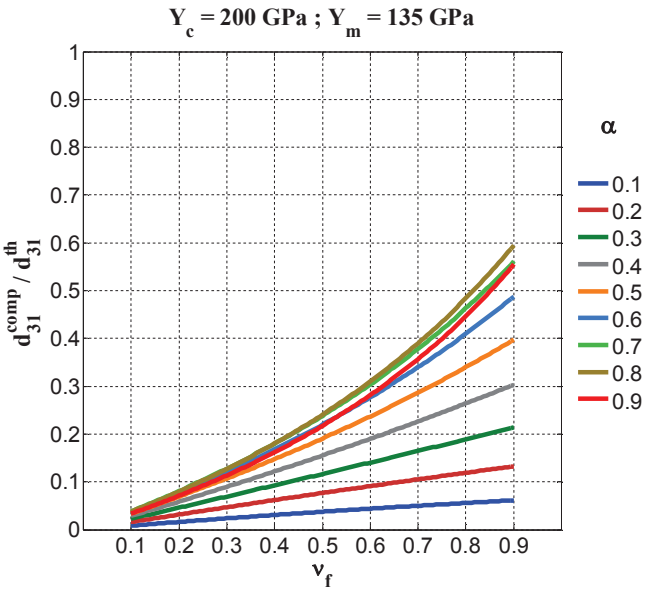


Figure IV.14. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différents rapports d'aspect α dans le cas d'un cœur "rigide" et d'une matrice "rigide".

L'utilisation d'un cœur plus rigide n'entraîne pas de modification du comportement global du composite à fibres actives mais seulement une diminution des coefficients piézoélectriques atteignables.

Les résultats peuvent être présentés différemment en considérant que le choix du matériau pour le cœur est figé et que l'épaisseur du matériau piézoélectrique est telle que le maximum du coefficient piézoélectrique soit atteint. Les variables restantes sont alors la fraction volumique de fibres et le module d'élasticité de la matrice dans laquelle les fibres seront intégrées. Pour un cœur de rigidité intermédiaire (150 GPa), on obtient les courbes des figures IV.15 et IV.16.

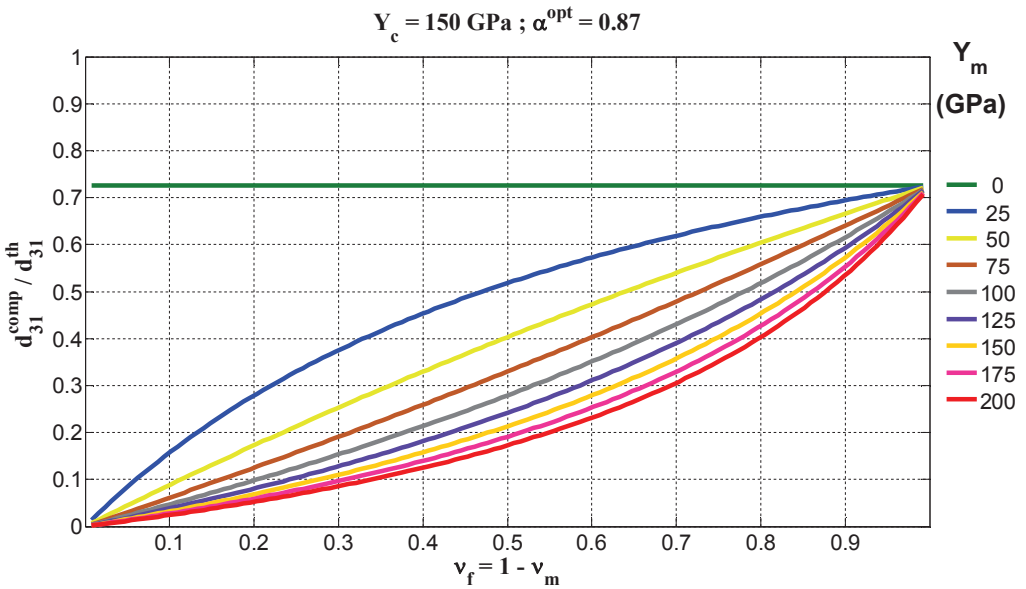


Figure IV.15. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et pour différentes rigidités de matrice.

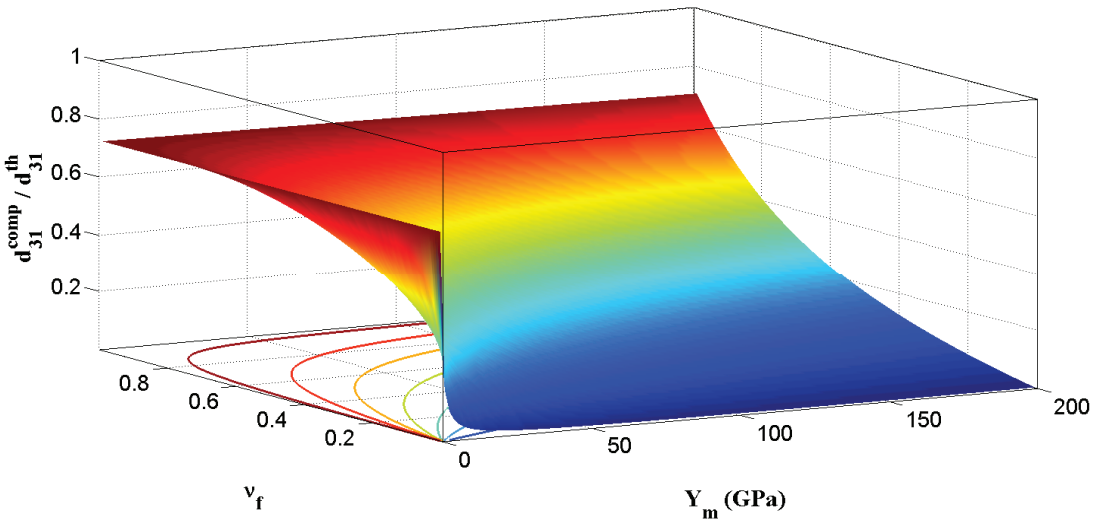


Figure IV.16. Evolution du coefficient piézoélectrique corrigé d_{31}^{comp} normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique en fonction de la fraction volumique de fibres v_f et du module d'élasticité de la matrice.

On constate ainsi que les valeurs les plus élevées sont obtenues pour des matrices souples et des fractions volumiques de fibres très élevées. Puisqu'il est difficile d'imaginer intégrer 80 vol.% de fibres dans un matériau, ces données permettent d'avoir une idée sur la capacité de déformation atteignable en fonction de la rigidité du matériau choisi avec une fraction volumique de fibres actives fixée.

IV.1.4. Conclusions

Le développement du modèle analytique, qui ne considère que les déformations longitudinales, permet de mettre en évidence certains phénomènes à prendre en compte pour le dimensionnement des fibres :

- la géométrie radiale induit une perte de déformabilité lorsque le rapport d'aspect devient trop important ;

- la rigidité du cœur réduit également la déformabilité de la fibre. Il existe des rapports d'aspect optimums pour lesquels la déformabilité est maximale ;
- l'intégration de ces fibres dans une matrice rigide réduit une nouvelle fois la déformabilité. Avec une matrice rigide il est nécessaire d'utiliser des fractions volumiques de fibres élevées pour atteindre des capacités de déformations raisonnables.

Le Tableau IV.1 reprend quelques résultats obtenus avec le modèle analytique pour déterminer les conditions à remplir pour obtenir au moins 50% du coefficient piézoélectrique théorique.

Tableau IV.1. Eléments de dimensionnement issus du modèle analytique pour garantir 50% du coefficient piézoélectrique théorique.

$d_{31}^{corr} \geq 50\% d_{31}^{th}$	**Cœur souple (100 GPa)**	**Cœur rigide (200 GPa)**
Fibre seule	$\alpha^{opt} = 0{,}76$	$\alpha^{opt} = 0{,}82$
Matrice souple (5 GPa)	$\alpha > 0{,}5$ $v_f > 0{,}2$	$\alpha > 0{,}6$ $v_f > 0{,}3$
Matrice rigide (135 GPa)	$\alpha > 0{,}6$ $v_f > 0{,}8$	$\alpha > 0{,}7$ $v_f > 0{,}8$

Ce modèle, bien que très intéressant pour mettre en évidence l'influence des différents phénomènes étudiés, est assez limité car il néglige tout effet transverse et considère uniquement des déformations longitudinales associées à l'intégration uniforme des fibres dans une matrice. La modélisation par la méthode des éléments finis devrait permettre d'accéder à des valeurs plus proches de la réalité et surtout, permettre d'étudier des cas d'intégration ou d'activation des fibres plus complexes.

IV.2. Introduction à la méthode des éléments finis

IV.2.1. Généralités

La méthode des éléments finis fait partie des méthodes numériques permettant de déterminer une solution approchée d'un système d'équations décrivant un problème physique, le plus courant étant de résoudre des équations aux dérivées partielles [TROMPETTE 1992].

La recherche d'une solution exacte sur un milieu continu faisant intervenir différents phénomènes éventuellement couplés requière virtuellement une infinité d'équations à résoudre et autant d'inconnues à déterminer. Un élément fini peut être visualisé comme une petite portion d'un milieu continu. Le terme "fini" distingue cette portion d'un élément infinitésimal d'un calcul différentiel. Le problème est alors décrit à l'aide d'un système d'équations algébriques qui dépend d'un nombre fini de paramètres [OÑATE 2009].

L'équilibre d'une structure soumise à des sollicitations extérieures peut être approché de manière globale par des formulations variationnelles. Le principe des travaux virtuels ou de la minimisation de l'énergie potentielle permet d'établir les équations d'équilibres d'une structure en faisant intervenir la matrice de rigidité de la structure $\boldsymbol{K}$, le vecteur des déplacements $\boldsymbol{u}$ et le vecteurs des forces extérieures $\boldsymbol{f}$ [CHASKALOVIC 2004, GALLAGHER 1974, OÑATE 2009, TROMPETTE 1992] :

$$K\boldsymbol{u} = \boldsymbol{f} \qquad (\text{IV.13})$$

Dans un élément fini, c'est-à-dire un élément du domaine décrit par un ensemble de points appelés nœuds, le champ de déplacement est unique et il est définit par ses valeurs prises aux nœuds. Les nœuds sont liés par des fonctions mathématiques, fonctions d'interpolations, qui permettent de connaître le champ de déplacement sur l'ensemble du domaine.

Les différentes étapes de la méthode des éléments finis, de la définition du modèle structurel à la résolution numérique, sont reprises sur la Figure IV.17.

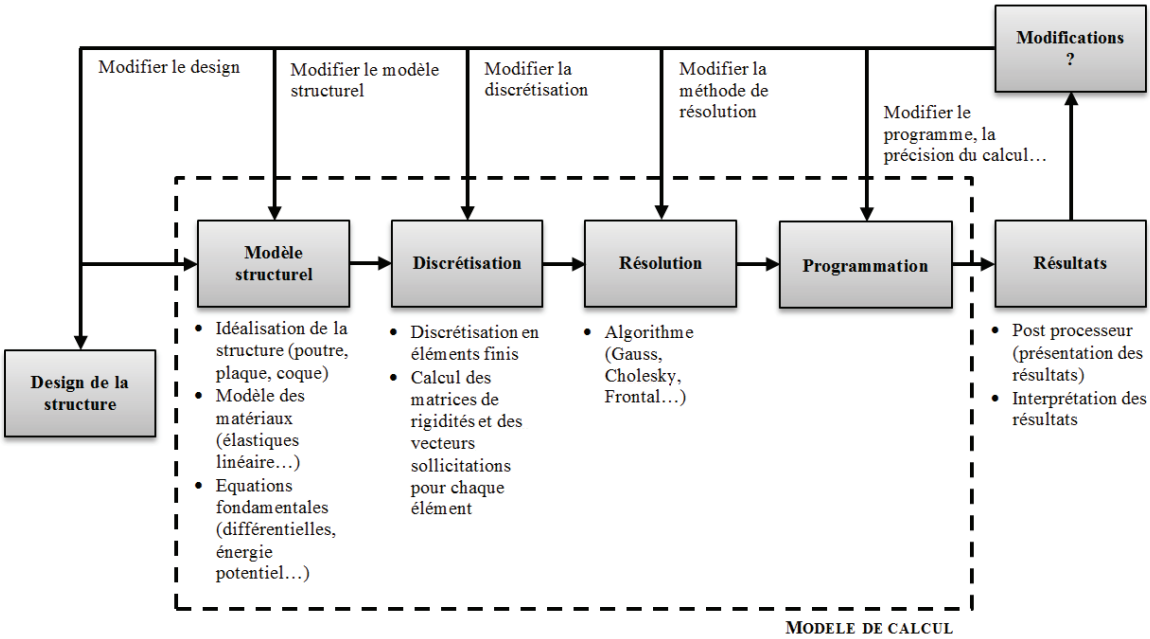


Figure IV.17. Synoptique de la mise en œuvre de la MEF, d'après [OÑATE 2009].

Du point de vue de l'utilisateur qui n'a pas la possibilité (pour les programmes commerciaux) d'agir sur les étapes de résolution et de programmation, les étapes fondamentales concernent la description de la structure à modéliser pour approcher au mieux la réalité avec un modèle le plus simple possible. La discrétisation de la structure est elle aussi très importante pour contrôler la finesse des analyses effectuées, inversement proportionnelle aux ressources matérielles nécessaires pour atteindre la convergence du calcul par éléments finis.

Le calcul par éléments finis, initialement développé pour le calcul de structure, est aujourd'hui utilisé pour étudier un grand nombre de phénomènes, de manière individuelle ou couplée : la mécanique (élasticité, viscoélasticité…, linéaire et non linéaire), l'endommagement, la mécanique des fluides, la thermique, l'électromagnétisme *et cetera* sans oublier bien entendu, la piézoélectricité.

IV.2.2. Types d'analyses avec le code ATILA

Le code éléments finis ATILA a été historiquement et spécifiquement développé pour la modélisation piézoélectrique de sonars. Il permet aujourd'hui de réaliser des études statiques, modales, harmoniques et transitoires sur des structures bi et tridimensionnelles avec des matériaux élastiques, viscoélastiques, piézoélectriques ou magnétiques. Les effets thermiques peuvent également être pris en compte.

IV.2.2.1. Analyse statique

Par rapport à l'étude statique d'un problème purement élastique décrit par l'équation IV.13, l'étude d'un problème piézoélectrique revient à considérer l'effet du champ électrique en termes de potentiels électriques. Ainsi, en appliquant une force **F** ou des potentiels électriques **Φ**, le code calcule le champ de déplacements **U** et les potentiels électriques **Φ** résultants. Les sollicitations force/potentiel peuvent être appliquées en même temps. Pour s'assurer de l'unicité de la solution en potentiel électrique, il est nécessaire d'appliquer au moins un potentiel électrique nul.

Des algorithmes de Gauss [I.S.E.N 2009, TROMPETTE 1992] sont utilisés pour résoudre le système d'équations suivant :

$$\begin{bmatrix} [K_{uu}] & [K_{u\phi}] \\ [K_{u\phi}]^T & [K_{\phi\phi}] \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \boldsymbol{U} \\ \phi \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{F} \\ -\boldsymbol{q} \end{bmatrix} \qquad (\text{IV.14})$$

La résolution de ce système donne accès aux déplacements et potentiels nodaux. Pour obtenir les solutions en tout point, il faut utiliser l'interpolation nodale.

IV.2.2.2. Analyse modale

L'analyse modale a pour objectif d'étudier le comportement dynamique d'une structure par des systèmes discrets. L'algorithme de Lanczos [I.S.E.N 2009, TROMPETTE 1992] est utilisé pour résoudre le système d'équations suivant :

$$\begin{bmatrix} [K_{uu}] - \omega^2[M] & [K_{u\phi}] \\ [K_{u\phi}]^T & [K_{\phi\phi}] \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \boldsymbol{U} \\ \phi \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ -\boldsymbol{q} \end{bmatrix} \qquad (\text{IV.15})$$

Le code calcule les valeurs propres et les vecteurs propres de la structure en absence de sollicitations mécaniques extérieures et sans considérer l'amortissement viscoélastique [I.S.E.N 2009].

Ce système d'équations peut être réécrit en considérant indépendamment les potentiels électriques des nœuds liés aux électrodes $\boldsymbol{\Phi_e}$ et les potentiels internes $\boldsymbol{\Phi_i}$:

$$\begin{bmatrix} [K_{\phi_e\phi_e}] & [K_{\phi_e\phi_e}]^T & [K_{u\phi_e}]^T \\ [K_{\phi_i\phi_e}] & [K_{\phi_i\phi_i}] & [K_{u\phi_i}]^T \\ [K_{u\phi_e}] & [K_{u\phi_i}] & [K_{uu}] - \omega^2[M] \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \phi_e \\ \phi_i \\ \boldsymbol{U} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\boldsymbol{q} \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \qquad (\text{IV.16})$$

En condition de court-circuit, c'est-à-dire $\boldsymbol{\Phi_e} = 0$, le calcul conduit à la détermination des modes de résonance. En condition de circuit ouvert, c'est-à-dire $\boldsymbol{q} = 0$, le calcul conduit à la détermination des modes d'antirésonance.

L'algorithme utilisé permet d'éviter la détection des modes de corps rigides et calcule les valeurs propres très précisément même pour des modes de fréquences voisines [I.S.E.N 2009].

IV.2.2.3. Analyse harmonique

Pour un problème dynamique, le chargement et les paramètres de réponse sont fonction du temps [DELAPLACE 2008]. La principale caractéristique d'un problème dynamique est la présence d'efforts d'inertie non-négligeables qui, d'après le principe d'Alembert, s'opposent

au mouvement imposé par le chargement appliqué. Une charge est dynamique si sa norme, sa direction ou son point d'application varie avec le temps. Si l'évolution de ces grandeurs est prescrite de manière unique, l'analyse est dite déterministe. Au contraire, si la variation du chargement en fonction du temps n'est pas connue et ne peut être définie qu'en termes statistiques, le chargement est dit aléatoire.

L'analyse harmonique entre dans le cadre de l'étude de sollicitations périodiques de forme générale :

$$f(t) = f_0 . e^{j(\omega t + \varphi)} \qquad (\text{IV.17})$$

Des algorithmes de Gauss [I.S.E.N 2009] sont utilisés pour résoudre le système d'équations suivant :

$$\begin{bmatrix} [K_{uu}] - \omega^2 [M] & [K_{u\phi}] \\ [K_{u\phi}]^T & [K_{\phi\phi}] \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \boldsymbol{U} \\ \phi \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{F} \\ -\boldsymbol{q} \end{bmatrix} \qquad (\text{IV.18})$$

La résolution de ce système conduit au champ de déplacements $\boldsymbol{U}$, aux potentiels électriques $\boldsymbol{\Phi}$, à l'impédance de la structure suite aux charges $\boldsymbol{q}$ sur un domaine de fréquence ω définit par l'utilisateur et en considérant un système dissipatif ou non.

IV.2.2.4. Analyse transitoire

Ce type d'analyse n'est pas encore complétement implémenté dans le logiciel et n'a donc pas été utilisé.

IV.3. Modélisation par la méthode des éléments finis

IV.3.1. Données d'entrées

IV.3.1.1. Version

Le logiciel utilisé est ATILA-GiD version 3.0.27. Il comprend le code de calcul ATILA associé à l'interface GiD permettant de réaliser les étapes du préprocesseur et du postprocesseur avec une meilleure ergonomie.

Cette version a été spécifiquement modifiée pour les besoins de l'ONERA. Des problèmes de compatibilité sont apparus pour l'utilisation de certaines fonctions.

IV.3.1.2. Données matériaux

Le Tableau IV.2 présente les propriétés mécaniques des matériaux élastiques isotropes considérés pour la modélisation. Les matériaux présents dans la base de données du logiciel ne sont pas modifiés. Le cas échéant, une nouvelle fiche est créée. Les effets thermiques et magnétiques ne sont pas considérés ici.

Les composantes imaginaires du module élastique et du coefficient de poisson, respectivement Y' et ν', permettent de tenir compte des effets d'amortissements (viscoélasticité) pour les analyses harmoniques.

L'utilisation de matériaux anisotropes comme les composites unidirectionnels (isotrope transverse) est normalement prise en charge le logiciel. Néanmoins, les particularités de la version utilisée induisent une divergence systématique du calcul numérique lorsque le

matériau anisotrope est en contact non plan avec un autre matériau. Pour contourner ce problème, un matériau isotrope équivalent avec les propriétés longitudinales ou transverses est considéré en fonction des études réalisées. Il est alors admis que les résultats dans les directions autres que la direction représentative du composite sont erronés.

Tableau IV.2. Propriétés mécaniques des matériaux élastiques utilisés.

	Platine	Argent	Epoxyde	CUD-L	CUD-T
ρ (×10^3 kg/m^3)	21,500	10,500	1,177	1,600	1,600
Y (×10^9 N/m²)	170	104	4,6	135	10
ν	0,39	0,37	0,37	0,30	0,02
Y' (×10^9 N/m²)	0	0	92	0	0
ν'	0	0	-0,03	0	0

Le Tableau IV.3 présente les propriétés mécaniques et piézoélectriques du matériau considéré pour les différentes études. Le code considère que le matériau piézoélectrique a une structure cristalline hexagonale *6mm* [HEINONEN 2005, I.S.E.N 2009]. Pour les simulations impliquant une céramique avec des additifs de frittage, les coefficients pris en compte sont issus des expérimentations réalisées (cf. Chapitre V) soient :

- 100% des coefficients élastiques ;
- 50% des coefficients piézoélectriques ;
- 75% des permittivités relatives.

Tableau IV.3. Propriétés du matériau piézoélectrique considéré.

PZT5AH			
ρ (×10^3 kg/m^3)	7,5	**d_{33} (× 10^{-12} m/V)**	593
s_{11}^E (× 10^{-12} m²/N)	16,4	**d_{31} (× 10^{-12} m/V)**	-274
s_{33}^E (× 10^{-12} m²/N)	20,8	**d_{15} (× 10^{-12} m/V)**	741
s_{44}^E (× 10^{-12} m²/N)	47,5		
s_{12}^E (× 10^{-12} m²/N)	-4,70	**$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$**	3630
s_{13}^E (× 10^{-12} m²/N)	-7,22	**$\epsilon_{11}^T/\epsilon_0$**	3030

IV.3.1.3. Repères locaux

Les éléments piézoélectriques doivent être associés à un repère local pour définir la direction de polarisation. La version du logiciel utilisée peut considérer une polarisation cylindrique : le repère est défini tel que l'axe *z* coïncide avec la génératrice de l'élément cylindrique. Les vecteurs polarisations au niveau des nœuds sont alors définis par la normale à cette direction passant par le nœud considéré, comme illustré sur la Figure IV.18.

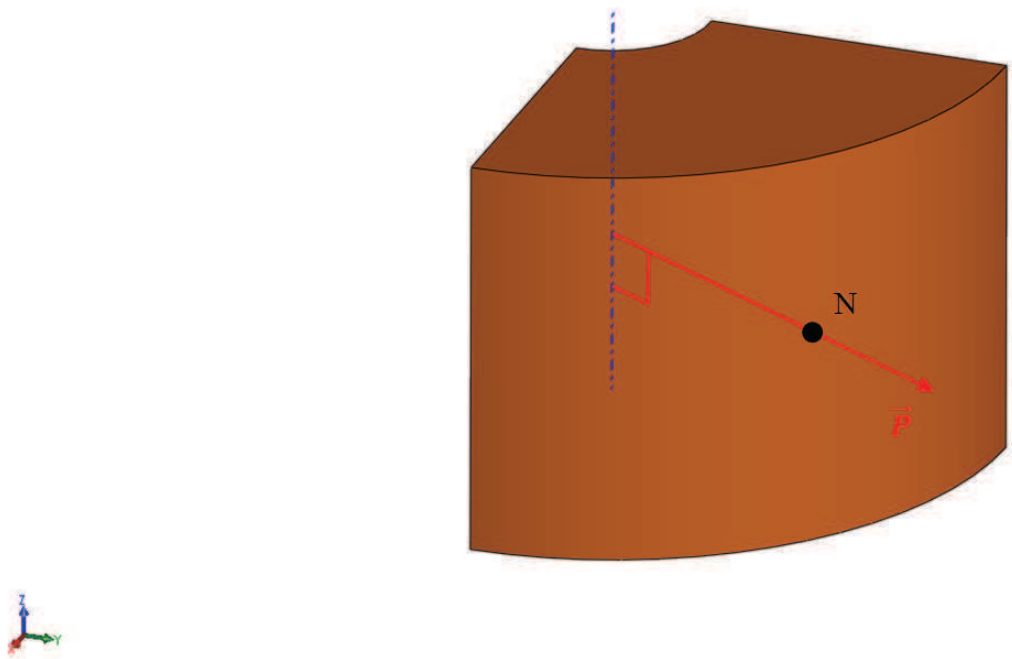


Figure IV.18. Définition d'un vecteur polarisation au niveau d'un nœud à l'aide d'un repère local en coordonnées cylindriques.

Les éléments anisotropes doivent également être associés à un repère local pour définir les directions des propriétés considérées. Pour un matériau isotrope transverse comme les composites unidirectionnels, la direction *z* du repère local correspond à la direction de l'axe des fibres de renfort.

IV.3.2. Stratégie de discrétisation

IV.3.2.1. Type d'éléments

Les nœuds d'un même élément sont liés par des fonctions d'interpolation qui permettent d'interpoler les résultats sur l'ensemble du modèle. Ces fonctions peuvent être linéaires ou quadratiques. Ce type de fonction est déterminant aux frontières d'une surface ou d'un volume. Considérons un élément de surface 2D correspondant à une section de la coque piézoélectrique représentée sur la Figure IV.19. Cette surface peut être associée à un élément à 4 côtés : avec des fonctions d'interpolations linéaires, l'élément possède 4 nœuds et la fonction décrit une approximation de la frontière de l'élément tandis qu'avec des fonctions d'interpolation quadratiques, la frontière peut être parfaitement définie mais il est alors nécessaire de considérer 8 nœuds.

Figure IV.19. Fonctions d'interpolation linéaire et quadratique pour des éléments de surface à 4 côtés pour la discrétisation d'une surface à frontières non linéaires.

Pour des éléments de volumes correspondants (éléments hexaédriques), il faut donc respectivement 8 et 20 nœuds. En considérant des éléments volumiques de base triangulaire (éléments prismatiques), il faut respectivement 6 et 15 nœuds. Sur une structure complète, les éléments quadratiques nécessitent donc 60% de nœuds supplémentaires par rapport à des éléments linéaires.

Pour ne pas alourdir le calcul avec un nombre de nœuds excessif, ce sont les éléments avec des fonctions d'interpolation linéaires qui sont retenus. Des tailles d'éléments suffisamment fines permettront de fournir une bonne approximation de la frontière des surfaces courbes.

IV.3.2.2. Maillage

La conception de la structure dans le préprocesseur consiste à réaliser (ou à importer) les géométries 2D et/ou 3D puis à générer le maillage en définissant un certain nombre de critères (type d'éléments, nombre de nœuds par ligne…).

Les cas étudiés ici sont particuliers dans le sens où toutes les géométries contiennent une direction principale. Il est alors possible de commencer par générer le maillage 2D de la section de base de la structure puis de générer des éléments volumiques dans la direction perpendiculaire. Pour la fibre seule, les surfaces de bases à mailler sont illustrées sur la Figure IV.20.

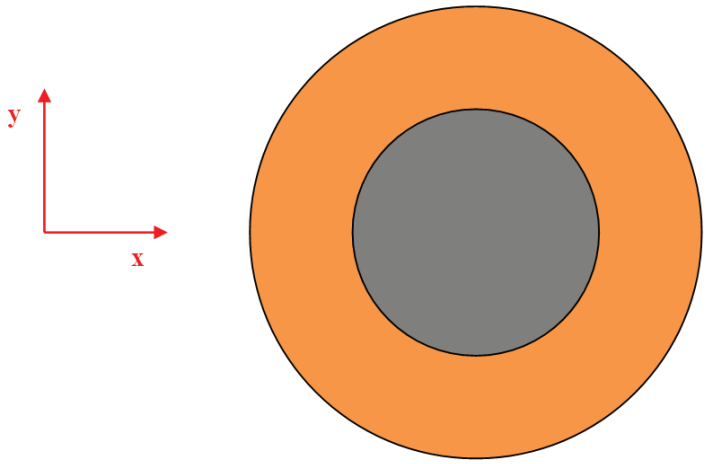


Figure IV.20. Surfaces à mailler à partir d'une section d'une fibre à cœur métallique.

La réalisation du maillage avec l'interface étant laborieuse, un second logiciel (*Patran – MSC Software*) a été utilisé pour définir avec plus de précision le maillage d'un quart de fibre. Le résultat est donné sur la Figure IV.21.

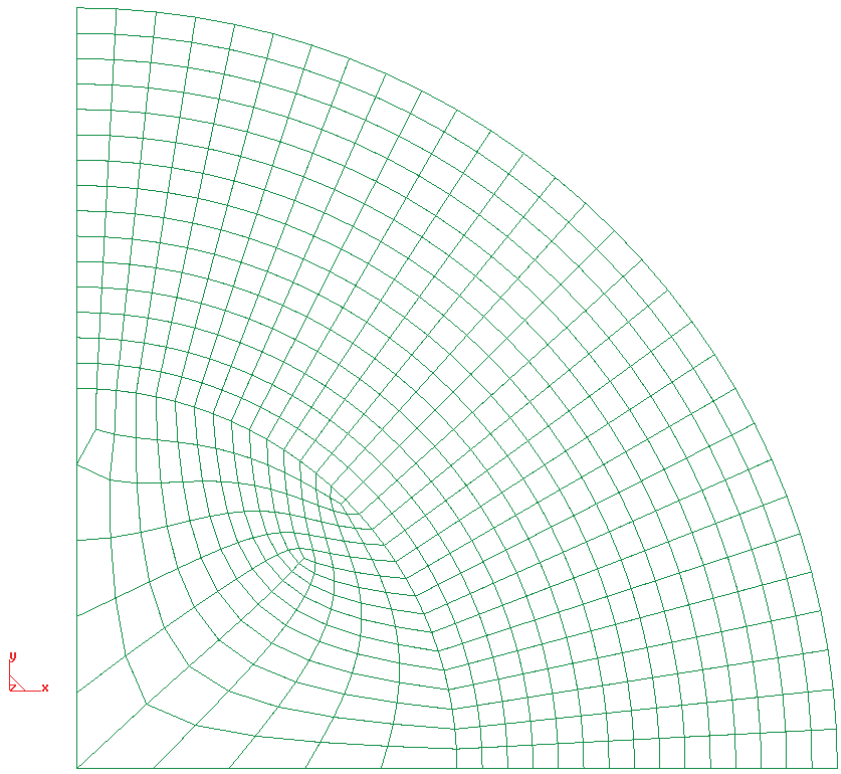


Figure IV.21. Maillage par des éléments à 4 côtés d'un quart de fibre.

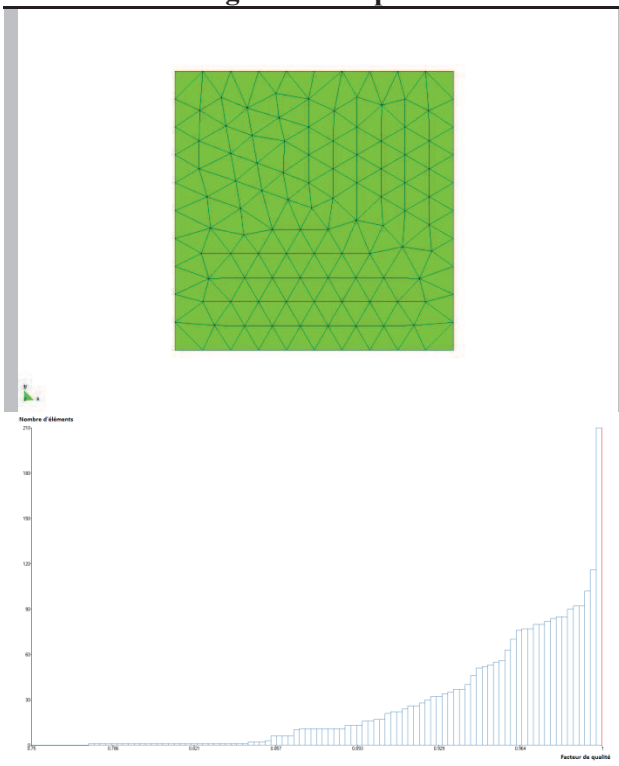
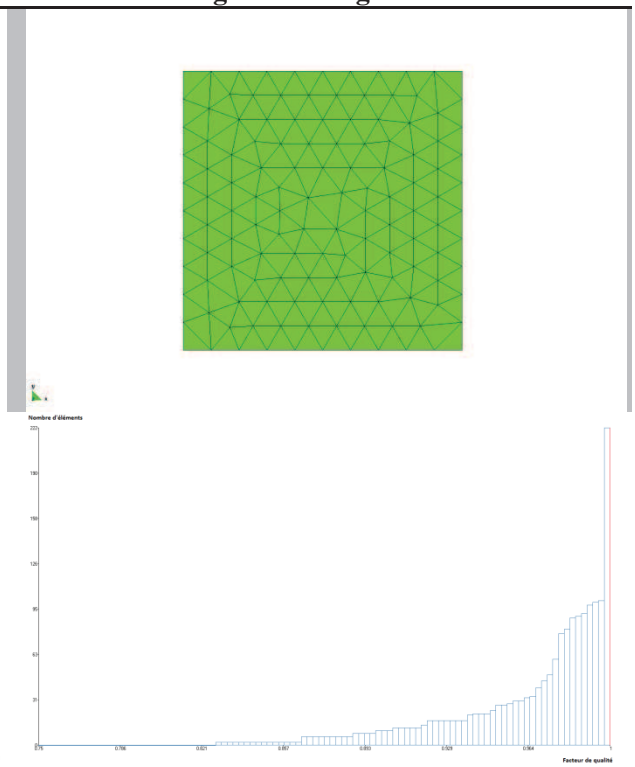
Les éléments des 2 surfaces ont 4 côtés, aussi bien pour la surface de la céramique qui a 4 côtés que pour la surface de l'âme qui en a 3. Sur cet exemple, chaque élément de la couche céramique est invariant suivant θ. De plus, dans cette configuration, le nombre d'éléments (dans la couche céramique au moins) est parfaitement défini puisqu'il résulte de la division de l'arc et de l'épaisseur en nombres définis par l'utilisateur.

Malheureusement, la version utilisée prenant en charge la polarisation cylindrique ne permet plus d'utiliser des fichiers importés. Du fait des spécificités des conditions de maillage imposées par le logiciel, il a été nécessaire de réaliser le maillage en utilisant des algorithmes de maillage automatique avec des éléments triangulaires (maillage non structuré).

L'algorithme de maillage standard consiste à affiner la taille des éléments au niveau des frontières de la surface considérée. A l'intérieur de la surface, les éléments sont générés selon un facteur de taille définit par l'utilisateur qui ne permet plus de contrôler précisément le nombre d'éléments. Un second algorithme permet en plus d'homogénéiser la taille des éléments à l'intérieur des surfaces afin de limiter la distorsion des éléments. Ceci permet de limiter les erreurs de calcul et de ne pas ralentir le processus de convergence [NOURI 2012]. Ces considérations sont illustrées dans le cas du maillage d'une surface carrée. Les arêtes sont maillées par 11 nœuds et la taille des éléments à l'intérieur de la surface est fixée arbitrairement à 2 dans les deux cas.

L'algorithme rapide et l'algorithme rigoureux pour les surfaces sont comparés en termes de facteur de qualité des éléments générés. Ce facteur de qualité est déterminé en comparant la taille des éléments générés à la taille d'un élément supposé parfait (triangle équilatéral ici). Lorsque le facteur de qualité est élevé (→ 1), les erreurs et le temps nécessaire à la convergence du calcul sont réduits. Le Tableau IV.4 présente les maillages obtenus et la distribution des facteurs de qualité des éléments dans les deux cas.

Tableau IV.4. Comparaisons des algorithmes de maillage dans le cas du maillage d'une surface carrée.

Algorithme rapide	Algorithme rigoureux
	

Avec le second algorithme de maillage et bien qu'il ait fallu générer un nombre d'éléments légèrement supérieur, le nombre d'éléments avec des facteurs de qualité médiocres a été considérablement réduit et dans le même temps, le nombre d'éléments "parfaits' a été augmenté.

Lorsque l'on applique ces conditions de maillage à un quart de fibre (courbes et interface cœur/dépôt), on obtient le maillage de la Figure IV.22.

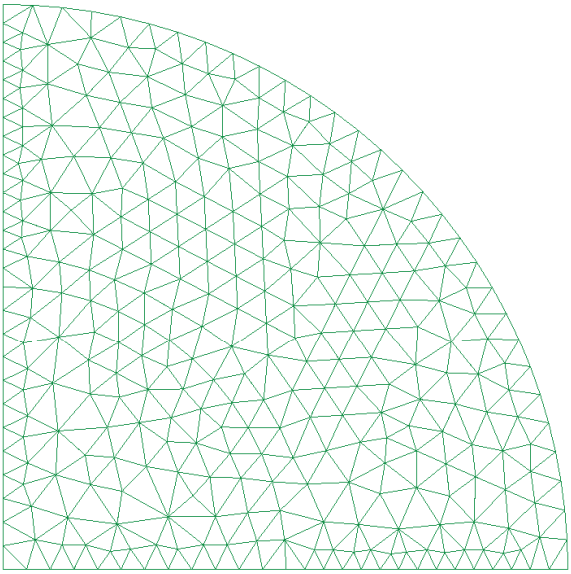


Figure IV.22. Maillage par des éléments triangulaires d'un quart de fibre.

Dans cette configuration, seuls les nœuds à abscisses nulles et à ordonnées nulles sont représentatifs d'une évolution radiale. Il est alors possible de générer des secteurs plus petits pour augmenter le nombre de lignes de nœuds représentatives de l'évolution radiale dans l'interprétation des résultats.

Des calculs préliminaires en utilisant les maillages des figures IV.21 et IV.22 ont permis de vérifier que le maillage automatisé avec des éléments triangulaires suffisamment fins n'apportent pas de différences significatives sur les résultats du calcul malgré la dissymétrie du maillage.

IV.3.3. Conditions limites

IV.3.3.1. Potentiels électriques

Tous les potentiels électriques sont appliqués au niveau des nœuds appartenant aux frontières de la couche céramique. Pour des raisons de convenance, les potentiels nuls sont affectés à l'extérieur de la couche céramique et les potentiels non nuls à l'intérieur comme illustré sur la Figure IV.23. Ceci permet de définir deux surfaces équipotentielles représentatives des électrodes.

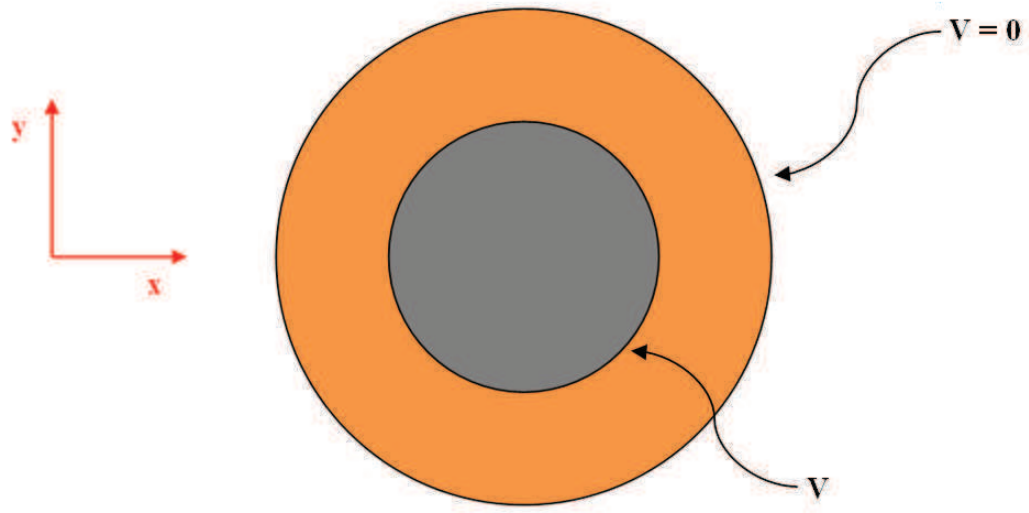


Figure IV.23. Potentiels appliqués dans le cas de l'activation d'une fibre.

Dans la plupart des cas d'activation, les potentiels appliqués sont choisis pour générer des champs électriques équivalents à 1 kV/mm. D'après l'équation IV.1 du modèle analytique, pour les déformations longitudinales, les valeurs de déformation calculées sont équivalents au coefficient piézoélectrique corrigé au facteur 10^6 près.

IV.3.3.2. Force

Les forces interviennent en termes de sollicitations imposées, c'est-à-dire que le calcul ne donne pas directement accès aux efforts générés.

Pour déterminer les courbes déplacement-force des actionneurs, on utilise le principe de réversibilité : l'application d'une force dans le sens contraire du déplacement de la fibre et équivalent à la force générée par fibre sous l'effet de son déplacement.

Dans les conditions usuelles, les forces sont appliquées sur les surfaces (Figure IV.24). Après la discrétisation, les forces sont appliquées au niveau des nœuds des éléments et corrigées pour les nœuds frontières pour que tous les nœuds "voient" effectivement la même force. La spécificité de la version utilisée obligeant à appliquer les conditions limites sur le maillage, cette correction ne peut être aisément prise en compte. L'hypothèse est faite que la finesse du maillage permet de négliger cet effet sur le déplacement longitudinal étudié pour déterminer les courbes force-déplacement.

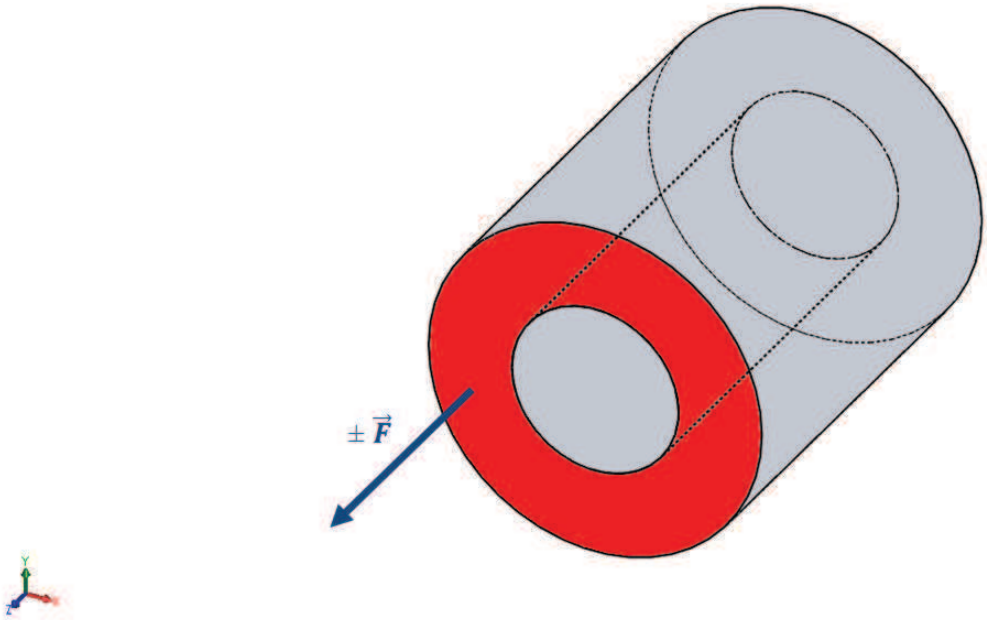


Figure IV.24. Application d'une force pour la détermination des forces de blocage.

Dans ces conditions, la même force $\boldsymbol{f_i}$ est appliquée sur les N nœuds de la surface libre de la coque piézoélectrique, dans le sens contraire du déplacement imposé par la différence de potentiels appliquée, et ce telle que :

$$\vec{F} = \sum_{i=1}^{N} f_i \times (\pm\vec{z}) = N f_i \times (\pm\vec{z}) \qquad (\text{IV.19})$$

Les résultats en termes de force de blocage ne traduiront ici que la force de blocage de l'élément piézoélectrique actif.

IV.3.3.3. Déplacements

Lorsque la structure à modéliser possède des axes de symétrie, il est possible de réduire la géométrie à modéliser et d'imposer des conditions limites qui rendent compte de ces symétries. Ceci revient à bloquer des degrés de libertés en déplacement au niveau de ces axes. Par exemple, pour une fibre seule, le modèle peut se réduire à un quart de fibre en bloquant les déplacements suivant $\boldsymbol{x}$ pour les nœuds de coordonnées *(0, y, z)* et les déplacements suivant $\boldsymbol{y}$ pour les nœuds de coordonnées *(x, 0, z)* comme représenté sur la Figure IV.25.

Ces considérations sont d'une part, intéressantes pour réduire le nombre d'éléments et ainsi réduire le temps de calcul, et d'autre part, sont nécessaires pour étudier le comportement de structures libres car le calcul est erroné s'il n'y a pas au moins un nœud qui définisse une condition limite en déplacement.

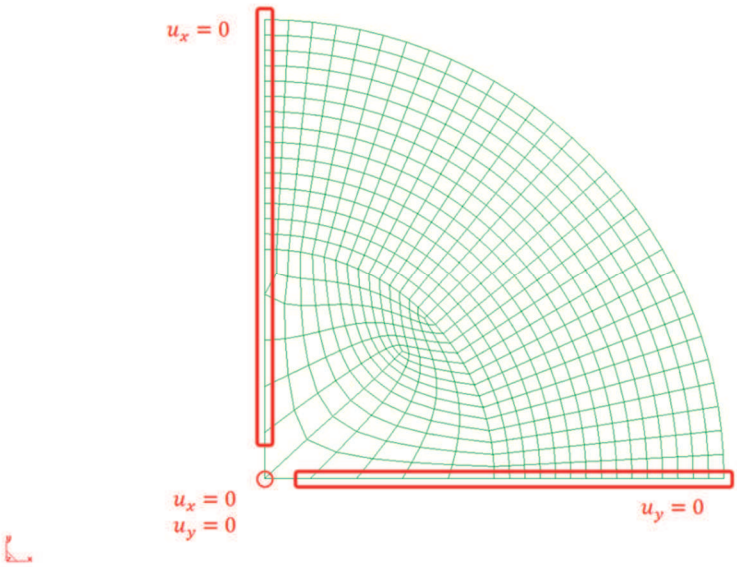


Figure IV.25. Degrés de libertés représentatifs des symétries dans le cas d'une fibre seule.

De la même manière, les conditions limites en déplacement permettent de définir des études en conditions encastré-libre, similaire aux différentes caractérisations expérimentales. Ceci revient à bloquer tous les déplacements (encastrement parfait) des surfaces à une extrémité de la fibre, comme illustré sur la Figure IV.26.

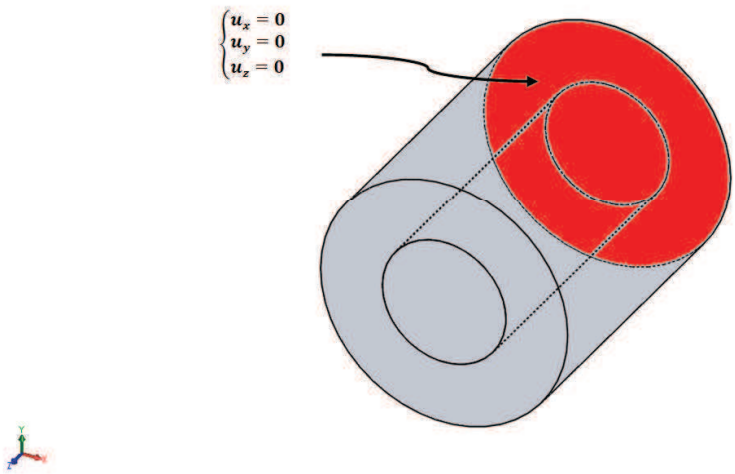


Figure IV.26. Déplacements imposés pour des conditions d'encastrement.

IV.3.3.4. Effets de bords

Le calcul aux éléments frontières du domaine d'étude est souvent sujet à des réserves car il rend compte des conditions limites mécaniques particulières tout en assurant la continuité des déplacements.

Pour illustrer cet effet, la Figure IV.27 présente l'évolution de la déformation longitudinale d'une fibre à cœur métallique encastrée à l'une de ces extrémités en fonction de sa distance à

l'encastrement. Les résultats de déformation sont pris au centre de la fibre, à l'interface céramique/métal, au milieu du dépôt céramique et à l'extrémité de la céramique.

Dans ce cas, en $z = 0$, les déplacements des nœuds sont bloqués tandis que pour les nœuds voisins, les déplacements sont libres. Afin d'assurer la continuité des déplacements, le code éléments finis donne la *meilleure solution* pour rendre compte de ces conditions imposées.

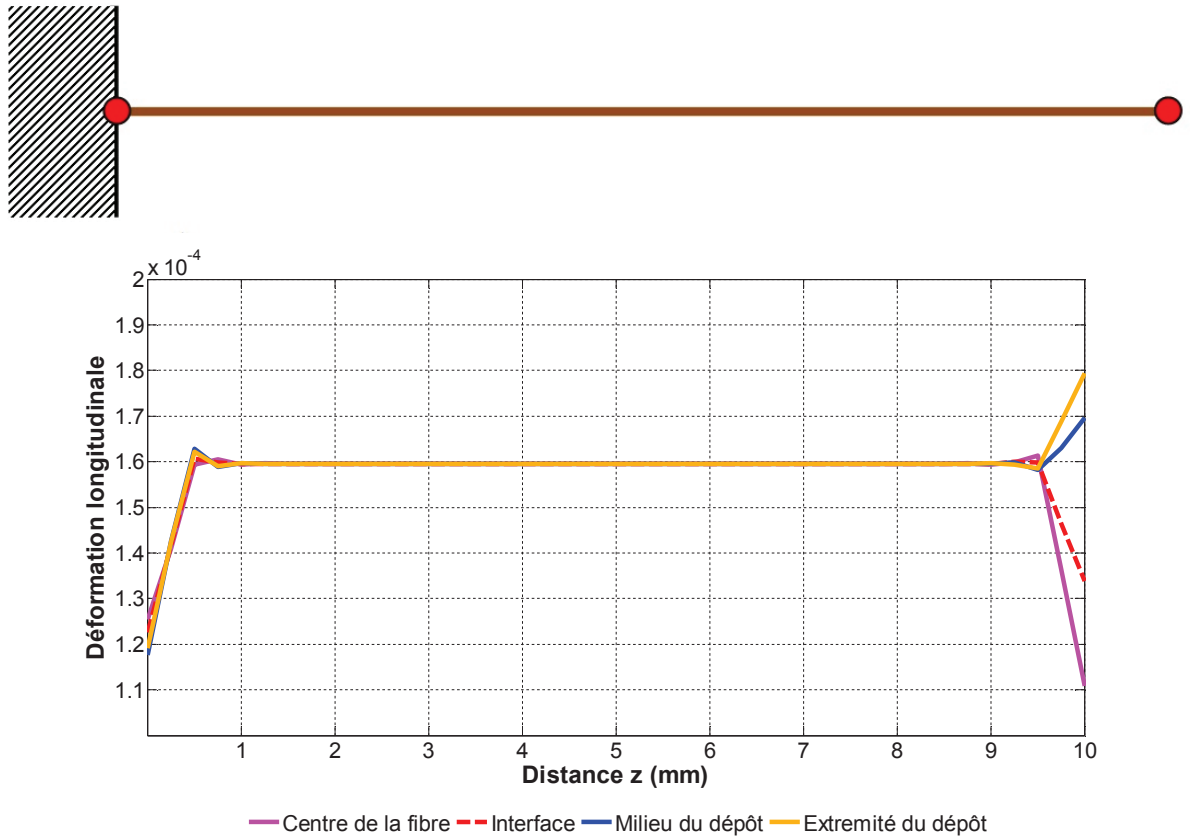


Figure IV.27. Illustration des effets de bords sur le calcul de déformation d'une MCPF en conditions E-L.

Loin des extrémités ($0 \ll z \ll L$), la déformation longitudinale est constante suivant le rayon de la fibre. Dans ce cas de figure, il est nécessaire d'avoir un maillage suffisamment fin suivant **z** pour prendre en compte les résultats dans des zones non perturbées par ces effets de bords.

Cet effet intervient aussi sur la prise en compte des forces au niveau des nœuds. En effet, on constate qu'appliquer une force **F** n'a pas le même effet si elle est appliquée sur un nœud appartenant au centre d'une surface ou au bord d'une surface. La contribution des nœuds voisins a un impact sur les résultats d'un calcul. Cette "erreur" est normalement corrigée automatiquement en considérant une pression appliquée sur une surface. Ainsi les nœuds générés sur la surface ont une contribution de force équivalente en fonction de leur environnement.

Ceci est illustré sur le cas suivant qui présente la déformée d'un barreau en cuivre (Y = 117 GPa) sollicité en traction : soit en appliquant une force au niveau des nœuds, soit en appliquant une pression sur la surface. Le barreau a une section de 1 mm² et il est encastré en z = 0. Chaque section comporte 36 nœuds. Le Tableau IV.5 donne les équivalences de sollicitations en force et en pression.

Tableau IV.5. Données pour l'application d'une sollicitation identique en force et en pression.

Sollicitation		Résultante
$F_i = 10 \times \frac{1}{36}\ N$	36 nœuds	$F_{tot} = 10\ N$
$P = 10^7\ N/m^2$	S = 10^{-6} m²	$F = 10\ N$

La Figure IV.28 présente les mailles déformées et les champs de déplacements suivant **z** dans le cas où la sollicitation se fait par l'intermédiaire des forces au niveau des nœuds (à gauche) ou d'une pression sur les surfaces des éléments (à droite).

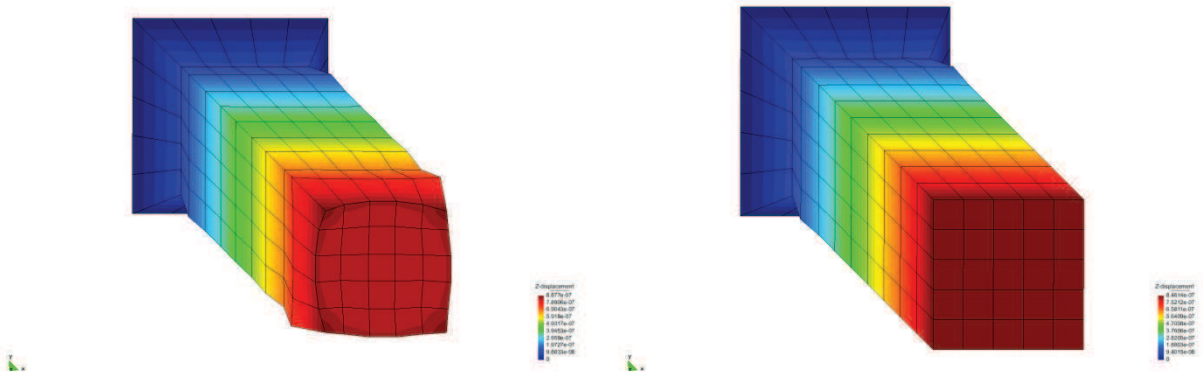


Figure IV.28. Mailles déformées et champs de déplacements suivant z pour l'étude de la traction d'un barreau de 1×1×10 mm³ en appliquant des forces au niveau des nœuds (à gauche) ou des pressions sur les surfaces des éléments (à droite).

Le champ de déplacements dans une section est uniforme lorsque la sollicitation est imposée en appliquant une pression. Sur les bords de la section, le champ de déplacements commence à diverger lorsque la sollicitation est imposée en appliquant des forces.

Les courbes de la Figure IV.29 représentent l'évolution du déplacement suivant **z** le long d'une arrête et le long d'une diagonale de la section limite (z = L) du barreau. Les valeurs peuvent être comparées au calcul analytique donné par l'équation IV.20.

$$F_z = k \times U_z = \frac{ES}{L} \times U_z \rightarrow U_z = 0{,}85\ \mu m \qquad (\text{IV.20})$$

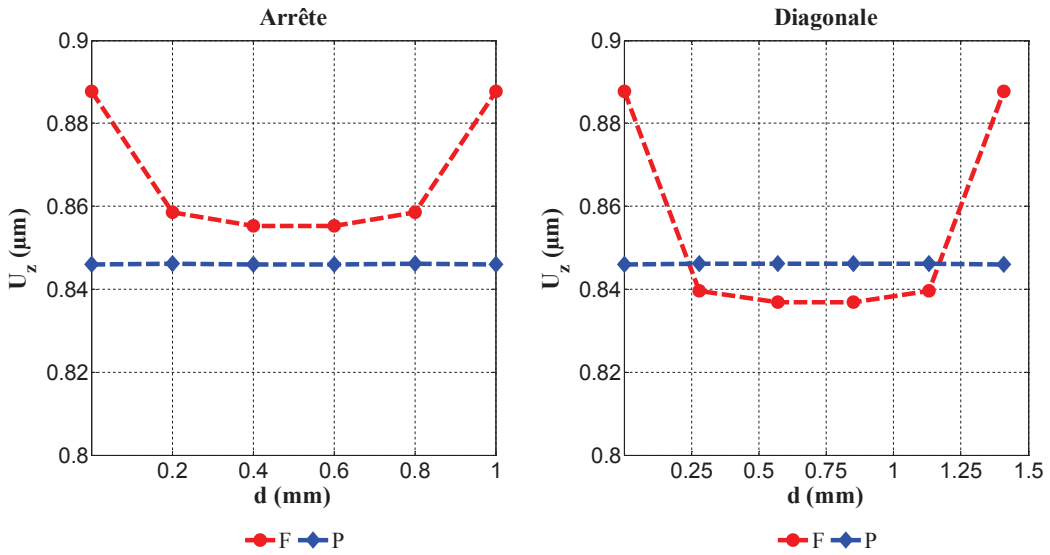


Figure IV.29. Evolution du déplacement suivant z (Uz) le long d'une arrête et long de la diagonale pour une sollicitation de traction imposée à l'aide de forces (-- ●) ou de pressions (--◆).

Les résultats sont un peu différents de ceux obtenus analytiquement d'une part parce que le maillage utilisé est grossier (seulement 11 nœuds sur la longueur) et d'autre part, parce que les résultats sont relevés sur la section limite soumise aux effets de bords. Dans la section centrale du barreau, le calcul de déformation par sollicitation de pression est identique au calcul analytique. Il en est de même avec le calcul de déformation par sollicitation de force avec un maillage un peu plus fin.

De ce fait, les résultats présentés dans les analyses sont déterminés à partir du calcul de déformations dans des sections non soumises aux effets de bords.

IV.3.4. Etudes réalisées : comportement actionneur

IV.3.4.1. Fibres seules

IV.3.4.1.i. Analyse statique

L'étude sur les fibres seules a été réalisée en considérant un diamètre extérieur constant de 250 µm, soit une surface globale de fibre d'environ 0,05 mm². C'est le rayon intérieur qui varie pour étudier différents rapports d'aspect en termes de déformations libres et de forces de blocage. Par ailleurs, un calcul analogue est effectué en considérant une fibre creuse (HFC) afin d'évaluer l'influence du cœur rigide.

Les potentiels appliqués au niveau de l'électrode interne (cœur métallique) sont tels que le champ électrique soit égal à ± 1 kV/mm (selon le sens de la déformation souhaité). Le calcul étant linéaire, il est possible d'extrapoler les résultats pour d'autres champs électriques.

IV.3.4.1.ii. Résultats

La Figure IV.30 présente la déformation de la fibre lorsqu'elle est soumise à un champ électrique de -1 kV/mm. Les traits noirs représentent la fibre initiale : sous l'effet du champ électrique, la déformée présente un allongement dû à l'effet 31 (direction ***z***) et une contraction due à l'effet 33 (plan ***xy***). Pour la déformée, les déplacements sont volontairement amplifiés d'un facteur 10^9 pour améliorer la qualité du rendu visuel.

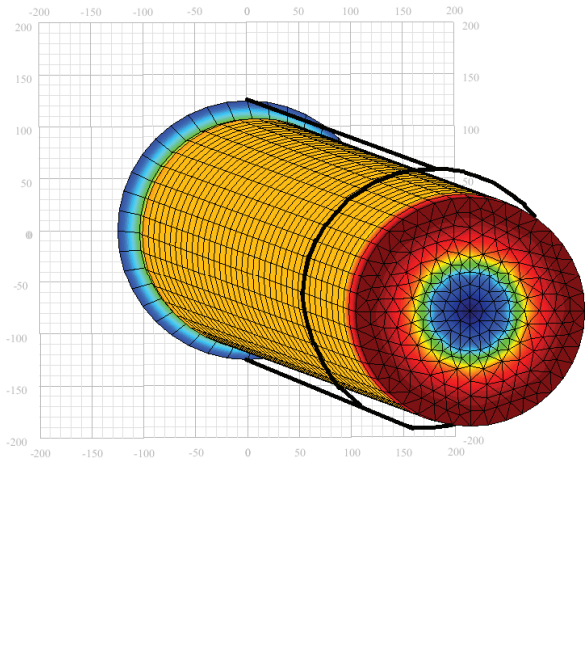


Figure IV.30. Maillage déformé d'une fibre seule sous E=-1kV/mm et champ de déformation longitudinal Sz (amplification $\times 10^9$).

La Figure IV.31 présente la courbe de fonctionnement d'une fibre tubulaire avec un rapport d'aspect de 0,7 (cas favorable) pour donner un ordre de grandeur des caractéristiques maximales atteignables, étant donné que la présence du cœur rigide réduit les capacités de la fibre.

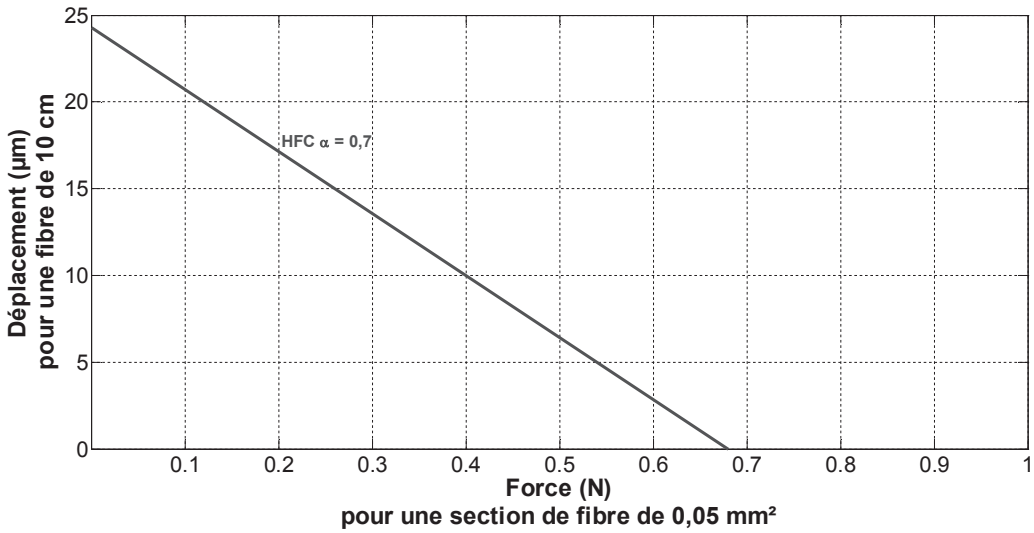


Figure IV.31. Courbe de fonctionnement d'une fibre tubulaire de 250 µm de diamètre avec un rapport d'aspect de 0,7.

Dans ce premier cas de figure, le déplacement libre (en l'absence de contrainte mécanique extérieure) de la fibre tubulaire de 10 cm de longueur est d'environ 25 µm et la force de blocage (au-delà de laquelle il n'y a plus aucun déplacement) est de 0,68 N.

La Figure IV.32 présente les courbes de fonctionnement de fibres à cœur métallique en platine avec des rapports d'aspect de 0,3 0,5 et 0,7 superposées à la courbe de fonctionnement de la fibre tubulaire avec un rapport d'aspect de 0,7.

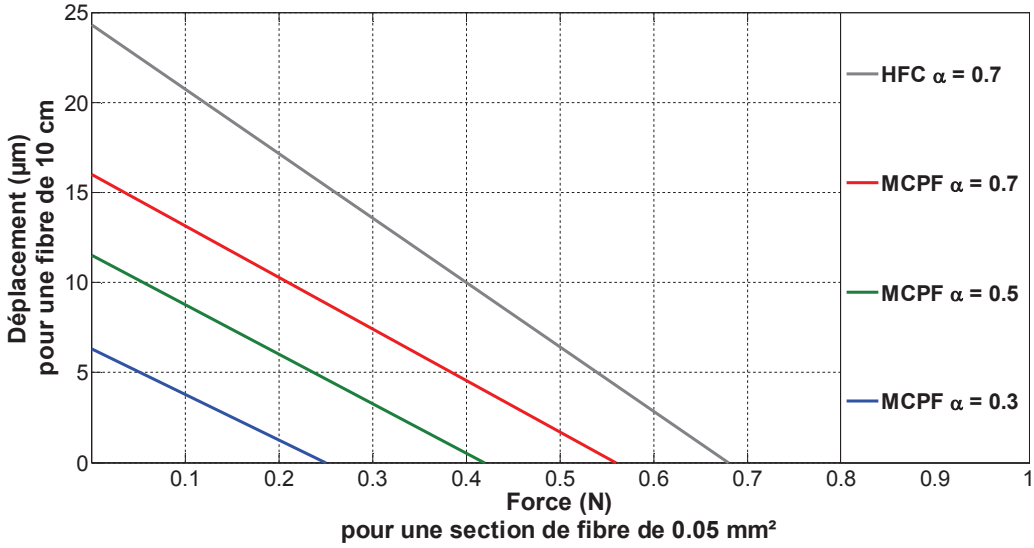


Figure IV.32. Courbes de fonctionnement de fibres à cœur métallique (platine) de 250 µm de diamètre à rapports d'aspect variables.

La présence du cœur rigide réduit la capacité de déformation de la fibre pour un rapport d'aspect donné (comparaison HFC et MCPF α = 0,7). La diminution du rapport d'aspect entraîne une réduction du volume de matériau actif et réduit ainsi la capacité de déformation et la force de blocage de la fibre.

Par ailleurs, la raideur évolue peu en fonction du rapport d'aspect pour les MCPF alors que le changement de pente est notable entre HFC et MCPF α = 0,7 correspondant encore une fois à la présence du cœur métallique.

La Figure IV.33 présente l'évolution du déplacement libre et de la force de blocage en fonction du rapport d'aspect pour les MCPF.

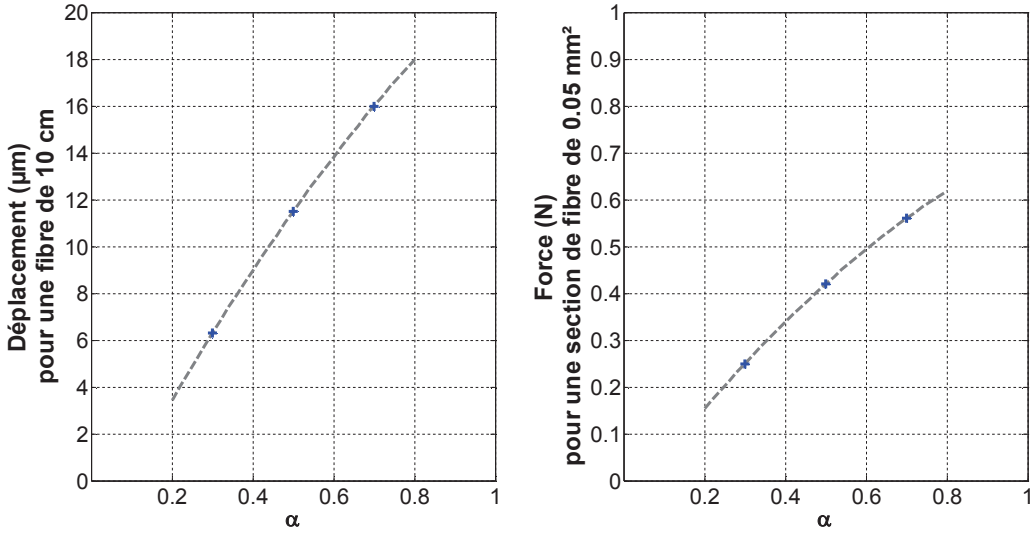


Figure IV.33. Evolution du déplacement libre (à gauche) et de la force de blocage (à droite) en fonction du rapport d'aspect pour les MCPF à cœur en platine.

L'évolution avec le rapport d'aspect est quasiment linéaire : la réduction du rapport d'aspect de 29% (0,7 → 0,5) conduit à une réduction d'environ 28% de la déformation libre et de la force de blocage.

IV.3.4.1.iii. Influence du maillage

Dans le cas où α = 0,7, pour des conditions de maillage standards, la valeur de force de blocage est de 0,56 N. Cette force étant déterminée par la surface du matériau piézoélectrique, l'utilisation d'un maillage avec des éléments quadratiques permet d'affiner le contour des surfaces limites de la section. Dans ce cas de figure, la force de blocage est de 0,59 N, c'est-à-dire plus proche de la valeur déterminée à l'aide du modèle analytique (0,61 N). Néanmoins, le temps de définition du modèle et le temps de calcul sont fortement augmentés et c'est pour cela que l'interpolation linéaire a continué d'être utilisée. Le Tableau IV.6 reprend les résultats obtenus à partir de différents maillages.

Tableau IV.6. Comparaison de différents maillages sur le calcul des forces de blocage (cas d'une MCPF de 250 µm de diamètre avec α = 0,7).

Type de maillage (qualitatif)	**Normal**	**Normal**	**Fin**	**Très fin**
Interpolation	Linéaire	Quadratique	Linéaire	Linéaire
Nombre de nœud	10 865	52 297	57 267	218 621
Nombre d'éléments	19 520	19 520	109 200	424 000
Force de blocage (N)	0,56	0,59	0,56	0,56

Ces résultats permettent de constater que les fonctions d'interpolation entre les nœuds sont prédominantes pour la détermination des forces de blocage, puisque les bords des surfaces sont alors mieux définis.

IV.3.4.2. Fibres intégrées

IV.3.4.2.i. Déformation longitudinale

Les fibres sont considérées ici comme uniformément distribuées dans le volume de la structure telles qu'elles représentent une fraction volumique v_f. La géométrie peut alors se ramener au volume élémentaire représentatif (VER) décrit sur la Figure IV.34.

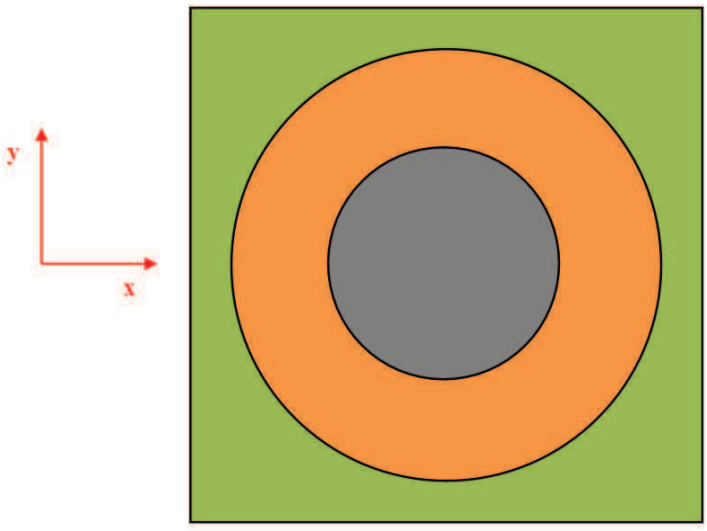


Figure IV.34. Volume élémentaire représentatif pour des fibres uniformément intégrées dans une structure.

L'étude est réalisée en prenant en compte une surface globale constante représentant 1 mm² de section. Les rayons varient pour étudier l'influence du rapport d'aspect avec une fraction volumique de fibres favorable (v_f = 60%) avec un cœur en platine dans le cas d'une structure souple en époxyde et dans le cas d'une structure rigide en CFRP UD.

L'utilisation d'une fraction volumique très élevée permet d'exacerber les capacités d'actionnement pour mieux évaluer dans un premier temps l'influence des propriétés élastiques de la matrice. Pour utiliser ces fibres sous formes de patchs, cette fraction volumique est envisageable mais pour l'intégration au sein même d'une structure, les fractions volumiques doivent être beaucoup plus faibles. Par conséquent, dans ces conditions, les résultats présentent les variations dans l'environnement proche de la fibre.

IV.3.4.2.ii. Résultats

La Figure IV.35 présente la déformation du VER lorsque la fibre est soumise à un champ électrique de -1 kV/mm. Les traits noirs représentent la structure initiale avant déformation : sous l'effet du champ électrique, la déformée présente un allongement dans la direction ***z*** (mode 31) et une contraction dans le plan ***xy*** (mode 33).

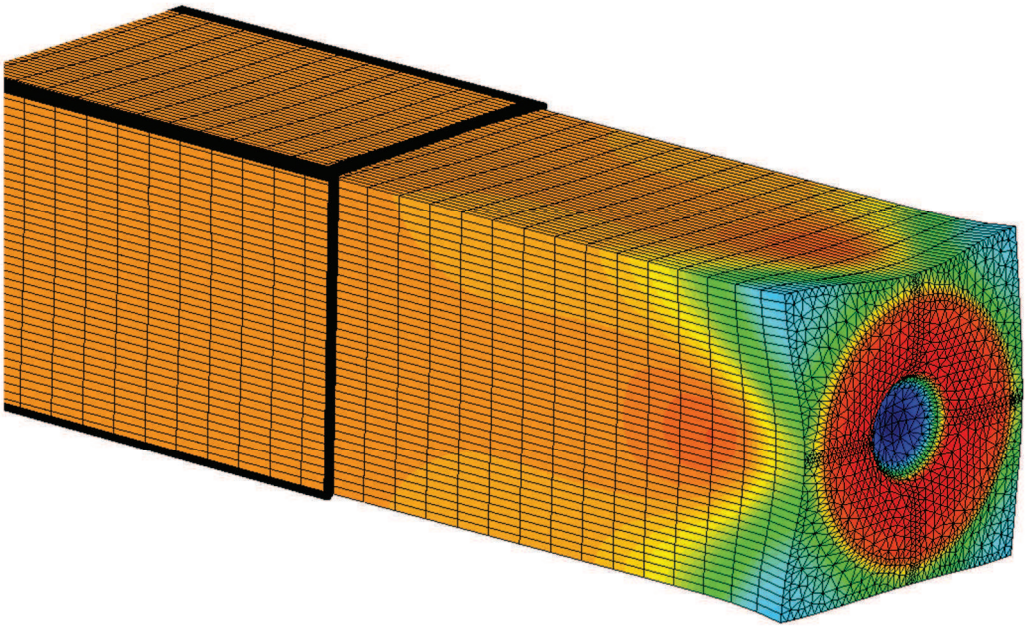


Figure IV.35. Maillage déformé sous E=-1kV/mm et champ de déformation longitudinal Sz (amplification ×10^9).

La limite du VER représentée sur la figure, bien que soumise aux effets de bords, permet de constater que le champ de déformation est maximal dans la coque céramique qui est le composant actif de la structure. De fait, dans les parties passives (matrice, cœur), le champ de déformation est bien inférieur. Assez loin des bords (environ 2 mm pour le maillage utilisé sur une longueur totale de 10 mm), on constate que le champ de déformation est homogène dans toute la structure.

Les figures IV.36 et IV.37 présentent les résultats obtenus avec une matrice souple de type époxyde en termes de courbes de fonctionnement force-déplacement.

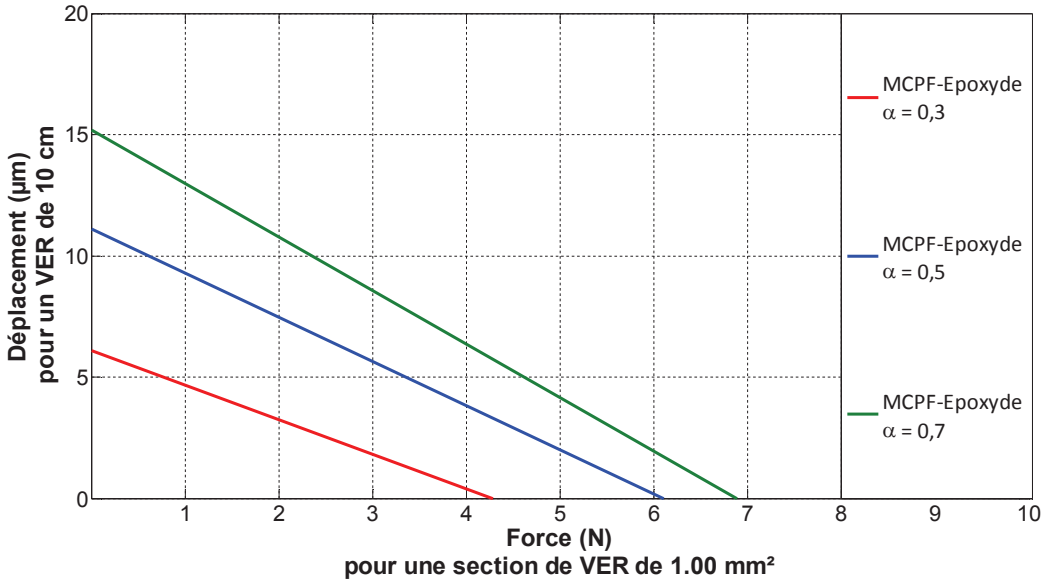


Figure IV.36. Courbes de fonctionnements de MCPF avec différents α intégrées uniformément dans une matrice époxyde.

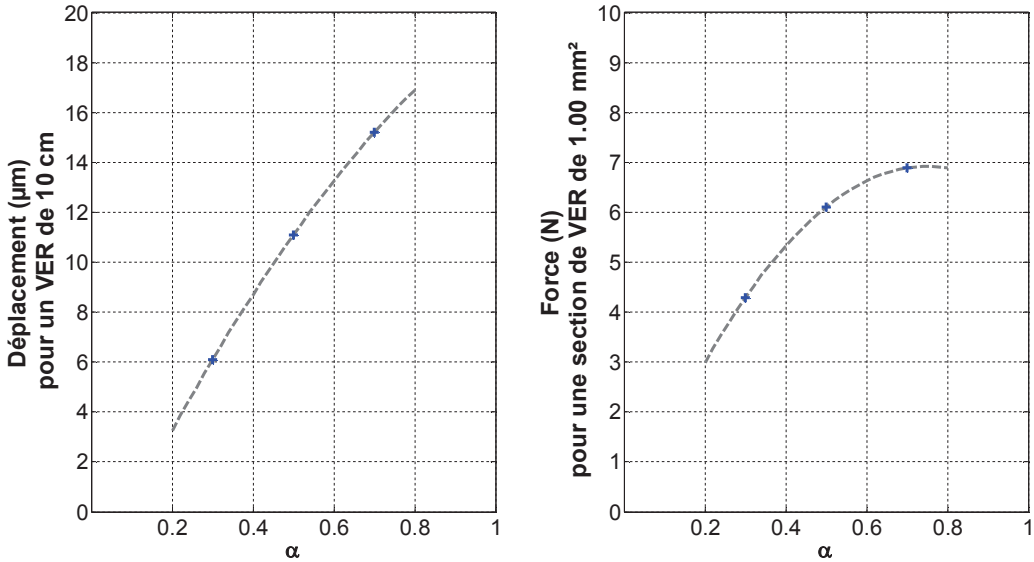


Figure IV.37. Evolution du déplacement et de la force de blocage en fonction du rapport d'aspect pour des MCPF uniformément distribuées dans une matrice époxyde.

Les rapports d'aspect plus élevés favorisent des déformations et des efforts plus élevés. De plus, en comparant les pentes des courbes déplacement-force, on constate que la rigidité diminue avec l'augmentation du rapport d'aspect, suite à la réduction de la fraction volumique de l'élément le plus rigide : le cœur en platine dans le cas présent.

Les figures IV.38 et IV.39 présentent les résultats obtenus avec une matrice rigide de type CFRP UD en termes de courbes de fonctionnement force-déplacement.

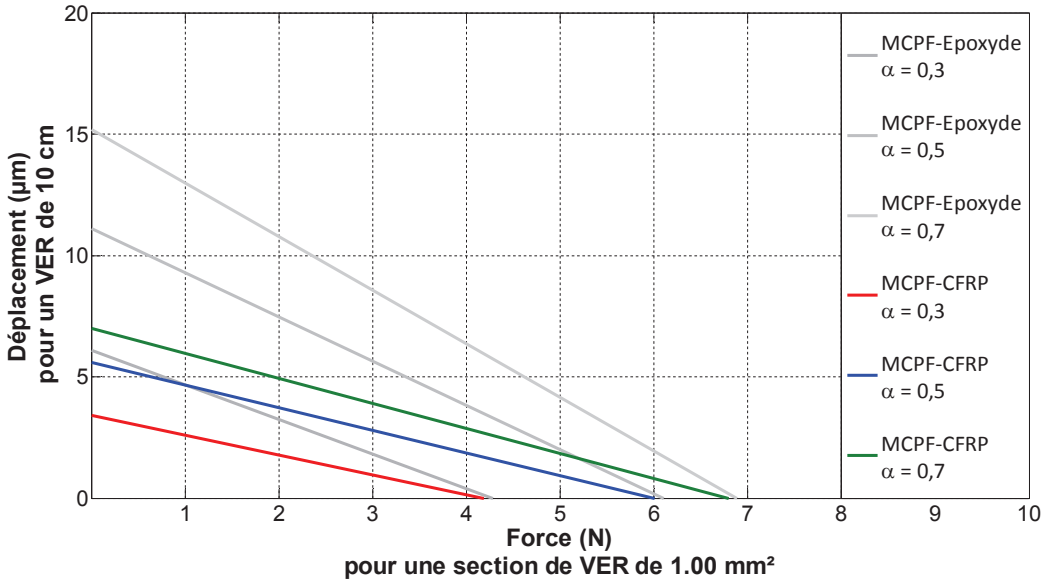


Figure IV.38. Courbes de fonctionnements de MCPF avec différents α intégrées uniformément dans une matrice CFRP UD.

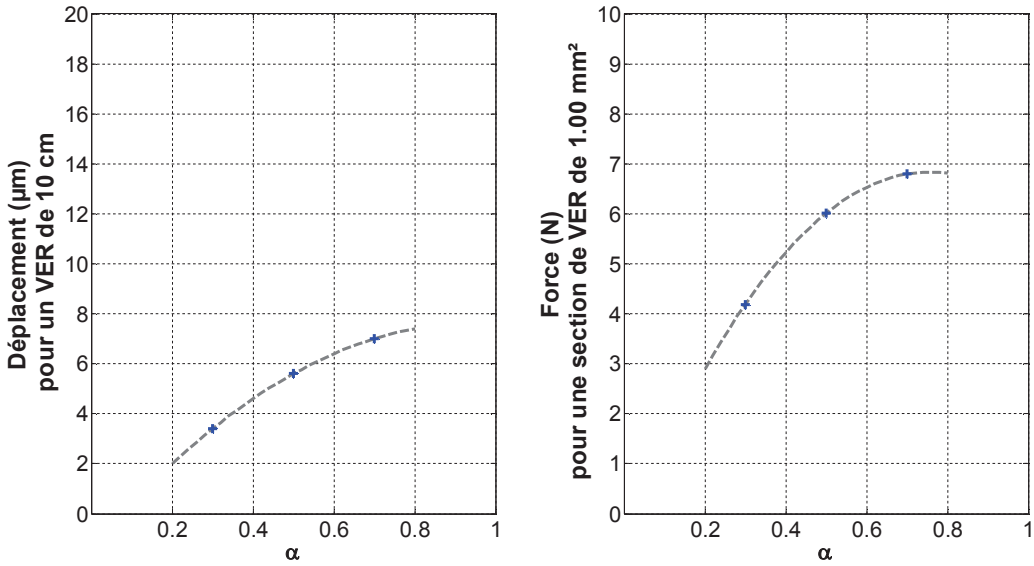


Figure IV.39. Evolution du déplacement et de la force de blocage en fonction du rapport d'aspect pour des MCPF uniformément distribuées dans une matrice CFRP UD.

Les mêmes évolutions avec le rapport d'aspect ou avec les pentes sont observées en utilisant une matrice plus rigide. Par contre, alors que les forces de blocage sont quasiment les mêmes (même volume de matériau actif), les niveaux de déformations sont quant à eux beaucoup plus faibles suite à la rigidification du VER en utilisant le CFRP. Par exemple, dans le cas le plus favorable modélisé (α = 0,7), la déformation libre est divisée par 2 pour une variation de rigidité de matrice d'un facteur 27.

IV.3.4.2.iii. Déformation transverse

La flexion d'une structure peut être obtenue en plaçant les fibres à la surface de celle-ci, dans le cas le plus simple, ou en activant différemment les fibres intégrées dans le volume de la structure.

Dans le premier cas, l'épaisseur et la rigidité du matériau à déformer sont prépondérantes sur la flèche obtenue. L'exemple considéré est basé sur la géométrie définie dans l'étude des déformations longitudinales dans laquelle la moitié supérieure de la matrice est supprimée, ce qui revient à une section de matrice de 0,5 mm². Les figures IV.40 et IV.41 présentent la déformée du VER lorsque la fibre est soumise à un champ électrique de -1 kV/mm. Les traits noirs représentent la structure initiale avant déformation : sous l'effet du champ électrique, la déformée présente une flèche dans le plan ***yz*** consécutif à un allongement dans la direction ***z*** dû au mode 31.

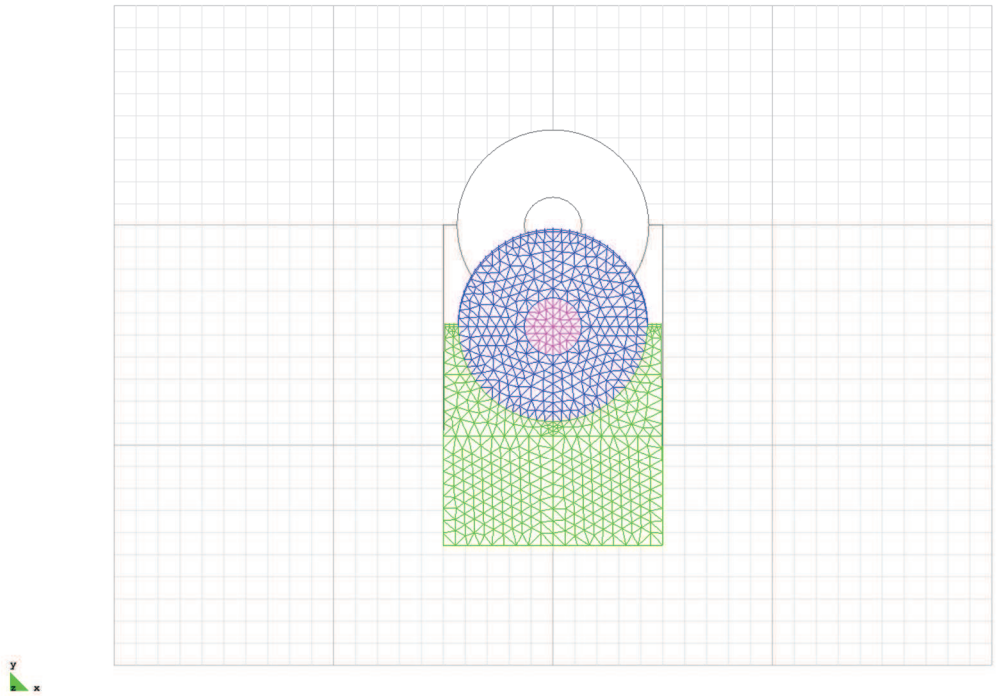


Figure IV.40. Déformée dans le plan XY d'une fibre intégrée à la surface d'une structure (amplification $0{,}1\times10^9$).

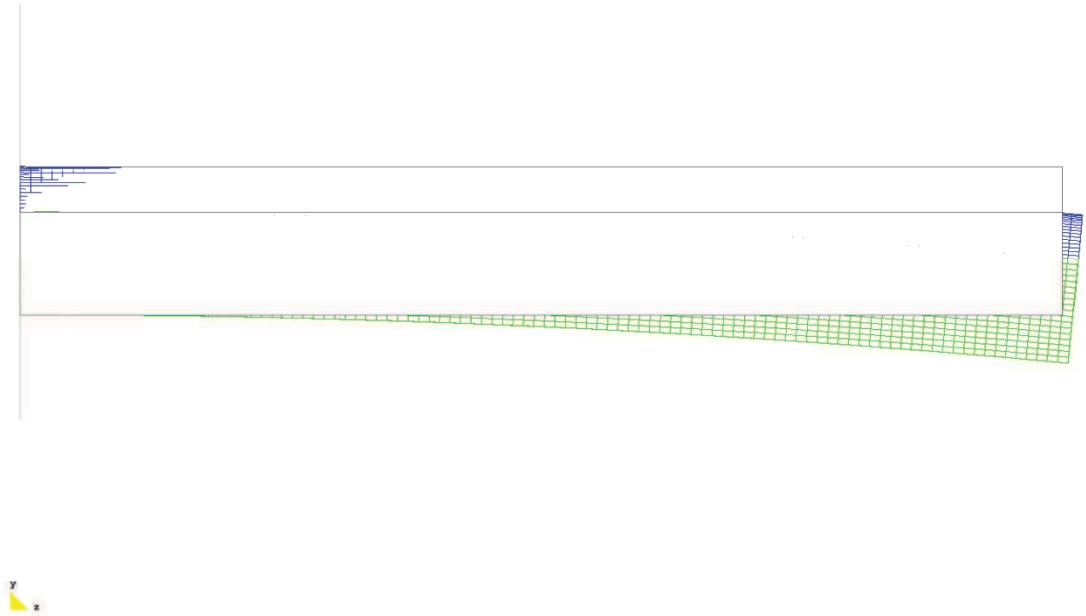


Figure IV.41. Déformée dans le plan YZ d'une fibre intégrée à la surface d'une structure (amplification $0{,}1\times10^9$).

Pour étudier l'influence de l'épaisseur de la structure, celle-ci est augmentée pour représenter une section de 1 mm². Les calculs sont menés pour une fibre Pt/PZT5AH avec α = 0,7 pour une structure souple en résine époxyde et une structure rigide en CFRP UD.

La Figure IV.42 présente l'évolution des déplacements dans les trois directions de l'espace en chaque nœud de l'axe de la fibre. Les résultats sont pris au centre de la fibre pour des raisons de convenance dans l'utilisation du postprocesseur.

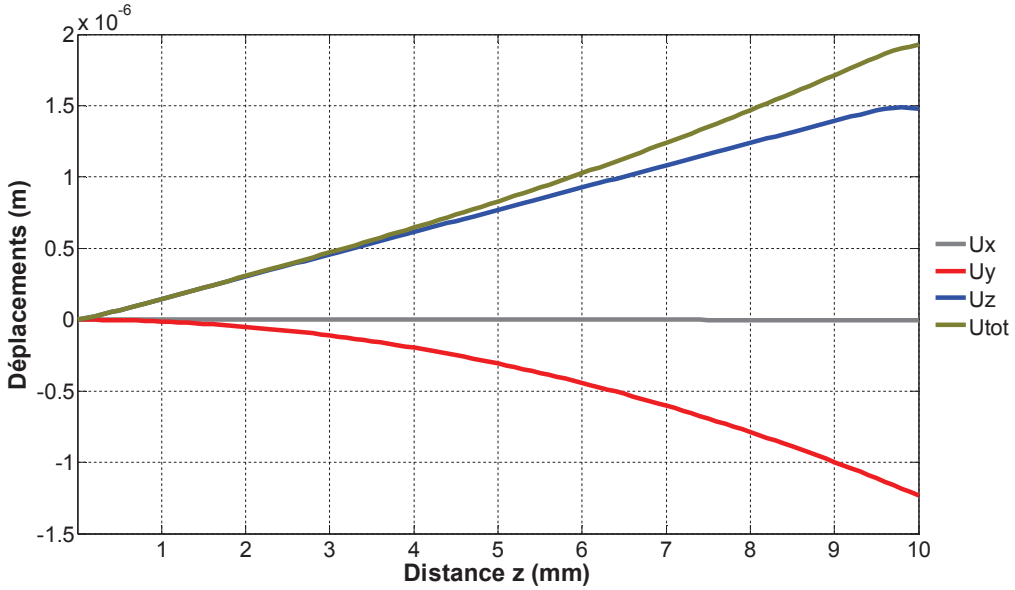


Figure IV.42. Résultats en déplacements pour une matrice époxyde de 0,5 mm d'épaisseur.

Les déplacements résultants suivant ***x*** et ***y*** sont cohérents : le déplacement est quasiment nul suivant ***x*** au vu de la symétrie de la structure alors que celle-ci présente une flèche d'allure quadratique suivant ***y***. Le déplacement longitudinal suivant ***z*** est bien proportionnel à la longueur de la fibre.

La longueur de la fibre a été doublée pour vérifier l'allure des déplacements (longitudinal et flèche) avec la longueur de la fibre. Les résultats sont présentés sur la Figure IV.43.

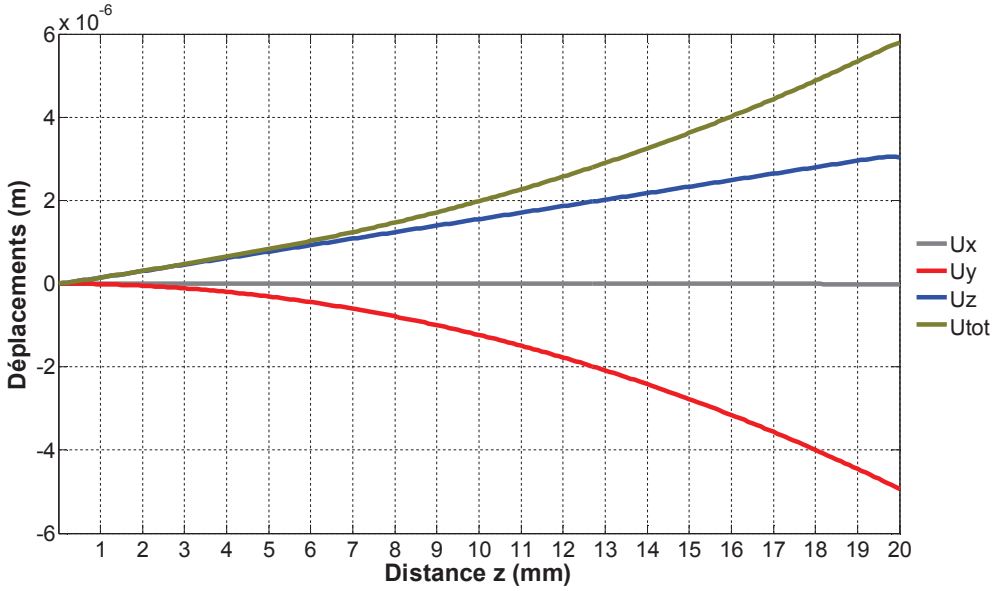


Figure IV.43. Résultats en déplacements pour une matrice époxyde de 0,5 mm d'épaisseur et de 20 mm de longueur.

Les effets de bords étant négligeable sur une telle longueur avec le maillage utilisé, il est possible de continuer à utiliser la longueur la plus courte.

Le calcul est ensuite effectué en considérant une épaisseur de 1 mm. La Figure IV.44 présente l'évolution des déplacements dans les trois directions de l'espace.

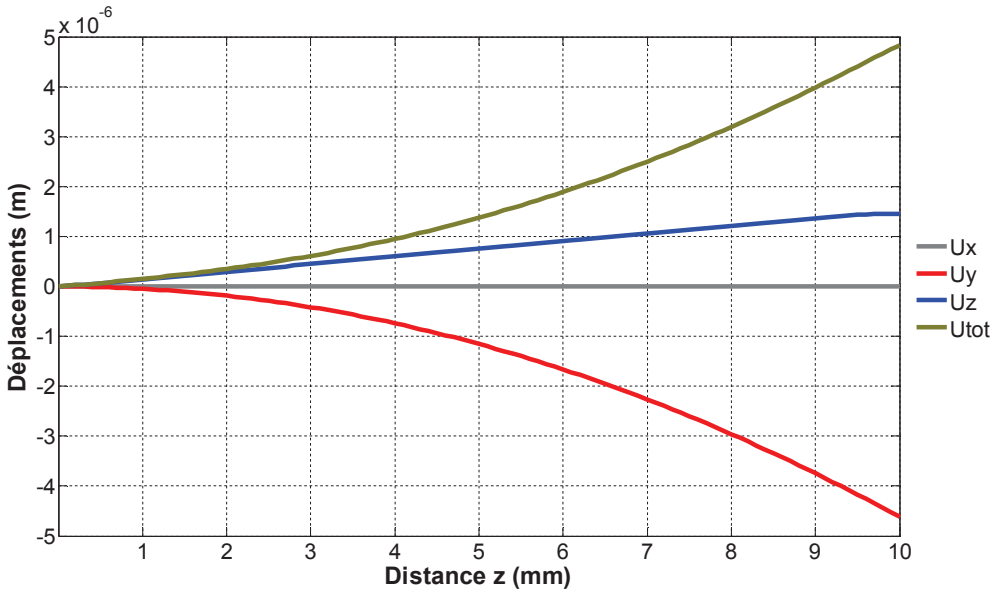


Figure IV.44. Résultats en déplacements pour une matrice époxyde de 1 mm d'épaisseur.

On constate que l'augmentation de l'épaisseur de la structure a deux effets :

- l'allongement longitudinal (U_z) est réduit, suite à l'augmentation de la rigidité de la structure (le volume de matériau passif a augmenté) ;
- la flèche résultante (U_y) est augmentée suite au déplacement du centre d'inertie de la structure. Le moment fléchissant augmente car le centre d'inertie s'écarte de la fibre provoquant ainsi une flèche plus importante.

Les mêmes calculs sont réalisés en utilisant une matrice CFRP UD. Les figures IV.45 et IV.46 présentent les résultats obtenus en déformations et en déplacements pour des épaisseurs de 0,5 et 1 mm.

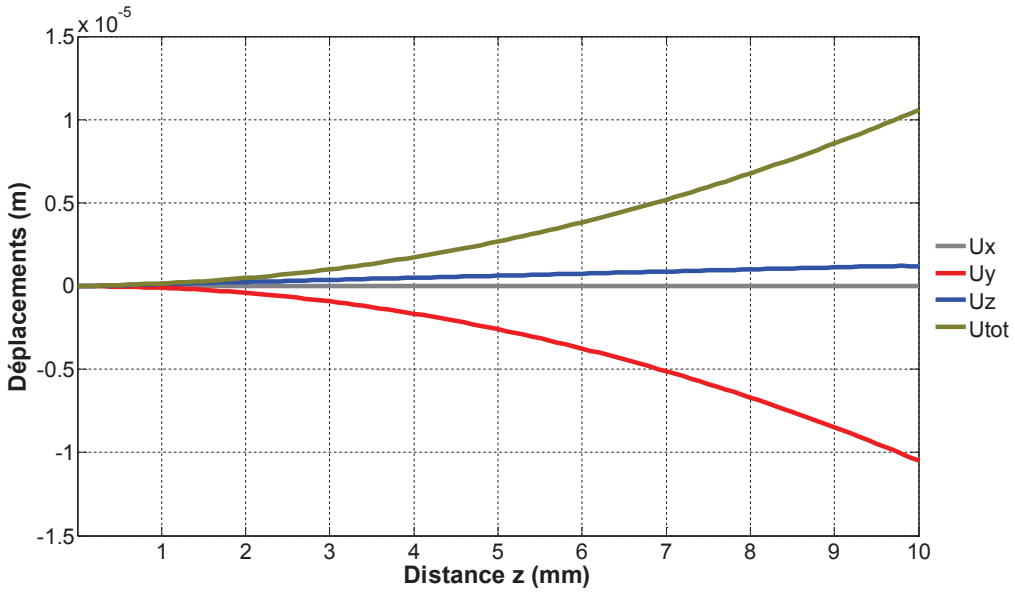


Figure IV.45. Résultats en déplacements pour une matrice CFRP UD de 0,5 mm d'épaisseur.

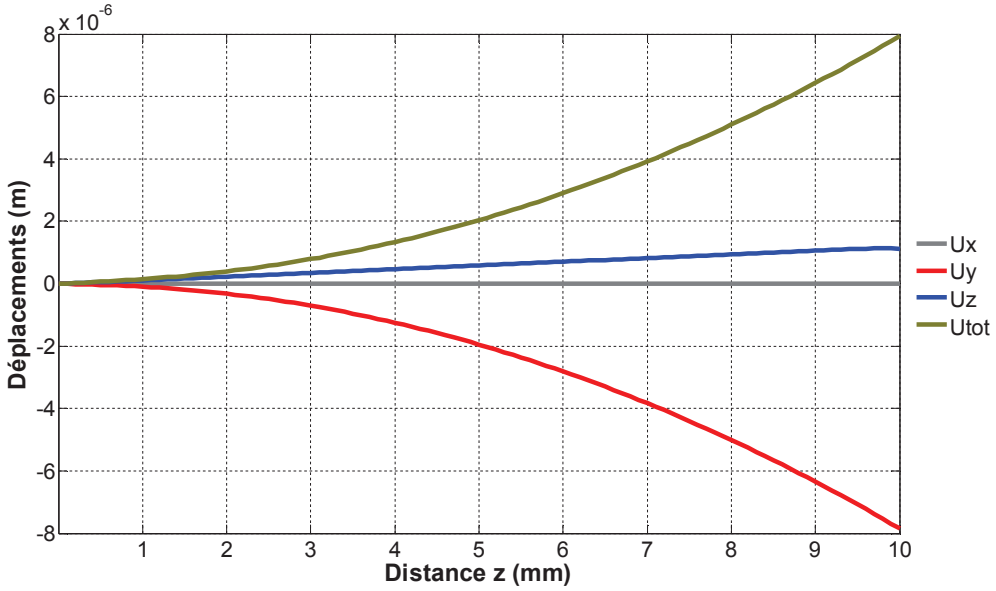


Figure IV.46. Résultats en déplacements pour une matrice CFRP UD de 1 mm d'épaisseur.

L'effet de l'épaisseur sur l'allongement obtenu est similaire à celui observé avec une matrice en époxyde. Par contre, l'effet sur la flèche est contraire à celui observé avec une matrice époxyde. Le Tableau IV.7 reprend les résultats en déplacements à mi-longueur dans ces différentes configurations.

Tableau IV.7. Déplacements U_y et U_z à mi-longueur en fonction de l'épaisseur et du matériau à déformer.

	U_z (µm)	U_y (µm)	U_{tot} (µm)
Epoxyde 0,5 mm	0,77	0,31	0,83
Epoxyde 1,0 mm	0,75	1,16	1,38
CFRP UD 0,5 mm	0,62	2,60	2,67
CFRP UD 1,0 mm	0,58	1,95	2,04

Plusieurs effets antagonistes expliquent la différence des déplacements globaux observés en fonction de l'épaisseur et de la nature du matériau considéré :

- l'augmentation de l'épaisseur de matériau conduit à une augmentation du moment quadratique ce qui tend à diminuer la flèche ;
- le déplacement de la fibre neutre conduit à une augmentation du moment fléchissant induit par la déformation de la fibre piézoélectrique, ce qui tend à augmenter la flèche ;
- l'intersection éventuelle de la fibre neutre avec l'élément actif piézoélectrique conduirait à une annulation partielle des efforts générés par le matériau piézoélectrique, ce qui aurait tendance à diminuer la flèche.

Pour le composite CFRP UD, on considère ici des matrices à fibres alignées dans la même direction dans toute l'épaisseur. En général, les structures réelles utilisées en aéronautique considèrent des empilements de plis orientés différemment. En considérant la direction principale d'un pli, les autres plis peuvent être orientés à ±45° ou à 90° pour optimiser les propriétés directionnelles du stratifié dans les directions des contraintes lors de son utilisation.

Le même type de calcul que précédemment est alors effectué en considérant une matrice en CFRP UD de 1,5 mm d'épaisseur avec deux conceptions différentes :

- dans toute l'épaisseur, la direction des fibres de renfort est la même que la fibre piézoélectrique à âme métallique intégrée à la surface du composite ;
- l'épaisseur de composite est constituée de 3 plis de 500 µm chacun orientés à 0°/90°/0°. Cette configuration est semblable à celle utilisée par Sato *et al.* pour l'élaboration de *smart-boards*.

La Figure IV.47 présente les deux cas de figures étudiés. Le premier cas permet d'étendre l'étude précédente en faisant varier de nouveau l'épaisseur du matériau sur lequel la fibre active est intégrée. Le second permet d'évaluer l'influence du module d'élasticité longitudinal dans le cas d'un matériau stratifié.

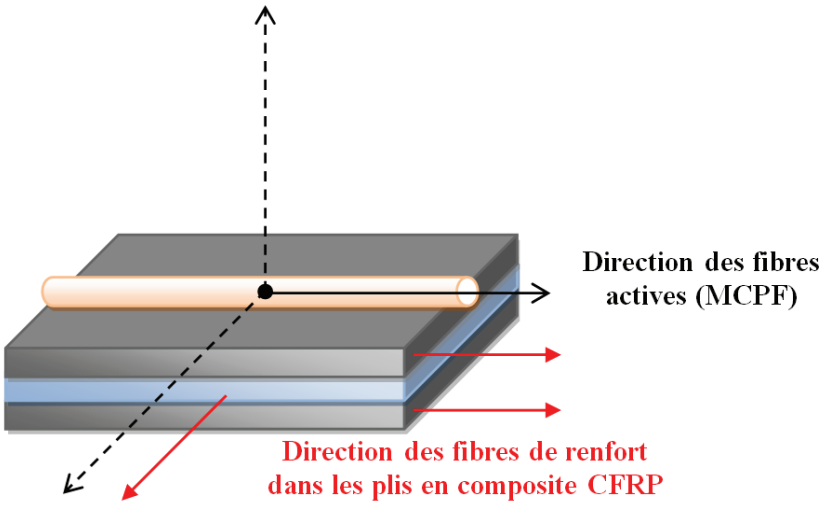


Figure IV.47. Schéma d'intégration d'une fibre active à la surface d'un stratifié formé de 3 plis en CFRP UD orientés 0°/90°/0°.

La Figure IV.48 présente les résultats en déplacements pour une matrice CFRP de 1,5 mm constituée de 3 plis orientés dans la direction de la fibre active (0°).

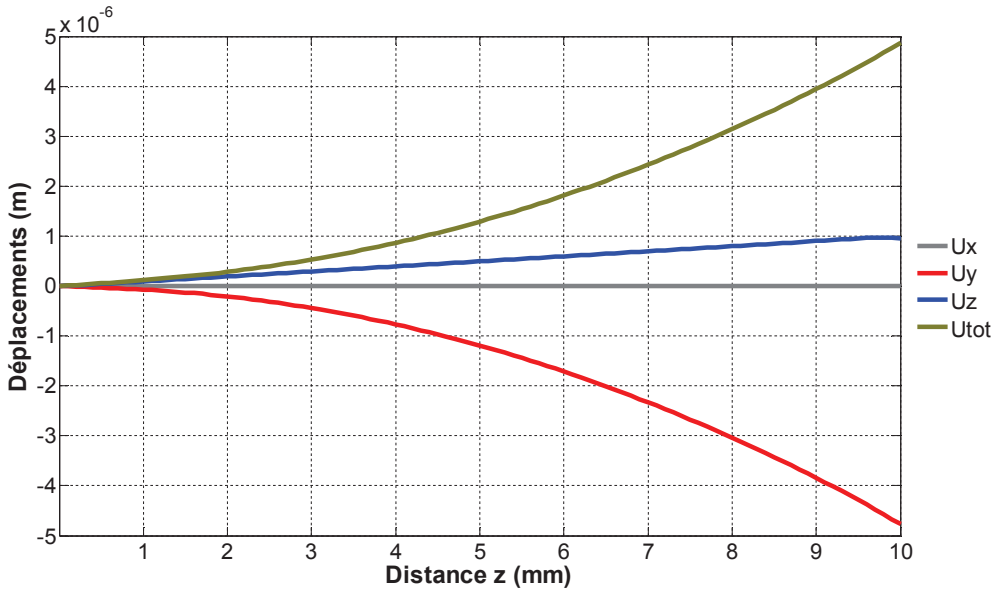


Figure IV.48. Résultats en déplacements pour une matrice CFRP UD (3 plis orientés à 0°) de 1,5 mm d'épaisseur.

Ce cas est identique aux calculs précédents avec une épaisseur plus importante. Ceci conduit de nouveau à une réduction du déplacement global de la fibre active.

La Figure IV.49 présente les résultats obtenus en déplacements pour une matrice CFRP de même épaisseur (1,5 mm) constituée cette fois de 3 plis orientés différemment : les plis extérieurs dans la direction de la fibre active et le pli médian dans la direction transverse (0°/90°/0°).

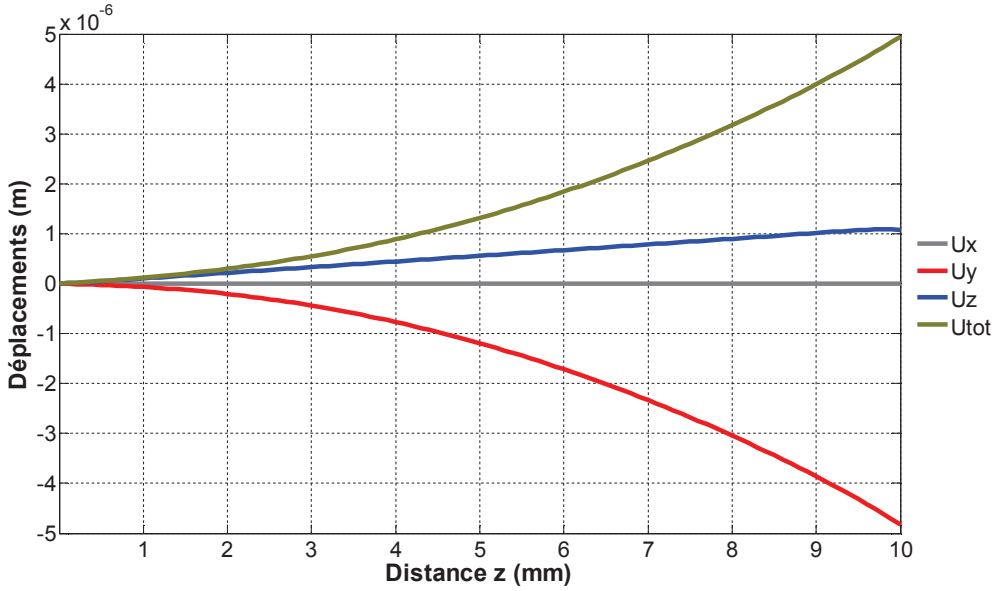


Figure IV.49. Résultats en déplacements pour une matrice CFRP UD (3 plis orientés à 0°/90°/0°) de 1,5 mm d'épaisseur.

L'utilisation d'un composite stratifié ne change pas le comportement global. Il conduit dans le cas présent à une réduction de la rigidité globale du composite dans la direction longitudinale. Le Tableau IV.8 résume les différents résultats obtenus.

Tableau IV.8. Déplacements U_y et U_z à mi-longueur en fonction de l'épaisseur et du matériau à déformer.

	U_z (µm)	U_y (µm)	U_{tot} (µm)
CFRP UD 0° 0,5 mm	0,62	2,60	2,67
CFRP UD 0° 1,0 mm	0,58	1,95	2,04
CFRP UD 0° 1,5 mm	0,50	1,19	1,29
CFRP UD 0°/90°/0° 1,5 mm	0,56	1,19	1,32

La règle à 10% de Hart-Smith [HARRIS 1999] permet d'estimer rapidement le module d'élasticité homogénéisé d'un stratifié. Cette règle considère que les plis à ±45° et 90° contribuent à hauteur 10% de la résistance ou de la rigidité d'un pli à 0° sur la performance globale du composite.

Dans le cas présent, il y a 2/3 soit 66% de plis à 0° dans la direction de la fibre active. Le module d'élasticité du stratifié CFRP peut alors être estimé d'après l'équation IV.21 :

$$Y_{éq} = \begin{cases} 0{,}1 \times Y_L + 0{,}9 \times (2/3) \times Y_L \\ 95\ GPa \end{cases} \qquad (\text{IV.21})$$

L'augmentation de 2% du déplacement global est liée à la diminution de 30% de la rigidité de la structure à la surface de laquelle est intégrée la fibre.

IV.3.4.3. Utilisation sous forme de patchs

Il est possible d'imaginer utiliser ces fibres sous formes de patchs à coller sur les structures à déformer, comme pour les technologies AFC et MFC. L'exemple présenté ici concerne la déformation de flexion en collant un patch (fibre Pt/PZT5AH avec α = 0,7 dans une matrice époxyde tel que v_f = 0,6) sur une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur. Pour simplifier le calcul, les feuillets souples sur les faces supérieure et inférieure du patch ne sont pas pris en compte. La Figure IV.50 présente la déformée obtenue en activant la fibre sous un champ électrique de -1 kV/mm.

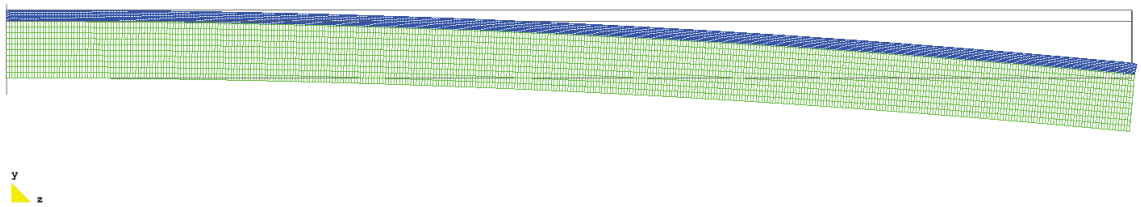


Figure IV.50. Déformée de flexion dans le plan YZ d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur en collant un patch époxyde/MCPF à sa surface (amplification ×0,5.10^9).

La déformation peut être étendue en collant un deuxième patch sous la plaque et en activant ce dernier en sens inverse. La Figure IV.51 présente la déformée obtenue en appliquant des champs électriques opposés aux bornes des fibres supérieures et inférieures, respectivement -1 et 1 kV/mm. Pour simplifier la visualisation, seule la déformée de la plaque d'aluminium est représentée.

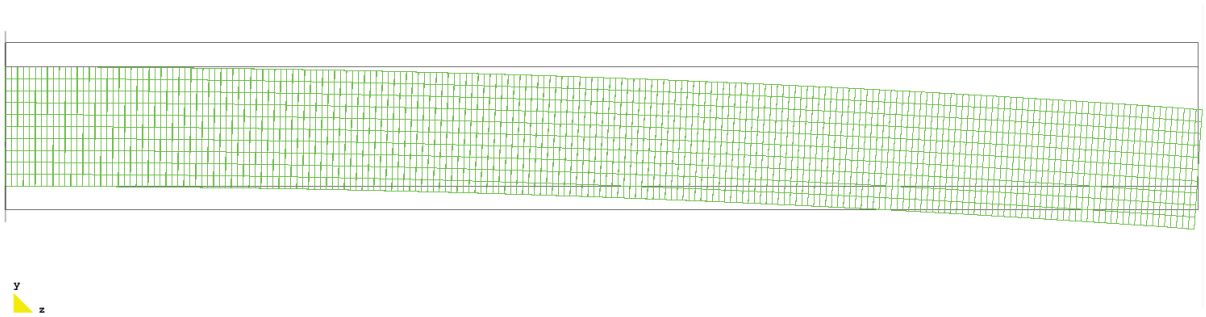


Figure IV.51. Déformée de flexion dans le plan YZ d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur en collant deux patchs époxyde/MCPF sur ses surfaces (amplification ×0,5.10^9).

En comparant les normes des vecteurs déplacements au centre de la plaque, on constate que l'utilisation des deux patchs permet d'augmenter le déplacement total d'environ 53%. Cette seconde configuration est donc plus favorable pour obtenir des déplacements importants, d'autant plus qu'il est alors possible de générer des déformations longitudinales en activant cette fois les fibres supérieures et inférieures de la même manière. La Figure IV.52 présente la déformée de la même plaque d'aluminium obtenue en appliquant des champs électriques identiques de -1 kV/mm aux bornes des fibres supérieures et inférieures.

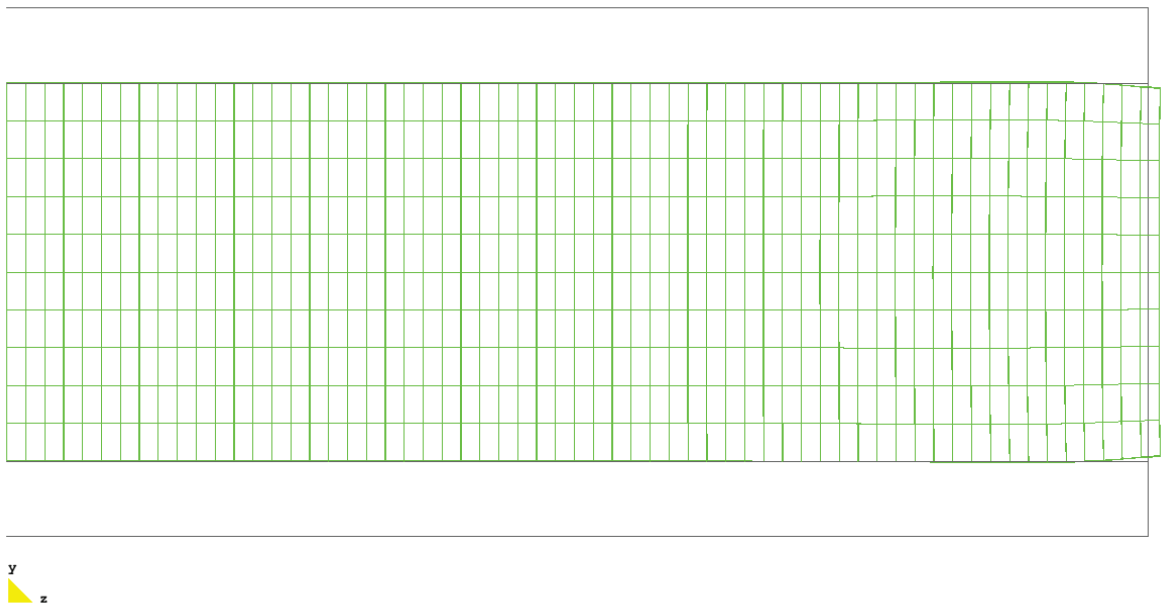


Figure IV.52. Déformée longitudinale dans le plan YZ d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur en collant deux patchs époxyde/MCPF sur ses surfaces (amplification ×2.10^9).

Le champ de déformations est constant dans l'épaisseur de la plaque, environ 1,63 µdef, et conduit à une élongation globale de la plaque (pour l'épaisseur considérée).

L'étude sur ce type d'utilisation n'a pas été poursuivie car c'est surtout l'intégration des fibres au sein du volume de la structure qui est recherchée pour ce type de fibres.

IV.3.4.4. Déformation anisotrope

En considérant des fibres uniformément intégrées dans le volume d'une structure, on peut imaginer activer différemment chaque fibre pour déformer le profil d'une surface.

On peut ainsi imaginer faire onduler le profil d'une surface, de façon statique ou dynamique, pour modifier le profil de l'écoulement. Il a été ainsi imaginé de coupler cette étude avec la simulation des écoulements.

Cette étude n'a pu être réalisée pendant ces travaux mais devrait être poursuivie ultérieurement.

IV.3.5. Etudes réalisées : comportement capteur

IV.3.5.1. Sous déformation longitudinale

Le premier cas traité concerne des fibres intégrées dans une structure pour détecter un environnement vibratoire. Pour des raisons de simplicité, le modèle équivalent du VER avec $\alpha = 0{,}7$ et $\nu_f = 0{,}6$ est repris pour déterminer la tension qui apparait aux bornes de la fibre lorsque l'extrémité libre de la structure est soumise à une vibration longitudinale d'amplitude égale à 1 µm à une fréquence de 25 Hz (loin de la résonance). Le calcul est ainsi mené en analyse harmonique sans perte et avec pertes.

Pour une matrice souple ou rigide, l'amplitude maximale de la tension aux bornes de la fibre est de 27 volts. Le résultat est quasiment identique que les pertes soient considérées ou non. En effet, la sollicitation étant imposée en déplacements, la dissipation des efforts n'intervient pas dans le résultat final, de même que la rigidité globale du composite et l'on constate que les pertes électriques ne modifient pas non plus les résultats.

L'effet piézoélectrique étant réversible, ce cas de figure est identique au comportement d'actionnement longitudinal.

IV.3.5.2. Sous déformation complexe

La Figure IV.53 présente un exemple de structure avec une fibre intégrée déformée en flexion. La flèche totale imposée est d'environ 0,32 µm. Le potentiel des nœuds de la surface extérieure de la fibre est fixé à 0.

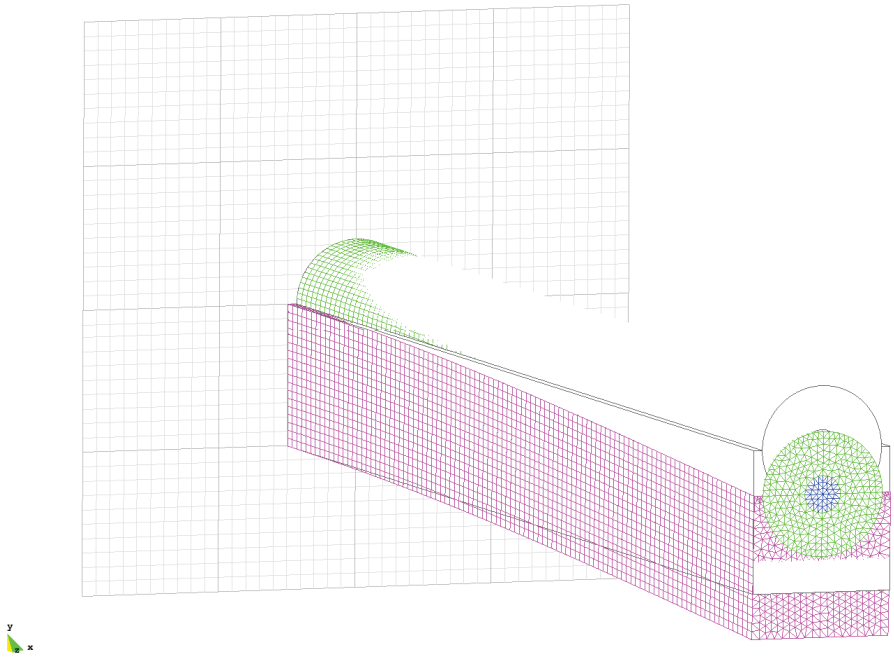


Figure IV.53. Déformée d'une structure avec fibre intégrée soumise à une flexion (amplification $\times 10^9$).

Le calcul donne accès aux potentiels créés aux nœuds de la surface interne de la fibre. La Figure IV.54 montre la répartition des potentiels aux nœuds appartenant à cette surface. Pour des raisons de clarté, seule la surface concernée est présentée.

Figure IV.54. Répartition des potentiels créés aux nœuds de la surface interne d'une MCPF intégrée à la surface d'une structure soumise à de la flexion.

Dès lors que la déformation due aux vibrations n'est plus longitudinale (flexion, multiaxiale…), la réponse du matériau en termes de potentiels ou de charges électriques ne se fait plus de manière homogène.

Le même constat intervient lorsqu'on considère un ensemble de fibres assurant les fonctions de capteur et d'actionneur. Le modèle de 5 fibres noyées dans une matrice pour former un patch est utilisé pour évaluer l'impact de l'activation de la fibre centrale sur les potentiels électriques des fibres non actives.

La Figure IV.55 présente la déformée de la structure en activant sous un champ de -1 kV/mm la fibre centrale de la structure.

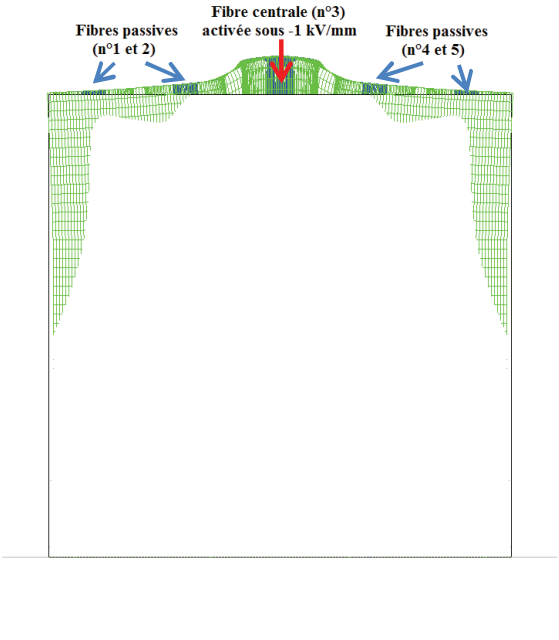


Figure IV.55. Déformée d'une structure (plan XZ) dans laquelle 5 fibres alignées sont intégrées et seule la fibre centrale est activée sous un champ électrique de -1 kV/mm (amplification $\times 10^9$).

La déformation n'étant pas homogène dans la largeur de la structure (suivant ***x***), les fibres adjacentes ne sont pas soumises à une déformation longitudinale constante dans toute leur section. La Figure IV.56 présente la distribution des potentiels et la déformation longitudinale S_z à l'intersection des plans médians ***xy*** et ***yz***.

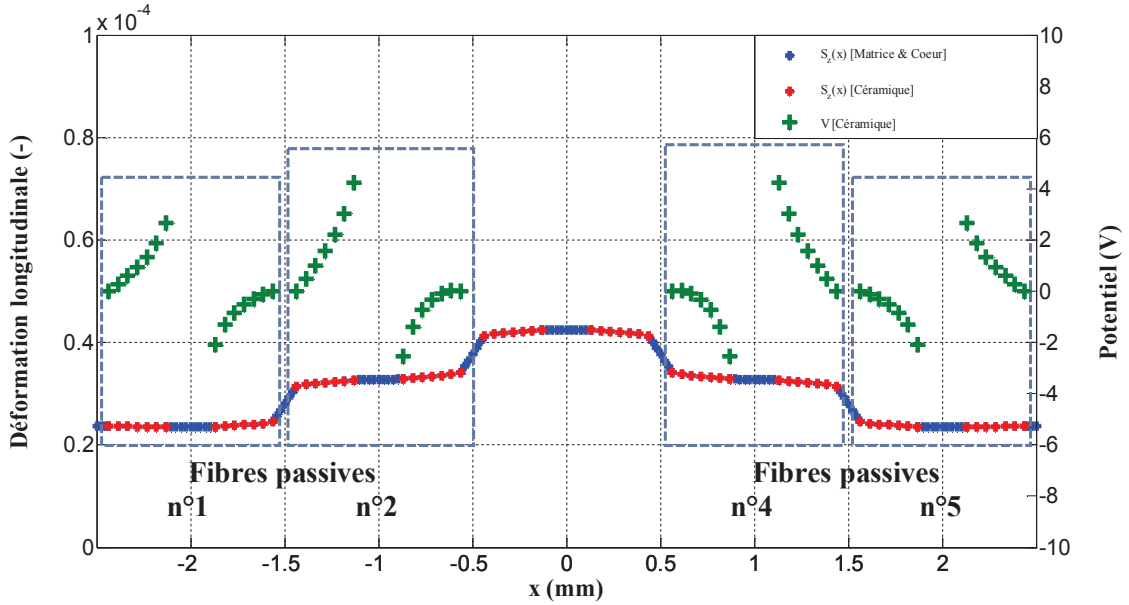


Figure IV.56. Déformations et potentiels sur les fibres non actives lorsque la fibre centrale est activée par un champ électrique de -1 kV/mm (résultats sur les nœuds de l'axe médian [x, 0, L/2]).

La distribution des potentiels sur les nœuds du matériau piézoélectrique sur l'axe médian n'est pas représentative de l'ensemble des potentiels des nœuds de chacune des surfaces des fibres mais permet d'illustrer la difficulté rencontrée : chaque nœud i est associé à une déformation $S_z(i)$ qui conduit à l'apparition des charges Q_i ou des potentiels V_i (en réalité, la réponse provient de l'ensemble des déformations et des contraintes).

L'étude de la réponse en potentiels est purement théorique car les potentiels des nœuds individuels ne sont pas exploitables expérimentalement. La définition d'une électrode conductrice correspond à une surface équipotentielle qui doit être définie dans les conditions limites du modèle. Néanmoins, des difficultés sont apparues pour utiliser ces conditions dans le préprocesseur. De ce fait, l'utilisation des données de sorties afin de remonter à la tension électrique aux bornes de la fibre s'avère délicat. De plus amples travaux doivent être menés pour caractériser ces fibres dans un fonctionnement capteur dans des cas de déformations non purement longitudinales.

IV.3.5.3. Capteur de défauts

L'utilisation de ces fibres en tant que capteur de défauts structurels a été imaginée. Le but est d'intégrer des fibres dans une zone de la structure soumise dans des conditions normales à un certain état de sollicitations (T_0) qui constitue un état de référence représenté par un signal électrique aux bornes de la/les fibre(s). On imagine que suite à une rupture locale (fissuration, changement de phase…), les modifications des propriétés mécaniques locales conduisent à une modification de l'état électrique de la fibre qui peut donc renseigner l'opérateur sur la présence d'un défaut local. Si on suppose la présence de plusieurs fibres, les informations de

chacune d'elles pourraient permettre de renseigner sur la localisation et les dimensions du défaut.

La Figure IV.57 illustre le principe de fonctionnement imaginé.

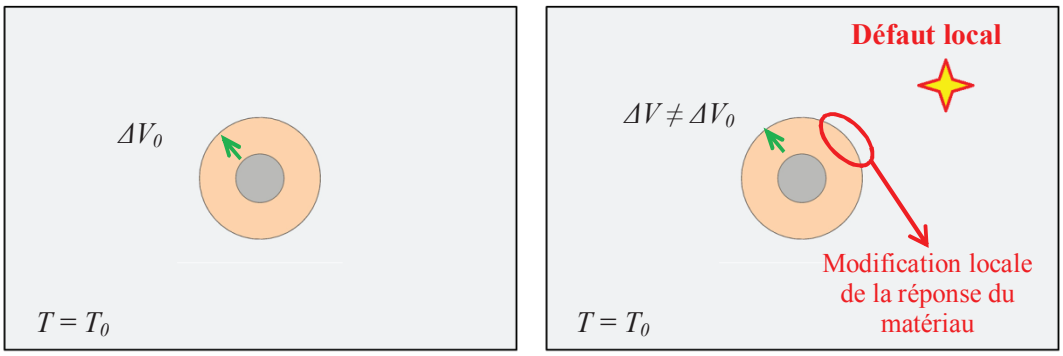


Figure IV.57. Utilisation des MCPF en tant que capteur de défaut local.

On comprend alors qu'un défaut local comme une fissure entraine une variation de rigidité locale de la structure et par suite, une variation locale des potentiels calculés aux nœuds de la surface de la fibre. Il est nécessaire de s'assurer que cette variation locale de potentiels puisse se traduire par une variation de tension mesurée aux bornes de la fibre. Il apparait alors que la position et la taille du défaut vont déterminer l'intensité de la variation de potentiels.

Pour simuler cette approche, on considère une portion de structure dans laquelle une MCPF (Pt/PZT5AH α=0,7 Φ_{ext}=500 µm) est intégrée. Une force est appliquée sur tous les nœuds de la section pour simuler un état de contrainte de traction de référence. Un défaut est ensuite créé dans la structure en supprimant des éléments. Dans un premier temps et pour des raisons de simplicité, le défaut créé est parallélépipédique et la normale à sa section est colinéaire avec la normale à la section de la fibre. La Figure IV.58 présente le schéma de la structure modélisée avec le défaut.

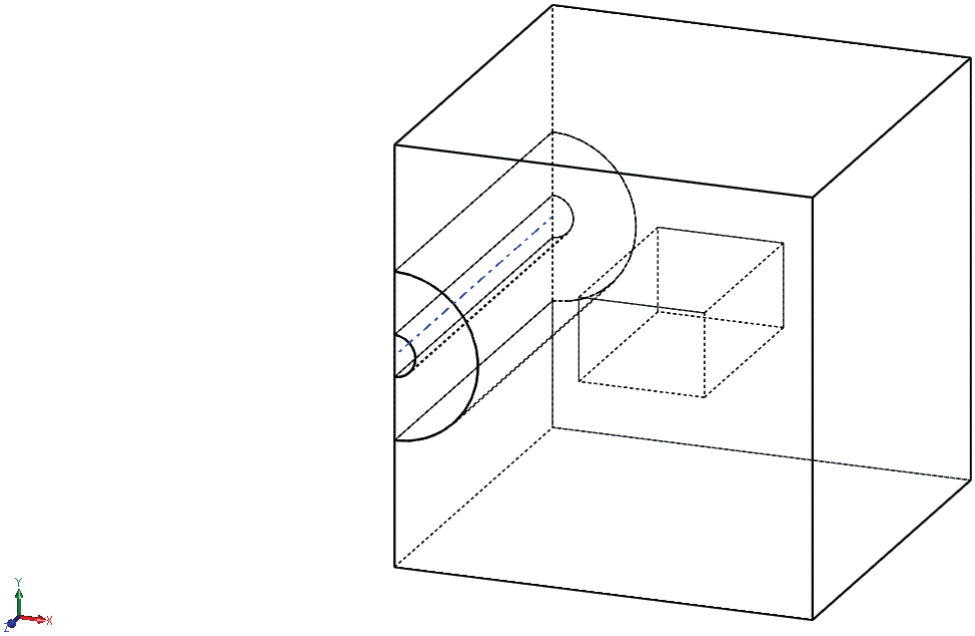


Figure IV.58. Structure modélisée pour simuler le fonctionnement de capteur de défauts.

Dans l'exemple étudié, les valeurs suivantes ont été arbitrairement choisies :

- la force appliquée en chaque nœud génère une force 1,5 N sur la section ;
- les dimensions du défaut représentent un volume de 0,4 mm^3 ($h_y \times l_x \times L_z$ = 0,2×0,5×4 mm^3) ;
- la distance entre l'extrémité de la fibre et la face latérale du défaut en vis-à-vis est de 150 µm.

Sous l'effet de la force appliquée, la structure est déformée, en particulier la fibre. La présence du défaut conduit à une réduction locale de la rigidité de la structure qui se traduit par une déformation locale plus importante. La polarisation locale est donc plus importante, ce qui se traduit par des potentiels calculés aux nœuds considérés plus importants.

La Figure IV.59 présente la distribution des potentiels calculés aux nœuds de la surface interne de la fibre modélisée, en considérant que la surface extérieure est reliée à la masse (les potentiels sont donc imposés à 0).

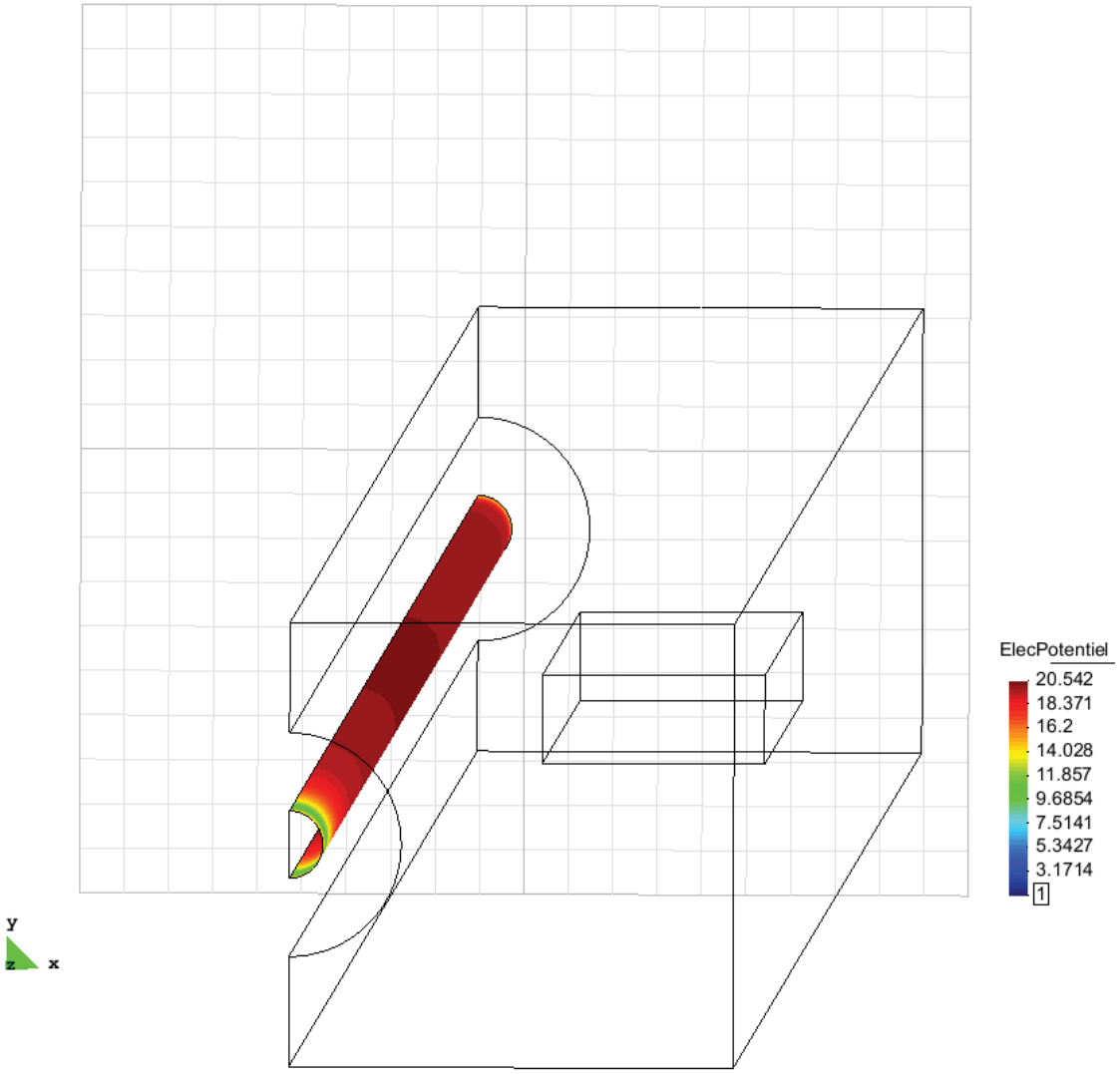


Figure IV.59. Distribution des potentiels sur la surface interne de la fibre en présence d'un défaut proche de celle-ci.

L'orientation de la vue permet de mettre en évidence une zone de la fibre (au centre de celle-ci) où les potentiels sont plus élevés que sur le reste de la fibre. Cette zone est en vis-à-vis du défaut créé.

Pour évaluer la différence des potentiels calculés sur cette zone, attribués à l'apparition de charges aux électrodes suite aux polarisations créées dans le matériau piézoélectrique soumis à des déformations, les valeurs des déformations longitudinales et des potentiels des nœuds de coordonnées [x=R_{int}, 0, z] sont reportées sur la Figure IV.60. Le calcul a été effectué dans les mêmes conditions sans défaut. Les courbes correspondantes (déformation et potentiel) sont reportées en gris sur le graphique.

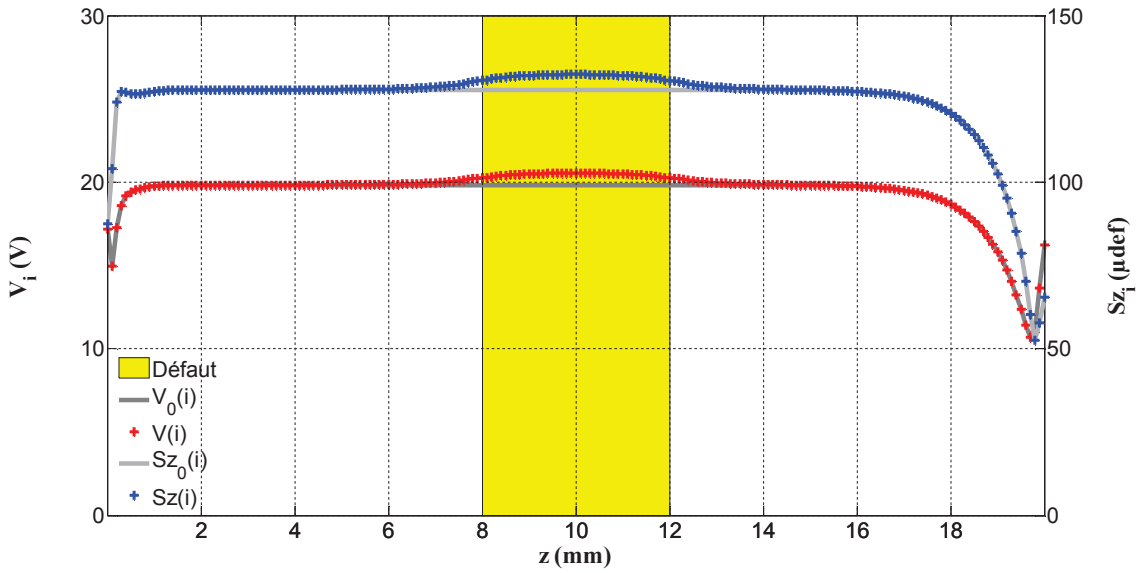


Figure IV.60. Evolution des potentiels et de la déformation longitudinale aux nœuds de coordonnées [x=R_{int}, 0, z].

Loin des bords et du défaut, le calcul avec ou sans défaut conduit à des valeurs de déformations et de potentiels constantes. Dans la zone où le défaut a été créé ($8 \leq z \leq 12$ mm), les déformations sont plus importantes et donc, les potentiels également. Par ailleurs, les courbes de déformation et de potentiel ont exactement la même allure.

Puisque le calcul a été mené avec et sans défaut, la différence entre les deux permet d'estimer plus précisément la variation des potentiels aux nœuds concernés. La Figure IV.61 présente la différence des potentiels calculés aux nœuds sur le même axe ([x=R_{int}, 0, z]).

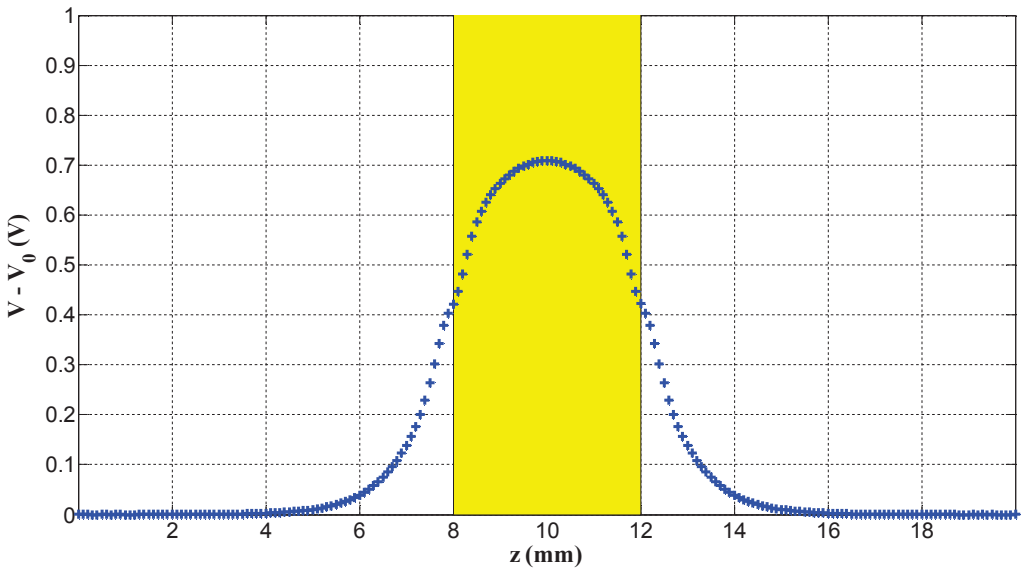


Figure IV.61. Différence des potentiels calculés aux nœuds de coordonnées [$x=R_{int}$, 0, z] pour les calculs avec et sans défaut.

La différence de potentiels maximale calculée est située au nœud le plus proche du défaut et sa valeur est voisine de 0,7 V. Le problème se pose à nouveau de remonter au potentiel global de la surface interne pour remonter à la tension aux bornes de la fibre à partir des potentiels calculés au niveau des nœuds des surfaces considérées.

Afin d'accéder à des valeurs exploitables et indicatives d'une réalité expérimentale, il est indispensable de pouvoir définir les surfaces équipotentielles représentatives des électrodes de la fibre. Ceci permettra également de pouvoir étudier les paramètres du défaut qui modifieront la réponse (tension électrique) de la fibre.

Au moins de manière qualitative, il a été montré que la fibre pouvait être utilisée pour détecter la présence de modifications locales de caractéristiques mécaniques liée à l'apparition d'un défaut. Il apparaît que la réponse de la fibre dépendra nécessairement de la taille et de la distance du défaut considéré. Ces paramètres n'ont pu être étudiés par manque de temps mais devraient faire l'objet d'une étude plus approfondie.

IV.4. Comparaisons des deux modèles

Le modèle analytique ayant été développé pour l'étude exclusive de la déformation longitudinale, la comparaison s'effectuera sur ce mode de fonctionnement uniquement.

Le Tableau IV.9 reprend les valeurs de déformation libre et de force de blocage déterminées numériquement et analytiquement pour des MCPF de 250 µm de diamètre avec une âme en platine, une céramique piézoélectrique PZT5AH et pour des rapports d'aspect de 0,3 0,5 et 0,7.

Tableau IV.9. Résultats comparés des calculs numériques et analytiques pour les MCPF.

S_0 (µdef)	ATILA	Analytique
α = 0,3	63	74
α = 0,5	115	137
α = 0,7	160	192
$F_{bloc.}$ (N)	**ATILA**	**Analytique**
α = 0,3	0,25	0,21
α = 0,5	0,42	0,44
α = 0,7	0,56 (0,59*)	0,61

* résultat obtenu avec des fonctions d'interpolation quadratiques.

Les résultats en force de blocage sont peu différents et convergent d'autant plus que l'estimation de la surface de l'élément piézoélectrique est correcte (interpolation quadratique). Les résultats en déformation diffèrent quant à eux d'environ 15% pour les rapports d'aspect considérés. De plus, les raideurs résultantes ($F_{bloc.}/S_0$) sont de fait plus élevées par calcul numérique.

Les résultats en déformation sont ramenés aux coefficients piézoélectriques équivalents de la fibre et reportés sur le graphique $d_{31}^{fibre}/d_{31}^{th} = f(\alpha)$ de la Figure IV.62.

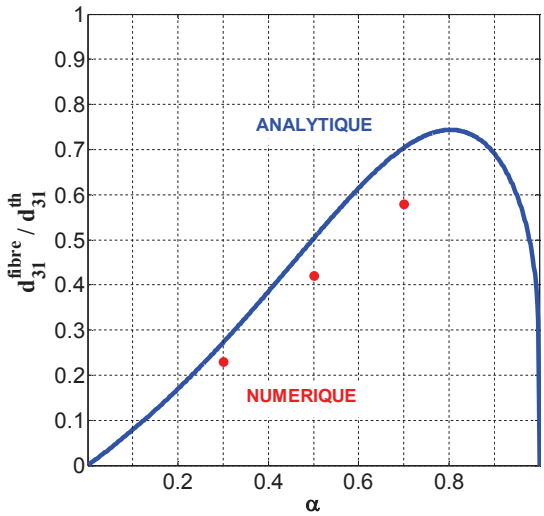


Figure IV.62. Comparaison entre l'évolution du coefficient piézoélectrique équivalent de la fibre, normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique, des calculs numériques et analytiques.

Il semble que le modèle analytique surestime les coefficients piézoélectriques équivalents des fibres. La différence peut s'expliquer par la prise en compte du couplage des modes 33 et 31 et l'effet des contraintes dans le calcul numérique qui sont négligés dans le modèle analytique.

Le Tableau IV.10 présente les résultats en déformation libre pour des MCPF à âme en platine intégrées uniformément dans une matrice souple (époxyde) et rigide (CFRP UD) à hauteur de 60 vol%.

Tableau IV.10. Résultats comparés des calculs numériques et analytiques pour les MCPF intégrées.

Matrice époxyde	ATILA	Analytique
α = 0,3	61	72
α = 0,5	111	132
α = 0,7	152	184
Matrice CFRP UD	**ATILA**	**Analytique**
α = 0,3	34	41
α = 0,5	56	68
α = 0,7	70	85

Les résultats en déformation diffèrent cette fois d'environ 17% pour les rapports d'aspect et les matrices considérés. Ces résultats sont à nouveau ramenés aux coefficients piézoélectriques équivalents sur le graphique $d_{31}^{comp}/d_{31}^{th} = f(\alpha)$ de la Figure IV.63.

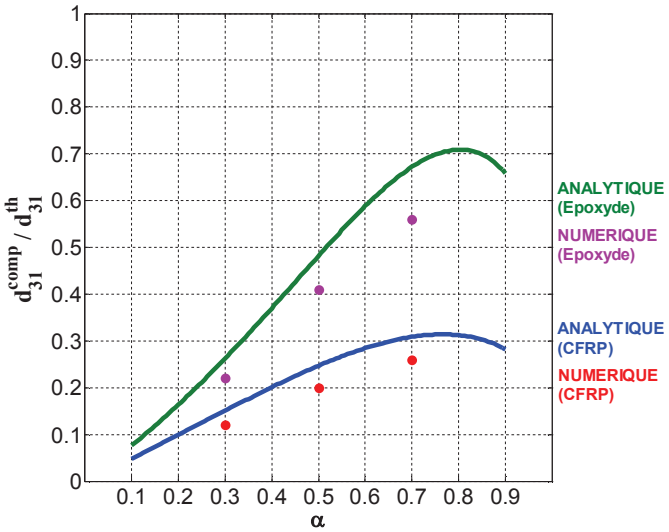


Figure IV.63. Comparaison entre l'évolution du coefficient piézoélectrique équivalent des fibres intégrées, normalisé par rapport au coefficient piézoélectrique théorique, des calculs numériques et analytiques.

Si la différence de comportement reste attribuée à la prise en compte des effets transverses et des contraintes, les coefficients piézoélectriques équivalents sont plus élevés que ceux calculés.

Le calcul par éléments finis est donc plus à même de rendre en compte des différents phénomènes qui agissent sur les déformations obtenues en utilisant ces fibres.

IV.5. Conclusion

La modélisation s'avère être un outil précieux pour estimer les propriétés et les capacités de ces fibres compte tenu des difficultés rencontrées pour obtenir leurs caractéristiques par l'expérimentation. Par ailleurs, la modélisation permet d'imaginer et de simuler des configurations relativement complexes qui permettent d'évaluer, en fonction des dimensionnements utilisés, les propriétés auxquelles il est possible de s'attendre.

En premier lieu, en se basant sur les travaux des quelques auteurs qui se sont intéressés à la modélisation des fibres, un modèle analytique est développé pour exprimer une relation linéaire entre la déformation longitudinale et le champ électrique appliqué aux bornes de la fibre. Cette relation fait intervenir un coefficient piézoélectrique corrigé qui prend en compte :

- l'effet de la géométrie cylindrique sur le champ électrique au sein du matériau piézoélectrique ;
- la présence d'un cœur passif plus rigide que le matériau céramique ;
- la présence de la structure environnante dans le cas où les fibres sont intégrées uniformément dans celle-ci.

Ce premier modèle permet de montrer qu'il existe des rapports d'aspect optimums entre l'épaisseur du matériau céramique et le rayon du fil métallique pour obtenir des capacités de déformations maximales, capacités néanmoins réduites par la présence du cœur rigide.

De la même manière, en termes de déformation, l'intégration de ces fibres dans des structures plus ou moins rigides réduit également la capacité de déformation des fibres. Dans des structures relativement souples, l'intégration de ces fibres permet encore d'avoir des déformations importantes alors que dans des matrices rigides, il faut pouvoir intégrer ces fibres à des fractions volumiques très importantes pour garder des taux de déformation importants.

La méthode des éléments finis est une méthode de calcul numérique qui permet de modéliser le comportement des MCPF en piézoélectricité et élasticité linéaire dans des cas simples ou complexes avec une grande facilité, sous réserves d'être attentif à la description du modèle (type d'éléments, maillage, conditions limites…).

Dans un premier temps, des fibres individuelles avec une âme platine sont modélisées afin de caractériser l'influence du rapport d'aspect sur les capacités des fibres. Les courbes force-déplacement permettent de montrer et de quantifier les déformations libres et les forces de blocage des fibres. Dans le cas le plus favorable étudié (MCPF de 250 µm de diamètre avec $\alpha = 0,7$) la déformation libre est de 160 µdef et la force de blocage est d'environ 0,60 N. Il a été montré que les rapports d'aspect élevés favorisent l'obtention de déformations/efforts plus importants suite à l'augmentation du volume de matériau actif.

L'intégration uniforme de ces fibres dans des matrices a été modélisée en considérant un cas de matrice plutôt souple (époxyde) et un cas de matrice plutôt rigide (CFRP UD). La présence d'un matériau passif qui introduit une rigidité supplémentaire réduit les déformations maximales atteintes : avec une matrice époxyde, la déformation libre est de 150 µdef (soit -6%) et avec un composite CFRP UD (en supposant que les MCPF soient alignées dans le sens des fibres de renforts), la déformation libre est de 70 µdef (soit -56%). Les forces de blocage, déterminées en appliquant des efforts sur la section limite de l'élément piézoélectrique, sont les mêmes dans les deux cas puisque la quantité de matériau actif reste la même.

Les résultats sur les fibres individuelles obtenus avec les deux modèles sont comparés. Pour les trois rapports d'aspect modélisés par éléments finis, les déformations calculées sont inférieures d'environ 16% à celles calculées avec le modèle analytique. La différence est attribuée à la prise en compte des effets transverses et des contraintes dans le calcul éléments finis qui sont négligés dans le modèle analytique. Le calcul numérique semble donc plus fiable pour rendre compte des différents phénomènes qui entrent en jeu.

Des configurations plus complexes ont été ensuite modélisées par éléments finis. L'intégration des fibres à la surface de structure permet d'obtenir des déformées de flexion. L'amplitude de la flèche est alors fonction des propriétés élastiques et de l'épaisseur de la structure. Les différents cas étudiés ont montré que la modification du moment fléchissant avec l'épaisseur et la rigidité de la structure considérée ne permettent pas de définir de règles générales quant à la flèche obtenue dans ces conditions.

En utilisant les fibres en tant que capteur, dès que la sollicitation n'est plus purement longitudinale, il est devenu difficile d'exploiter les résultats pour obtenir les tensions équivalentes aux bornes des fibres. L'approfondissement de l'utilisation du pré et postprocesseur pourrait permettre d'exploiter les résultats obtenus. D'un point de vue qualitatif, l'utilisation de ces fibres intégrées dans des structures pour détecter la présence de défauts a été simulée. La poursuite de ce travail permettra d'évaluer la sensibilité de détection avec un réseau de fibres en évaluant l'influence de la taille, la position et la forme du défaut sur les tensions résultantes aux bornes des fibres.

La mise en œuvre de la modélisation par éléments finis permet d'estimer les propriétés des fibres et de simuler la mise en œuvre de celles-ci. Elle permet de s'affranchir de toutes les difficultés expérimentales rencontrées, bien qu'il faille bien entendu valider expérimentalement les simulations effectuées dans des travaux ultérieurs. Les travaux de modélisation réalisés permettent d'obtenir les premières informations sur leur utilisation comme fibres intégrées dans des structures. L'exploitation plus approfondie des résultats doit être menée, notamment dans les cas de déformations plus complexes que la déformation purement longitudinale, pour aboutir à une meilleure compréhension des différents phénomènes en jeu lors de l'utilisation de ces fibres comme capteur ou actionneur. Ainsi, l'utilisation de ces fibres pour des applications "capteurs intégrés" ou pour la déformation de structures souples est à l'étude. Des travaux complémentaires sur la microdéformation locale pour le contrôle aérodynamique, sur l'amortissement de vibrations et sur la détection de défauts locaux sont ainsi envisagés.

Bibliographie du Chapitre IV

Berger H. Kari S. Gabbert U. Rodriguez-Ramos R. Bravo-Castillero J. Guinovart-Diaz R. (2005a) *Calculation of effective coefficients for piezoelectric fiber composites based on a general numerical homogenization technique*. Composite Structures, **71** (3-4), 397‑400.

Berger H. Kari S. Gabbert U. Rodriguez-Ramos R. Guinovart R. Otero J.A. Bravo-Castillero J. (2005b) *An analytical and numerical approach for calculating effective material coefficients of piezoelectric fiber composites*. International Journal of Solids and Structures, **42** (21-22), 5692‑5714.

Brissaud M. (2007) *Matériaux piézoélectriques: Caractérisation, modélisation et vibration*. Presses polytechniques et universitaires romandes.

Chaskalovic J. (2004) *Méthode des éléments finis pour les sciences de l'ingénieur: Abrégé de cours et recueil de problèmes corrigés*. Editions Tec & Doc : Lavoisier, Paris; Londres; New York.

Delaplace A. Gatuingt F. Ragueneau F. (2008) *Mécanique des structures : résistance des matériaux*. Dunod, Paris.

Gallagher R.H. (1974) *Finite element analysis: fundamentals*. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, N.J.

Harris B. (1999) *Engineering Composite Materials*. Institute of Materials, London; Oakville.

Heinonen E. Juuti J. Leppävuori S. (2005) *Characterization and modelling of 3D piezoelectric ceramic structures with ATILA software*. Journal of the European Ceramic Society, **25** (12), 2467‑2470.

I.S.E.N (2009) *Finite-element software package for the analysis of 2D & 3D structures based on smart materials version 6.0.2 User's manual*.

Lin Y. Sodano H.A. (2008) *Concept and model of a piezoelectric structural fiber for multifunctional composites*. Composites Science and Technology, **68** (7-8), 1911‑1918.

Nouri H. Ravelet F. (2012) *Introduction à la simulation numérique des écoulements. Application au transfert thermique sur une plaque plane avec StarCCM+*. DynFluid - Arts et Métiers ParisTech, Paris.

Oñate E. (2009) *Structural analysis with the finite element method: linear statics*. Springer, Dordrecht; London.

Sebald G. Qiu J. Guyomar D. (2005a) *Modelling the lateral resonance mode of piezoelectric fibres with metal core*. Journal of Physics D: Applied Physics, **38** (19), 3733‑3740.

Sebald G. Qiu J. Guyomar D. Hoshi D. (2005b) *Modeling and characterization of piezoelectric fibers with metal core*. Japanese Journal of Applied Physics, **44** (8), 6156‑6163.

Trompette P. (1992) *Mécanique des structures par la méthode des éléments finis: statique et dynamique, avec problèmes corrigés*. Masson, Paris; Milan.

Yoon C.-B. Jun S.-H. Lee S.-M. Kim H.-E. Lee K.-W. (2006) *Piezoelectric fibers with uniform internal electrode by co-extrusion process*. Journal of the American Ceramic Society, **89** (4), 1333‑1336.

Zhang H.Y. Li L.X. Shen Y.P. (2005) *Modeling of poling behavior of ferroelectric 3–3 composites*. International Journal of Engineering Science, **43** (13-14), 1138‑1156.

Chapitre V

Vers un développement à grande échelle ?

Chapitre V VERS UN DEVELOPPEMENT A GRANDE ECHELLE ?

V.1. Problématique

Dans un contexte de développement industriel, deux critères s'imposent pour évaluer la viabilité d'un procédé : la rapidité et le coût de production. En termes de coût, l'utilisation du platine est la principale limitation pour le développement de fibres longues. En termes de rapidité de production, le(s) traitement(s) thermique(s) sont les facteurs limitant.

Il convient donc de s'interroger sur les moyens à mettre en œuvre pour envisager une ligne de production viable. Dans ce sens, trois points sont abordés : l'utilisation d'une technique d'élaboration continue, la substitution du platine par des matériaux moins onéreux et la réduction du temps de frittage pour augmenter la capacité de production du procédé final.

Par ailleurs, outre les contraintes économiques, l'utilisation de matériaux piézoélectriques à base de PZT, donc de plomb, peut être limitée dans l'avenir par la législation environnementale. *A priori*, tant que le matériau actif est à base d'oxydes céramiques pulvérulents, les principes évoqués ci-après restent valables.

V.2. Procédé (semi) continu

La réalisation de fibres crues permet d'envisager des procédés d'élaboration rapides et continus. La présence d'additifs organiques permet d'envisager une première étape de fabrication de fibres crues rapidement en grande quantité puis une seconde étape de traitement(s) thermique(s) pour obtenir le dépôt céramique dense. Si les deux étapes sont juxtaposées, alors la vitesse de production sera déterminée par les étapes de traitement thermique.

V.2.1. Enduction continue

Le procédé d'enduction est développé à l'échelle industrielle dans de nombreux processus pour la réalisation de différents revêtements :

- dépôts sur substrat en verre pour des propriétés antireflets, anti-rayures, absorption des UV, coloration ou modificateur de contraste *et cetera* ;
- dépôts de films (diélectriques, ferroélectriques ou magnétiques) sur des substrats en silicium pour la réalisation de composants électroniques ;
- revêtements anticorrosion sur aciers (galvanisation…) ;
- enrobage de fibres de verre pour la réalisation des fibres optiques.

Les deux derniers procédés existent en tant que procédé continu : la fibre de verre ou les tôles d'aciers sont tirées en continu et passent au travers d'un bain contenant le liquide à déposer (zinc, alliage de zinc, mélange de polymères fondus…).

Il est possible d'imaginer transposer le gainage des fibres de verre à la réalisation de fibres piézoélectriques à âme métallique. Le fil métallique serait alors tiré en continu au travers de bain(s) contenant la barbotine à température ambiante ou refroidie. L'enceinte du bain peut être contrôlée pour limiter la volatilisation d'un solvant organique ou le développement d'une barbotine en voie aqueuse permettrait de stabiliser la barbotine et conduirait à un procédé *a priori* plus simple (l'utilisation de l'eau est moins coûteuse et moins problématique vis-à-vis du respect des normes d'hygiène et de sécurité). Le dépôt peut alors être séché puis traité thermiquement en ligne ou *via* une seconde ligne dédiée au traitement thermique.

Si les développements ultérieurs permettent d'obtenir les épaisseurs suffisantes en quelques étapes de trempage, l'idéal étant de réaliser une seule couche, en optimisant la vitesse de retrait et les propriétés rhéologiques de la barbotine, alors le procédé d'enduction pourra être viable.

V.2.2. Coextrusion

Les essais de coextrusion ont été réalisés avec l'école des Mines qui a mis à notre disposition l'une de leur extrudeuse.

V.2.2.1. Principe et appareillage

La coextrusion consiste dans ce cas à enrober le fil métallique d'un mélange contenant les particules céramiques. Pour rappel, ce procédé a été utilisé pour la réalisation de MCPF en utilisant un mélange de pâte céramique avec une extrudeuse à piston percé pour y passer le fil métallique [HAJJAJI 2008, QIU 2003, SATO 2004, SEBALD 2006, 2005b, SHIMOJO 2007, YOON 2006].

Au vu des dimensions des fibres à réaliser, les pressions d'extrusions sont très élevées et l'utilisation du piston est limitée pour la production continue. L'utilisation d'extrudeuse à vis est ainsi préférée en combinaison avec une alimentation en fil perpendiculairement à l'extrudeuse pour éviter de modifier le système d'extrusion. La Figure V.1 représente un schéma du dispositif d'extrusion imaginé.

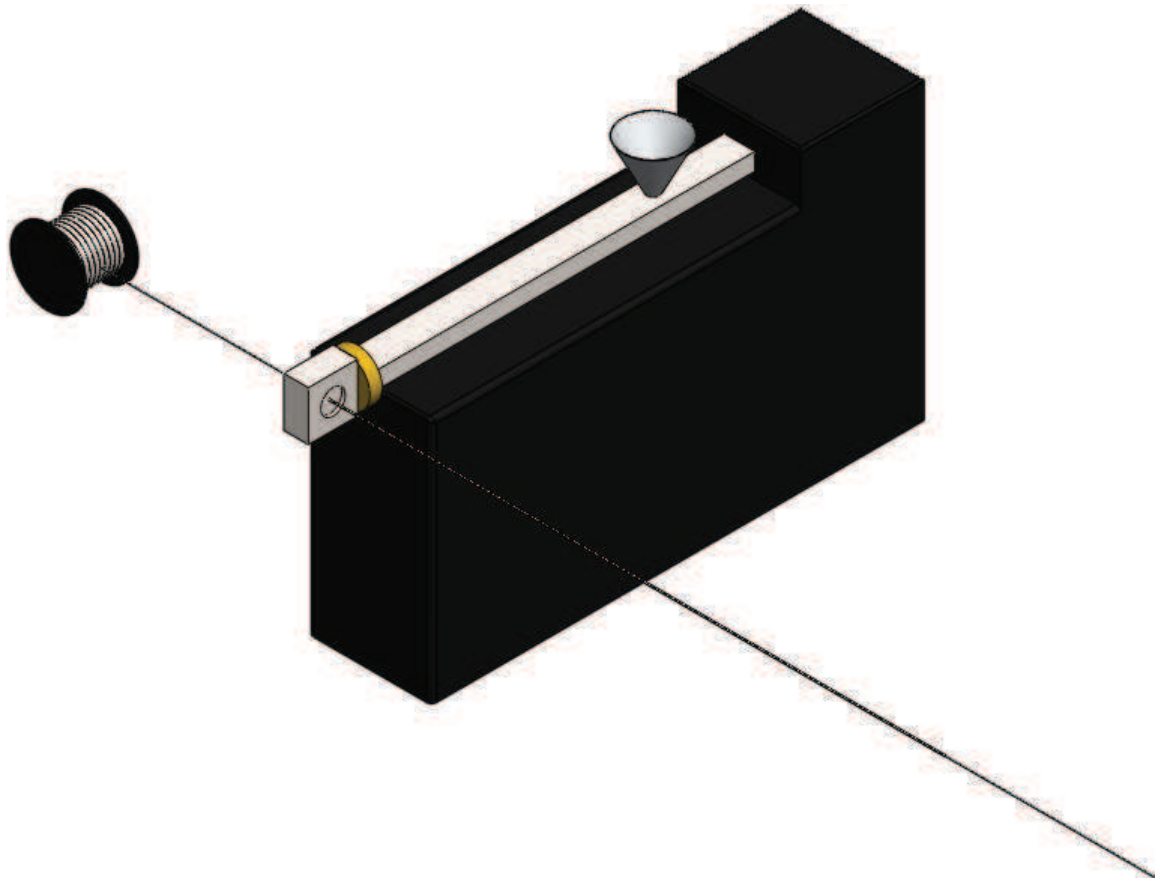


Figure V.1. Représentation du dispositif d'extrusion imaginé avec l'extrudeuse, l'alimentation en fil et la filière de coextrusion.

La filière, réalisée par la société ZERO-D, est conçue pour recevoir le fil tandis que le mélange est réparti tout autour du fil avant d'être extrudés ensemble aux dimensions imposées

par la filière. Les figures V.2 et V.3 représentent les vues de l'arrière et de l'avant de la filière avec l'alimentation en pâte perpendiculairement à la sortie de l'ensemble fil/dépôt. Le diamètre de sortie de la filière est de 200 µm tandis que deux passes-fil ont été réalisés pour recevoir des diamètres maximaux de fils différents (220 et 120 µm) et permettre une manipulation plus aisée.

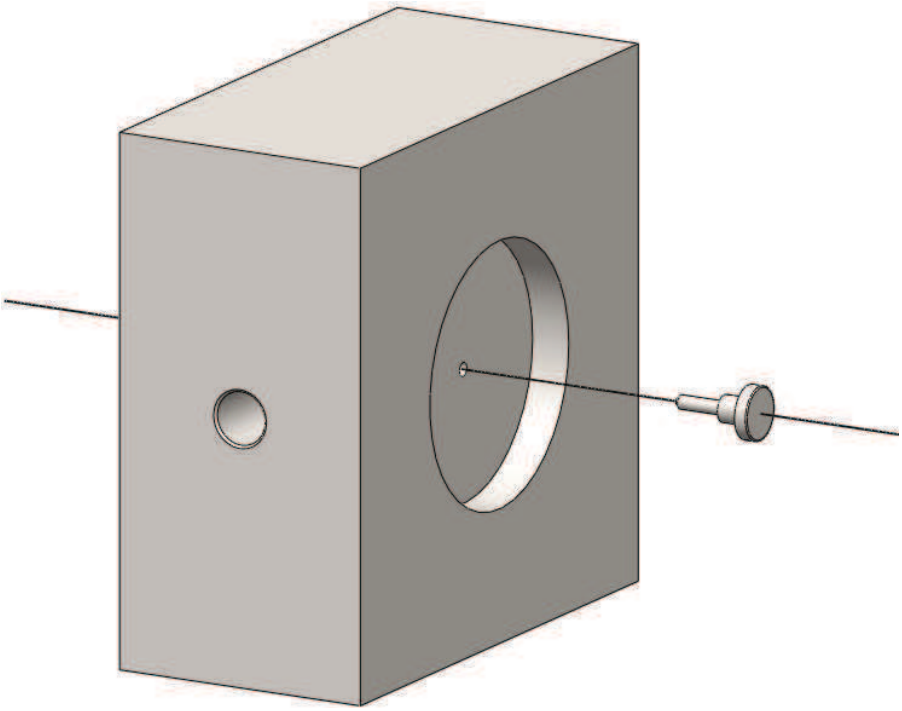


Figure V.2. Vue de l'arrière de la filière avec le passe fil.

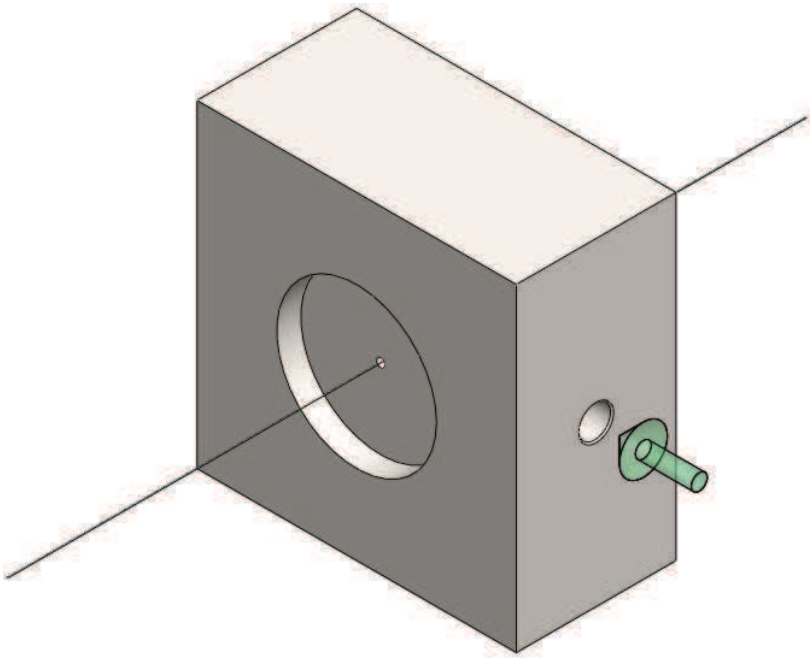


Figure V.3. Vue de l'avant de la filière.

La Figure V.4 présente une photographie de la filière adaptée sur une extrudeuse à vis de l'école des Mines de Douai. La filière est équipée de cartouches chauffantes pour maintenir le mélange en température.

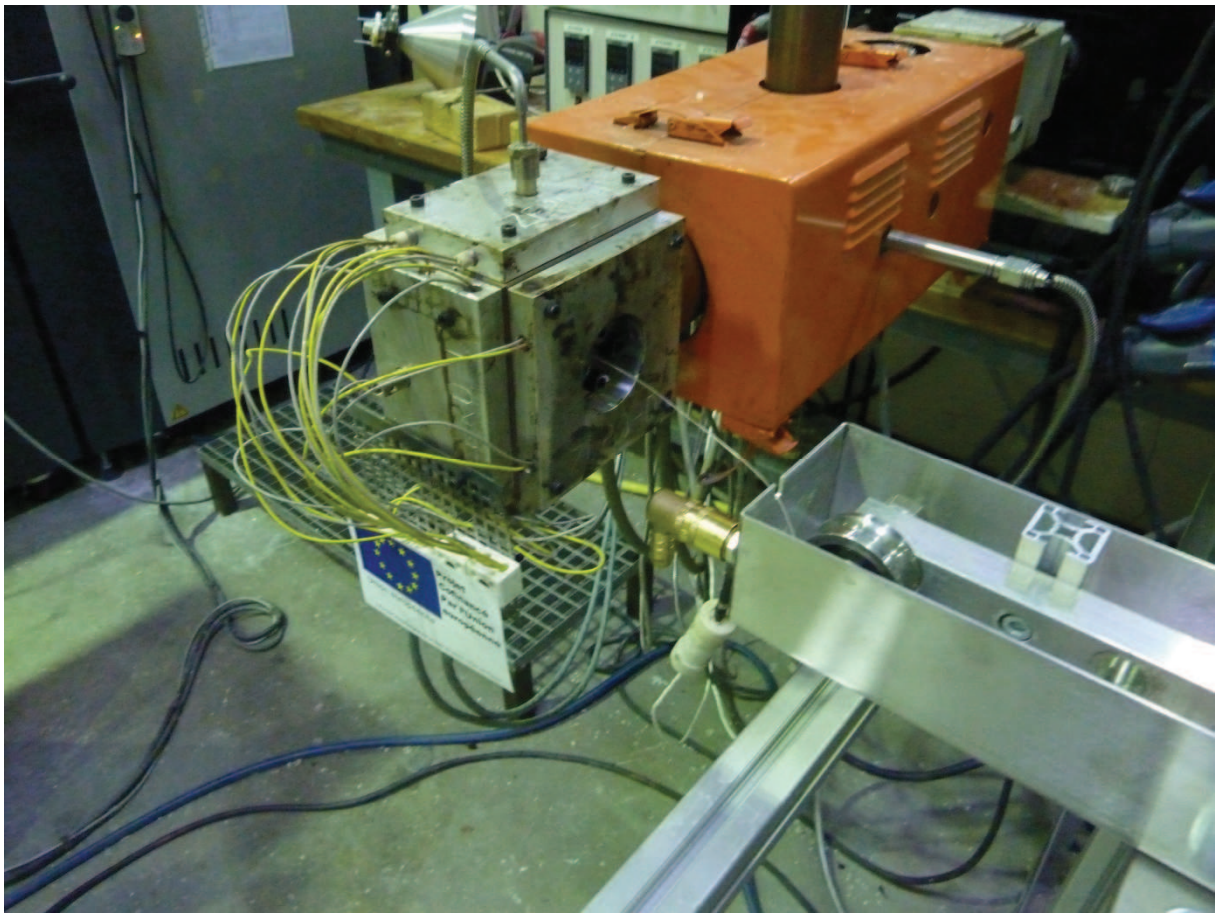


Figure V.4. Vue de la sortie de l'extrudeuse vers le bac de refroidissement.

La Figure V.5 présente une photographie de l'ensemble du dispositif de coextrusion, vue de l'arrière de la filière. L'extrudeuse alimente la filière en matière tandis que le fil passe à l'arrière de la filière. Le fil coextrudé est tiré au travers d'un bac de refroidissement par un dispositif composé de deux roues avec des surfaces en caoutchouc.

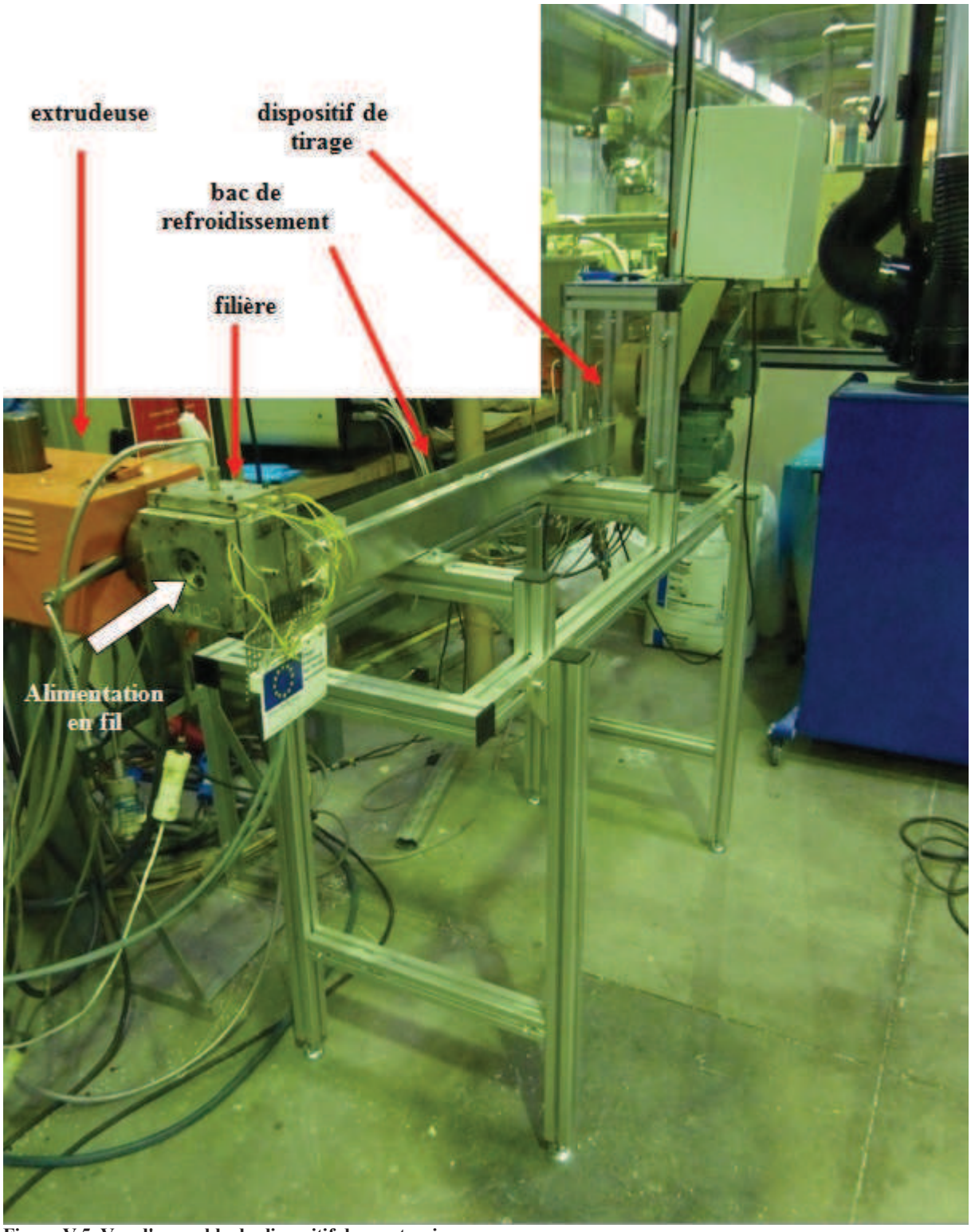


Figure V.5. Vue d'ensemble du dispositif de coextrusion.

V.2.2.2. Matériel utilisé

L'extrudeuse utilisée à l'école des Mines de Douai est une extrudeuse bi-vis dont les principales caractéristiques techniques sont reprises dans le Tableau V.1.

Tableau V.1. Caractéristiques techniques de l'extrudeuse.

Température maximale du fourreau	Couple maximal	Pression maximale
300°C	110 N.m	8 MPa

Cet équipement est dédié à l'extrusion de polymères thermoplastiques. Il faut donc tenter d'extruder un mélange de polymère chargé en particules céramiques, ne disposant pas de matériel adéquat pour extruder des mélanges aussi visqueux que les pâtes céramiques. L'idée est ici de charger, autant que faire se peut, le polymère qui sert de medium de transport pour déposer les particules céramiques sur le fil métallique. Le polymère est ensuite éliminé par traitement thermique pour conserver un dépôt céramique. Il faut donc avoir un taux de charges suffisant pour que les particules céramiques forment un dépôt cohésif sur le fil après élimination du polymère. La limite fixée pour avoir un dépôt suffisamment percolé est d'environ 60 vol.%.

La viscosité d'un tel mélange sera sans doute trop élevée pour le couple admissible par l'extrudeuse. L'idée est alors de jouer sur le profil de température et sur le profil des vis pour extruder un mélange moins visqueux avant son refroidissement en sortie de filière.

Les quantités nécessaires à l'alimentation de l'extrudeuse sont relativement importantes. Il n'est pas envisageable à l'heure actuelle d'utiliser de la poudre céramique PZT et du fil de platine. Des matériaux alternatifs, moins chers et disponibles en grande quantité, sont alors utilisés pour développer le système. Le polymère choisi pour commencer les essais est un polyéthylène de basse densité (PE_{bd}). Le fil métallique utilisé est un alliage de cuivre d'environ 100 µm de diamètre. Les charges céramiques envisagées pour les tests en polymère chargé sont l'oxyde de titane (TiO_2) et l'oxyde de zirconium (ZrO_2).

V.2.2.3. Essais réalisés

Mise en place et test de la filière :

La filière est montée sur l'extrudeuse par l'intermédiaire d'un collier. L'extrudeuse est alimentée en PE seul pour s'assurer que la matière arrive dans la filière et puisse être extrudée sans fuite et sans accumulation excessive de matière. Avec une température de fourreau et de filière à 200°C, le polymère est extrudé de manière continue sans difficulté.

Essai de coextrusion polymère + fil :

Le fil de cuivre est passé au travers de la filière à l'aide du passe-fil de 220 µm. Il est amené jusqu'au dispositif de tirage qui peut être réglé sur des vitesses allant de 1 à 50 mm/s. La vitesse est ajustée pour maintenir le fil sous tension pendant l'extrusion.

Il y a donc une relation entre le débit de l'extrudeuse et la vitesse d'entrainement du fil. En effet, lorsque le fil n'est pas tiré, le débit matière entraîne le fil mais celui-ci n'est pas centré à l'intérieur du dépôt. Si la vitesse est trop élevée, c'est le fil qui entraîne la matière et le dépôt n'est plus homogène à la sortie de la filière. Il faut donc ajuster la vitesse de tirage pour que

les vitesses d'extrusion de la matière et d'avance du fil soient voisines pour assurer le centrage du fil. Ceci a été obtenu pour des vitesses de tirage d'environ 15 mm/s.

Essai de coextrusion polymère + charges + fil :

Différents mélanges sont réalisés pour évaluer progressivement l'influence de l'utilisation d'un composé de plus en plus visqueux. Des mélanges PE/TiO_2 à 20, 40, 60 et 80 vol.% sont ainsi réalisés.

Pour de faibles taux de charges (20 et 40 vol.%), la coextrusion est correctement réalisée en assurant le centrage du fil après avoir augmenté la température du fourreau et de la filière à 250°C pour réduire le couple sur les vis. A partir de 60 vol.%, plusieurs problèmes sont apparus :

- le couple devient très important et dépasse parfois le couple admissible par le système ce qui stoppe l'extrudeuse ;
- l'accumulation de charges dans la filière provoque des obturations. Il a donc fallu à plusieurs reprises démonter et nettoyer la filière pour réaliser de nouveaux essais ;
- l'utilisation de températures élevées et l'accumulation de charges ont conduit à gripper le collier métallique qui permet d'adapter la filière sur l'extrudeuse.

Les températures utilisées sont déjà les plus élevées possibles en fonction des matériaux des équipements (filière, fourreau et collier) et le profil des vis a déjà été adapté au traitement d'un mélange fortement visqueux. Il ne semble donc pas possible d'envisager d'extruder un mélange suffisamment chargé avec l'équipement à disposition.

V.2.2.4. Conclusion

L'utilisation de la technologie polymère chargé pour coextruder un mélange fortement chargé en poudre céramique semble compromise. En effet, il semble que les capacités des extrudeuses utilisés en plasturgie soient insuffisantes pour extruder un mélange suffisamment chargé pour obtenir, après élimination du polymère, un dépôt céramique dense.

Bien que finalement inadéquate pour le développement d'un dépôt céramique dense, cette technologie peut s'avérer intéressante pour développer des dépôts actifs souples, en utilisant par exemple un polymère piézoélectrique chargé (faiblement) en particules céramiques piézoélectriques. Il serait donc possible avec cette technique d'obtenir des fibres actives souples. Néanmoins, les capacités de déformations/efforts seront bien inférieures à celles atteignables avec un dépôt céramique dense, notamment pour des applications d'actionneurs. Cette technique reste intéressante pour le développement de fibres actives dans d'autres domaines d'applications.

V.3. Substitution du platine

Lors du développement d'un produit, le facteur "coût" est très important. En effet, dans le contexte économique actuel, même le plus performant des produits ne sera pas développé si son coût de fabrication est prohibitif. Bien que l'objet des travaux de recherches ne soit pas le développement industriel de ces fibres, réfléchir à ces questions permet d'envisager de nouveaux débouchés.

Le platine est un métal noble très onéreux : le cours de ce matériau atteint les 36 000 €/kg au mois d'août 2013. Sa rareté, son coût d'extraction et de mise en forme expliquent ce chiffre

impressionnant. L'utilisation de ce matériau dans un procédé d'élaboration continu contribuera *ipso facto* à un coût de produit élevé.

Le matériau de l'âme centrale de la fibre doit résister aux conditions de frittage de la céramique. Dans un four électrique conventionnel, les conditions de frittage d'une céramique PZT telle que celle utilisée dans le Chapitre II sont :

- température de frittage ~ 1200°C ;
- durée de frittage ~ quelques heures ;
- atmosphère oxydante.

Il est alors compréhensible d'avoir utilisé du platine jusque-là. Le matériau doit donc présenter les propriétés suivantes pour être utilisable :

- température de fusion élevée ;
- bon conducteur électrique ;
- résistant à l'oxydation dans des conditions sévères ;

Par ailleurs, le coefficient de dilatation thermique peut être déterminant quant au choix du matériau à utiliser. En effet, les contraintes thermomécaniques à l'interface sont proportionnelles à la température et à la différence de dilatation entre les deux matériaux. Des contraintes trop élevées peuvent conduire à la fissuration, à l'écaillage ou à la délamination du dépôt céramique. En considérant les coefficients de dilatations thermiques d'un PZT et du platine, respectivement environ 3 et 9 ppm/°C, il est préférable de considérer des différences de coefficients de dilation inférieures ou égales à 6 pour s'assurer de la tenue du dépôt pendant le frittage.

Le Chapitre IV consacré à modélisation des fibres a montré que la rigidité du matériau de l'âme centrale a une influence sur la capacité de déformation de la fibre. Pour avoir des déformations importantes, il est préférable d'utiliser une âme possédant un module d'élasticité peu élevé.

De même, pour les applications aéronautiques dans lesquelles la masse de chaque objet tend à être minimisée, l'utilisation de matériaux moins denses que le platine (densité de 21,5) peut s'avérer bénéfique.

Le Tableau V.2 présente les propriétés de quelques matériaux envisagés, avec le respect ou non des conditions évoquées ci-dessus. Cette liste non exhaustive permet d'appréhender quelques limitations intervenant dans le choix du matériau pour l'âme métallique.

Tableau V.2. Propriétés de matériaux potentiels pour l'âme centrale des fibres.

	Pt		Au		Ag		Cu	
T_{fus} (°C)	1772	✓	1064	×	962	×	1084	×
α (×10^{-6} °C/K)	9,0	✓	14,1	×	19,1	×	17,0	×
$\rho_{élec.}$ (×10^{-6} Ω.cm)	10,58	✓	2,20	✓	1,63	✓	1,69	✓
Y (×10^{9} Pa)	170	-	79	✓	83	✓	130	✓
$\rho^{20°C}$ (g/cm^3)	21,50	×	19,30	×	10,50	✓	8,92	✓
	Ni		**Ti**		**Mo**		**W**	
T_{fus} (°C)	1453	✓	1660	✓	2617	✓	3410	✓
α (×10^{-6} °C/K)	13,3	×	8,9	✓	5,1	✓	4,5	✓
$\rho_{élec.}$ (×10^{-6} Ω.cm)	6,9	✓	54,0	✓	5,7	✓	5,4	✓
Y (×10^{9} Pa)	199	×	120	✓	325	×	411	×
$\rho^{20°C}$ (g/cm^3)	8,90	✓	5,00	✓	10,22	✓	19,30	×
	Inox 316L		**Inconel 600 ®**		**$Ni_{80}Cr_{20}$**			
T_{fus} (°C)	1370	✓	1200*	✓	1200*	✓		
α (×10^{-6} °C/K)	17,0	×	12,4	×	17,0	×		
$\rho_{élec.}$ (×10^{-6} Ω.cm)	74,0	✓	103	✓	108	✓		
Y (×10^{9} Pa)	200	×	157	✓	180	✓		
$\rho^{20°C}$ (g/cm^3)	7,96	✓	8,42	✓	8,40	✓		

* température maximale d'utilisation dans l'air.

Les métaux nobles (Cu, Ag, Au) ont des propriétés intéressantes mais fondent bien avant la température de frittage de la céramique PZT. D'autres matériaux purement métallique (Ni, Ti, Mo et W) ont des températures de fusion suffisantes mais s'oxydent rapidement dans ces conditions et dégradent les propriétés du matériau. Un acier inoxydable standard (316L) ou des alliages à tenue hautes températures semblent pouvoir convenir : les alliages $Ni_{80}Cr_{20}$ et Inconel 600® ont été retenus pour réaliser des essais. Le principal avantage des alliages métalliques est leur très faible coût, ce qui les rend très attractif pour une production à grande échelle.

La Figure V.6 présente un fil d'Inconel 600® de 0,5 mm de diamètre. Il a l'aspect brillant et une bonne rigidité.

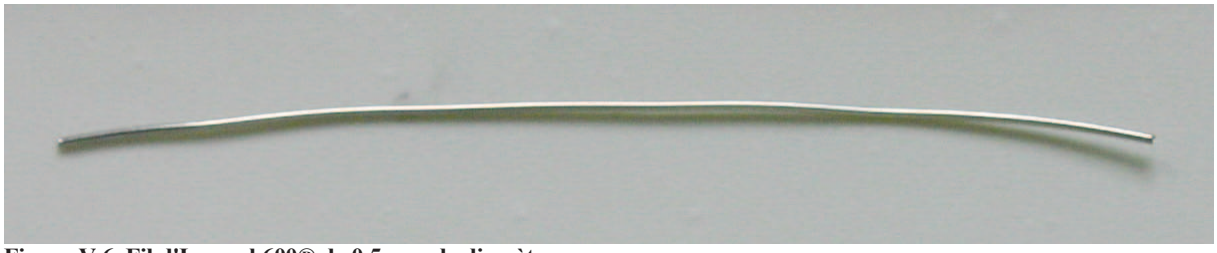


Figure V.6. Fil d'Inconel 600® de 0,5 mm de diamètre.

Avant de réaliser un essai d'enduction avec ce matériau, des essais de tenue en température sont effectués pour s'assurer de la résistance à l'oxydation pendant le traitement thermique de la céramique.

Des fils d'Inconel 600® sont ainsi utilisés lors du traitement thermique d'une céramique piézoélectrique de base PZT à 950°C pendant 4 heures, c'est-à-dire des conditions de traitement moins sévères que le frittage réel. Certains fils sont en contact avec la poudre céramique alors que d'autres sont justes soumis à l'atmosphère riche en oxyde plomb.

La Figure V.7 présente des photographies des fils d'Inconel 600® après le traitement à 950°C.

Figure V.7. Fils d'Inconel 600® traités à 950°C pendant 4 heures en contact (à gauche) et sans contact (à droite) avec la poudre PZT.

Que le fil soit en contact ou non avec la poudre PZT, l'environnement oxydant détériore le matériau du fil métallique : il devient noir, cassant et friable. Cependant, le fil traité sans contact avec la poudre garde sa forme initiale tandis que le fil en contact avec la poudre est complétement déformé.

Avec ces conditions de frittage, il semble difficile d'imaginer pouvoir utiliser les alliages métalliques à tenue hautes températures. Il peut alors être intéressant de réduire la température de frittage pour utiliser d'autres matériaux comme les métaux nobles. Par ailleurs, la réduction de la température de frittage permet de réduire le coût énergétique ce qui peut également être intéressant.

V.4. Abaissement de la température de frittage

L'abaissement de la température de frittage de céramiques piézoélectriques comme les PZT ont toujours fait l'objet de nombreux travaux de recherches. En effet, les céramiques PZT sont très utilisées en microélectronique à l'état de dépôt et il convient alors, comme dans notre cas, de fritter la céramique et le substrat en une seule étape.

La voie majoritairement étudiée pour réduire la température de frittage est d'ajouter à la poudre céramique des composés qui vont permettre d'obtenir la densification du matériau à des températures inférieures. Cependant, l'introduction de nouveaux composés entraîne une chute de propriétés piézoélectriques qui peut généralement être attribuée à plusieurs phénomènes :

- la présence d'une phase non piézoélectrique aux joints de grains qui perturbe l'état de polarisation macroscopique du matériau ;
- la substitution de ces composés dans le réseau de la PZT qui entraîne une perturbation de la structure cristallographique.

Il est donc envisagé d'utiliser des additifs de frittage pour réduire la température de frittage de la poudre PZT commerciale dans le but d'utiliser de nouveaux matériaux pour l'âme métallique sous réserve de conserver des propriétés piézoélectriques satisfaisantes.

V.4.1. Eléments de bibliographie sur les additifs de frittage

La réduction de la température de frittage des céramiques PZT est un problème récurrent pour résoudre un certain nombre de problèmes dans les processus industriels :

- l'utilisation de températures de frittage élevées (> 1000°C) conduit nécessairement à des dépenses énergétiques importantes ;
- les composants multicouches ou les dépôts piézoélectriques nécessitent d'utiliser des matériaux onéreux comme électrode pour résister pendant le traitement de frittage, ce qui accroit de façon considérable le coût final du produit ;
- ces températures élevées posent également le problème de la volatilisation de l'oxyde de plomb pendant le processus de fabrication. Ceci peut conduire aux modifications des propriétés du matériau sans oublier les problèmes environnementaux que cela peut entraîner.

L'utilisation de composés qui peuvent fondre à une température bien inférieure à la température de frittage permet d'introduire une phase liquide qui facilite la densification à plus basse température [CORKER 2000]. L'action mouillante de la phase liquide permet de générer des forces capillaires qui vont attirer les grains entre eux. Par ailleurs, cette phase liquide facilite la réorientation des grains pour former une structure plus compacte [KINGERY 1959]. L'action combinée de ces deux mécanismes favorise la densification à plus basse température pour de faibles proportions d'additifs.

Néanmoins, la présence de cette phase liquide dans la structure du matériau perturbe les propriétés piézoélectriques [CORKER 2000]. En effet, la présence d'une phase secondaire non piézoélectrique aux joints de grains peut perturber l'organisation des domaines ferroélectriques à longue distance. De plus, les composés ajoutés peuvent parfois intégrer la structure pérovskite et modifier ainsi la structure chimique du matériau. Il s'agit donc généralement de trouver un compromis pour obtenir un abaissement de température et des propriétés piézoélectriques satisfaisantes.

La littérature référence ainsi de nombreux composés utilisés comme aide au frittage de PZT [SEVEYRAT 2002] : des eutectiques à base d'oxyde de plomb comme PbO-PbF_2, PbO-B_2O_3, PbO-Cu_2O, PbO-GeO_2, des eutectiques à base de $LiBiO_2$ avec ou sans ajout de CuO, *et cetera*. La comparaison de ces différents additifs est parfois difficile car les auteurs n'étudient pas toujours toutes les propriétés mais peuvent s'intéresser aux propriétés diélectriques, à la polarisabilité, à la densification ou aux propriétés piézoélectriques. Par ailleurs, les résultats dépendent fortement du matériau utilisé (nature chimique, taille des grains…) et il existe donc des couples matériau de base/additifs différents pour chaque système. En d'autres termes, l'ajout de *n* % d'un additif n'aura pas forcément le même impact sur un matériau $PbZr_{0,52}Ti_{0,48}$, que sur un matériau $PbZr_{0,48}Ti_{0,52}$, ou encore un PZT dopé.

Comme l'objectif n'est pas de réaliser une étude complète sur l'abaissement de la température de frittage de la poudre PZT utilisée, les résultats les plus intéressants issus de la bibliographie sont exploités afin de vérifier la transposition à la composition utilisée. Dans le cas présent, l'objectif est de pouvoir fritter la céramique PZT à une température au moins inférieure à 950°C pour espérer utiliser l'argent (dans un premier temps) comme substitut au platine pour la réalisation des fibres à cœur métallique.

Ce sont ainsi les travaux de Corker et *al*. qui ont été pris comme référence [CORKER 2002, 2000, WHATMORE 2001]. L'additif considéré est à base d'une mélange d'oxyde de plomb et d'oxyde de cuivre (I) et fait l'objet d'un brevet [WHATMORE 2001] pour son utilisation avec un rapport molaire Cu_2O/ PbO = 1:4 à hauteur de 5 m% pour réduire la température de frittage d'une céramique PZT conventionnellement frittée à 1260°C. La Figure V.8 présente le diagramme de phases du système Cu_2O:PbO. La composition eutectique est caractérisée par une température de fusion de 680°C.

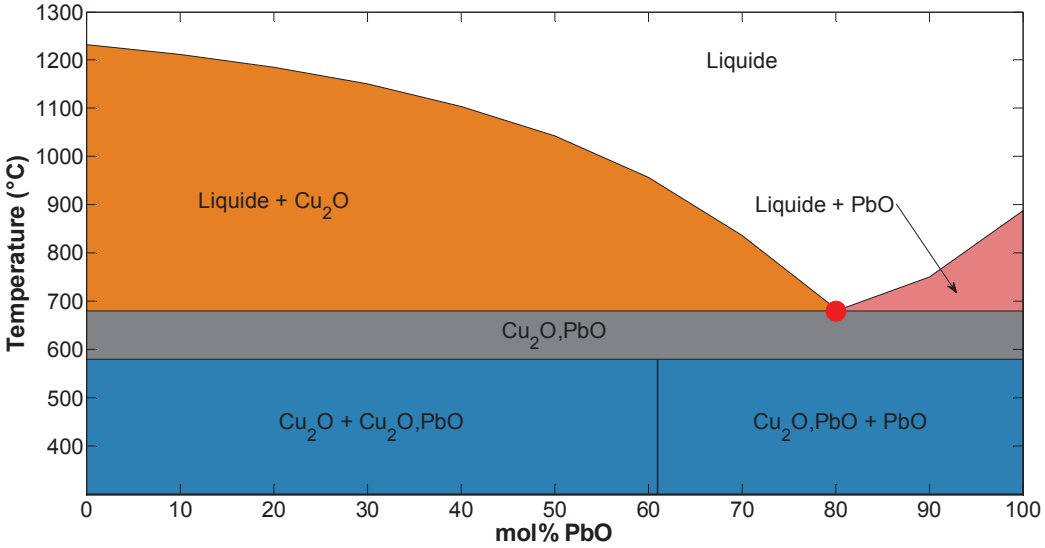


Figure V.8. Diagramme binaire du système Cu_2O:PbO, d'après [CORKER 2000].

D'autres travaux sur l'optimisation de la composition [CORKER 2000] et sur l'utilisation avec des films épais [CORKER 2002] permettent d'établir que 3 m% de Cu_2O/PbO permettent de garantir de 50 à 70% des propriétés piézoélectriques (k_p et d_{31}) et des densités relatives de 81 à 100% pour des températures de frittage de 800 à 950°C.

Des essais préliminaires sur des échantillons massifs sont alors entrepris pour vérifier l'impact sur la densité et les propriétés piézoélectriques de la poudre commerciale utilisée avant d'utiliser cette composition pour la réalisation de MCPF.

V.4.2. Expérimentation sur massifs

L'additif utilisé est un mélange de Cu_2O et de PbO dans un rapport molaire 1:4, c'est-à-dire la composition eutectique. L'additif est ajouté à la poudre PZT à hauteur de 3% massique. Pour simplifier l'écriture par la suite, l'additif sera noté CP3 pour Cu_2O:PbO à 3m%.

V.4.2.1. Elaboration

Un premier test est effectué en ajoutant au mortier l'additif CP3 correspondant à 2g de poudre piézoélectrique commerciale. Un second mélange est effectué en milieu humide au planétaire (EtOH-2h) sur une plus grande quantité de poudre (100g). Par la suite, après avoir mis en évidence un problème de dispersion des additifs lors de la préparation des barbotines suite à l'utilisation de précurseurs à gros grains (>10 µm), les additifs ont été broyés par attrition en milieu aqueux avant d'être ajoutés à la poudre commerciale au mortier.

Les difficultés rencontrées pour mesurer la taille des particules de l'oxyde de cuivre par dispersion dans un liquide (granulométrie laser pour l'oxyde de plomb) ont conduit à comparer l'évolution de la surface spécifique pour vérifier l'efficacité du broyage. Le Tableau V.3 présente les tailles de grains obtenues pour les deux additifs.

Tableau V.3. Evolution de la taille de grains après broyage par attrition des précurseurs utilisés comme additifs de frittage.

PbO (Granulométrie laser)	d_{50} (µm)	
PbO	12,28	
PbO après attrition	0,98	
Cu_2O (Méthode B.E.T.)	**$S_{spéc.}$ (m^2/g)**	**D_{BET} (µm)**
Cu_2O	0,24	4,22
Cu_2O après attrition	6,41	0,16

V.4.2.2. Analyse thermodilatométrique

L'analyse du retrait linéaire en fonction de la température sur un échantillon avec l'additif CP3 permet de vérifier l'impact sur la densification de l'échantillon.

A titre de rappel, la Figure V.9 présente la courbe de l'analyse thermomécanique d'un échantillon de poudre commerciale mis en forme par pressage isostatique à 300 MPa, monté en température jusque 1200°C à une vitesse de 5°C/min.

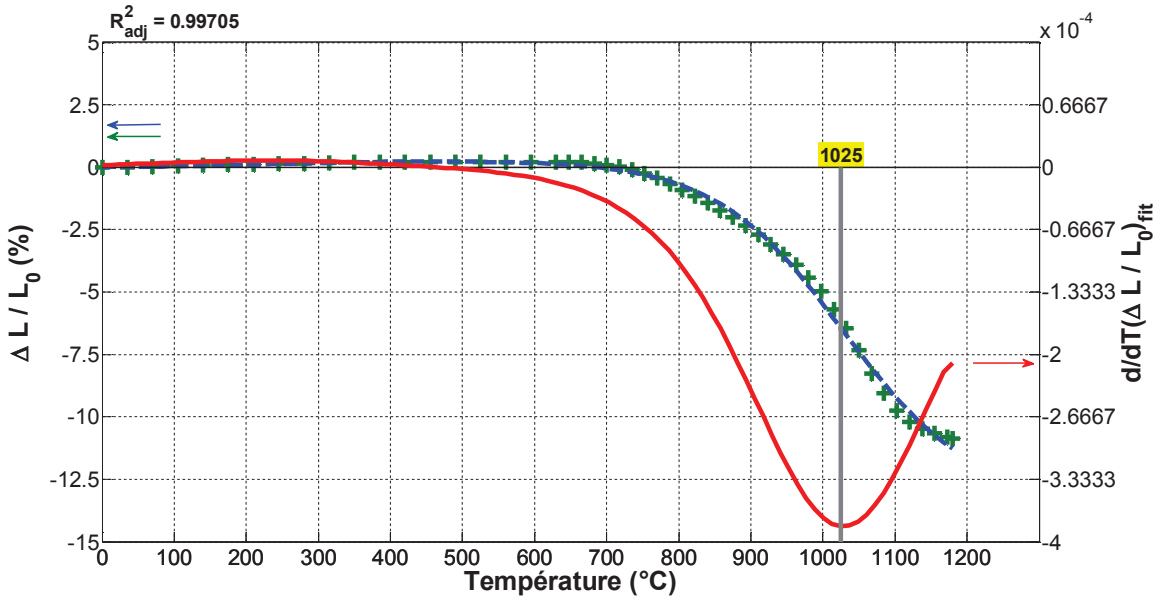


Figure V.9. Analyse thermomécanique d'un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale.

Deux échantillons mis en forme dans les mêmes conditions et préparés avec CP3 ajoutés par voie solide (mortier) et humide (au planétaire dans EtOH) sont analysés de la même manière jusque 950°C. Les figures V.10 et V.11 présentent les courbes retrait-température obtenues à partir de ces deux échantillons.

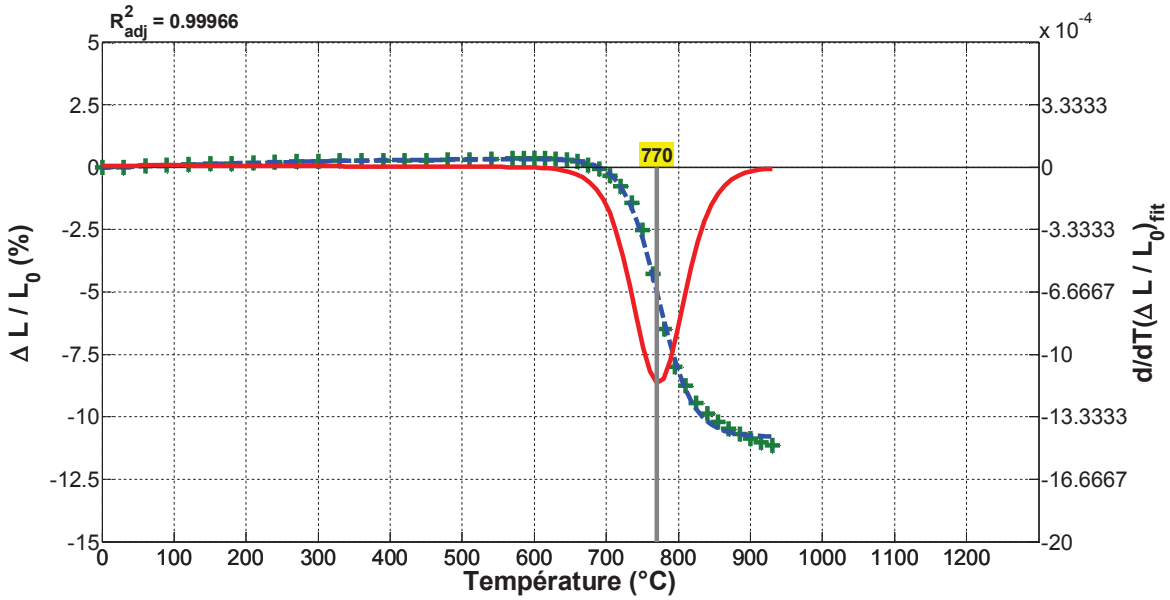


Figure V.10. Analyse thermomécanique d'un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3.

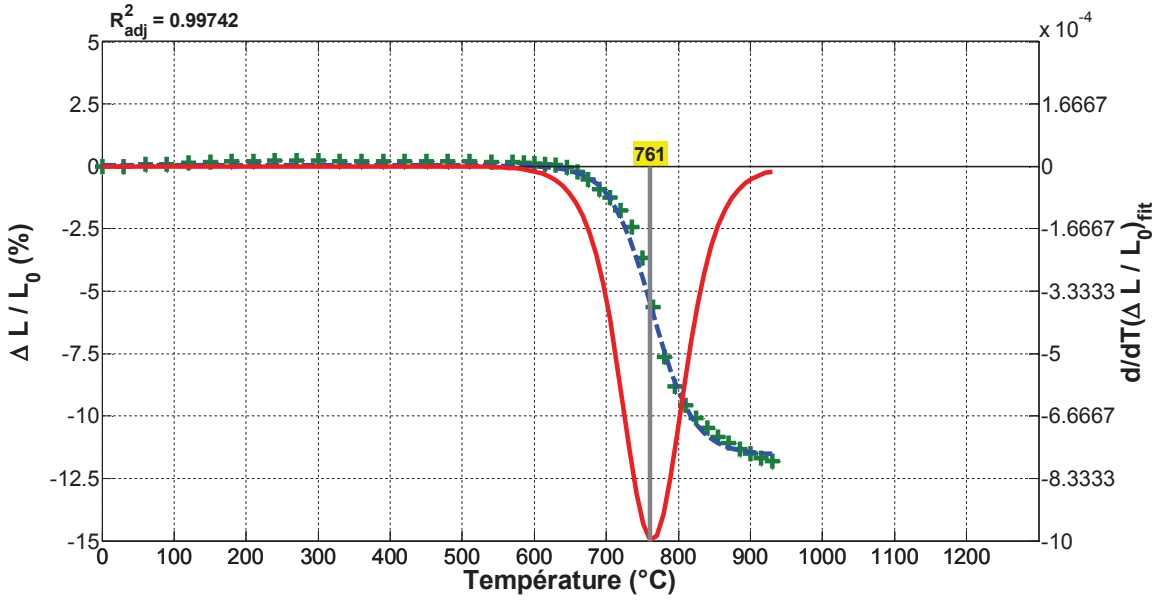


Figure V.11. Analyse thermomécanique d'un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire de CP3.

En l'absence d'additifs, le frittage débute vers 750°C. La vitesse maximale est atteinte à 1025°C et le retrait maximal observé à 1200°C est de l'ordre de 11%.

En présence de CP3, le frittage commence un peu avant 700°C. Cette température correspond à la fusion de la phase eutectique qui débute vers 680°C. La vitesse maximale est atteinte vers 765°C, soit 260°C de moins qu'en l'absence d'additifs, et le retrait maximal observé est de l'ordre de 12% entre 900 et 950°C. Par ailleurs, l'ajout d'additifs au mortier ou en passant par un mélange en voie humide n'a pas d'influence significative sur le comportement au frittage des échantillons massifs.

L'impact sur la densification de l'utilisation de CP3 est significatif. Des retraits équivalents au frittage à 1200°C sont obtenus dès 900°C. Il est donc possible de fritter la poudre commerciale avec l'additif CP3 et espérer de bonne densification à une température aussi

basse que 950°C. Néanmoins, cela ne laisse présager en rien des caractéristiques piézoélectriques.

V.4.2.3. Densification à 950°C / 6 heures

La Figure V.12 présente une photographie d'un échantillon massif carotté avec additifs fritté dans ces conditions. L'aspect visuel est le même quelles que soient les conditions de mélange et de broyage des additifs.

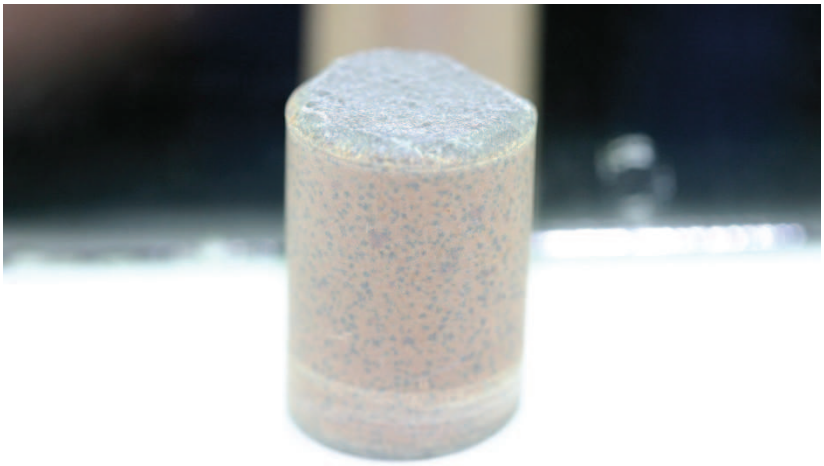


Figure V.12. Photographie d'un échantillon massif carotté avec additifs (ajoutés par voie liquide au planétaire) frittés à 950°C pendant 6 heures.

L'échantillon est coloré en jaune orangé avec de nombreuses tâches grises. La teinte orangée est due à l'ajout d'oxyde de plomb et la teinte grisâtre est caractéristique de l'oxyde de cuivre. Cet aspect est apparemment indépendant de la taille initiale des additifs et des conditions de mélange.

Le Tableau V.4 présente les densités après frittage à 950°C pendant 6 heures des différents échantillons.

Tableau V.4. Densités mesurées sur des échantillons massifs frittés à 950°C/6h mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout de CP3 au mortier et au planétaire.

	ρ (g.cm^{-3})	$\%d_{théorique}$
Sans additifs 950/6	6,89	93
CP3 mort. 950/6	7,44	~100
CP3 plan. 950/6	7,25	98
CP3 attr. mort. 950/6	7,28	98

Les densités relatives sont très élevées (>98%) quelles que soient les conditions de préparation des échantillons. Les densités des échantillons avec additifs sont bien supérieures à la densité d'un échantillon sans additifs fritté dans les mêmes conditions.

L'utilisation de l'additif CP3 permet donc bien la densification à plus basse température (950°C) des échantillons élaborés à partir de poudre piézoélectrique commerciale.

V.4.2.4. Diffractogrammes-X

Les figures V.13, V.14 et V.15 présentent les diffractogrammes-X obtenus sur des échantillons massifs préparés dans différentes conditions et frittés à 950°C pendant 6 heures.

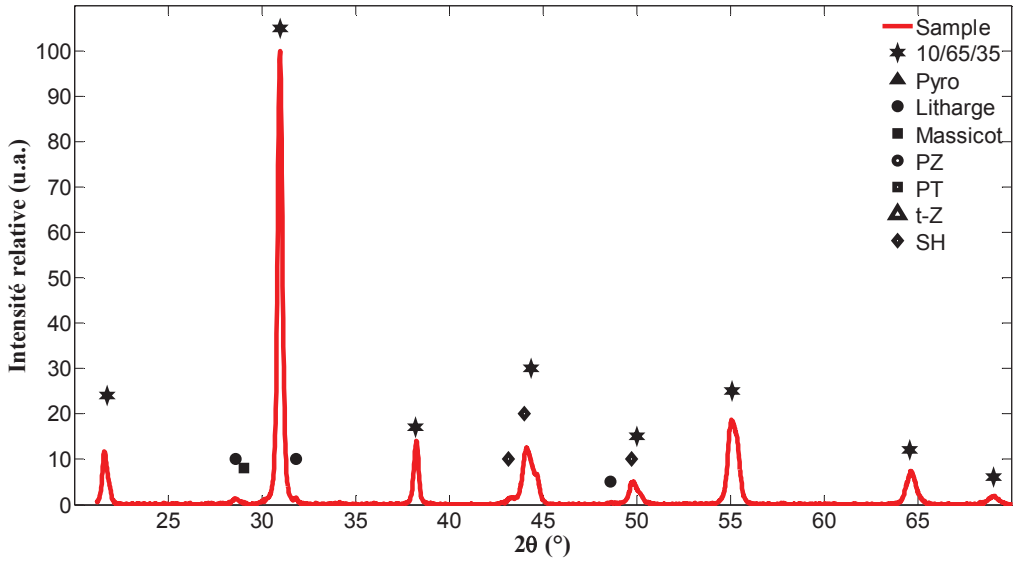


Figure V.13. Diffractogramme d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 fritté à 950°C/6h.

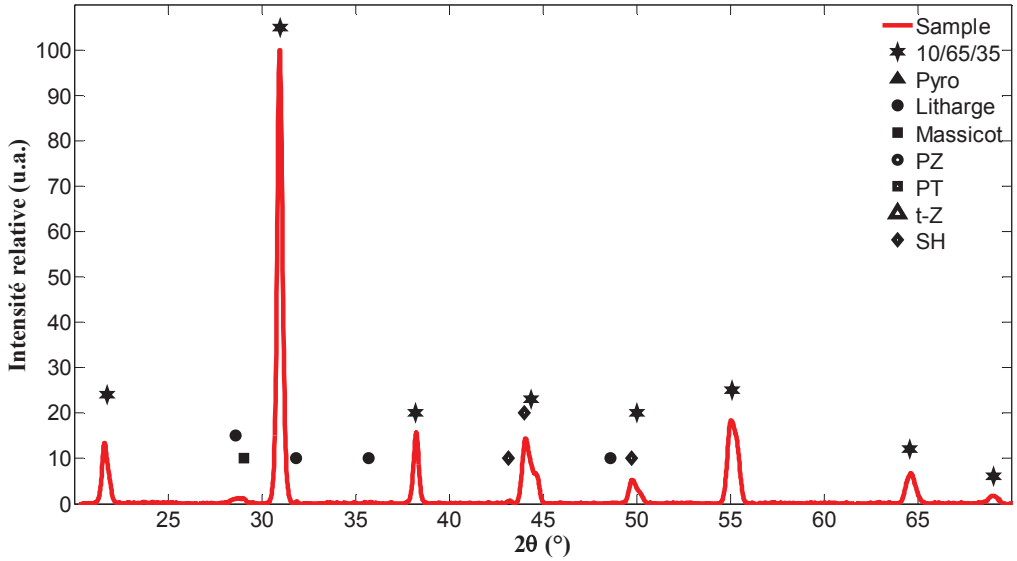


Figure V.14. Diffractogramme d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire de CP3 fritté à 950°C/6h.

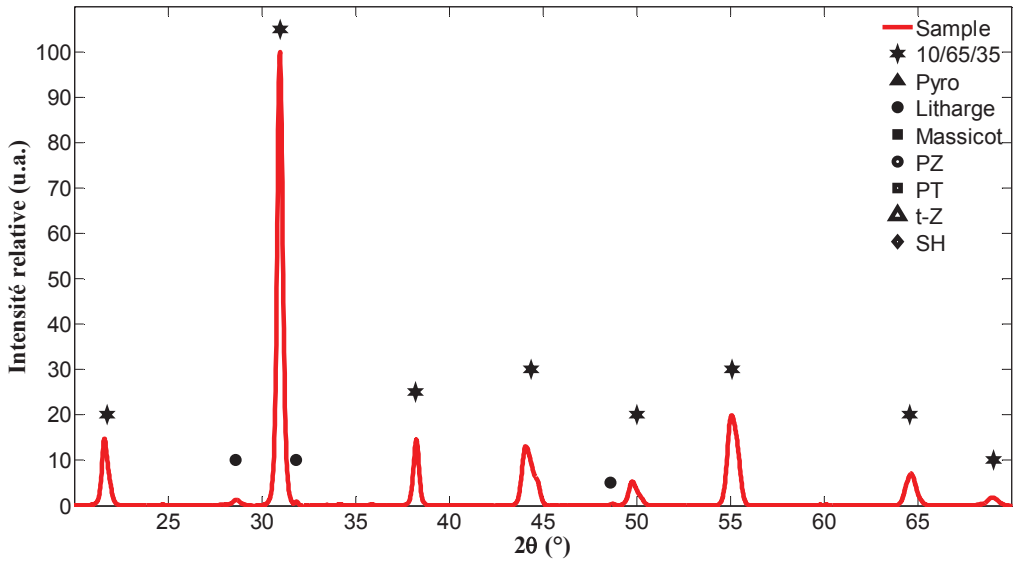


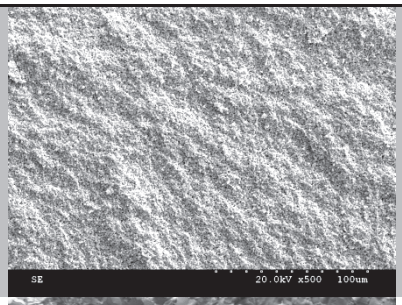
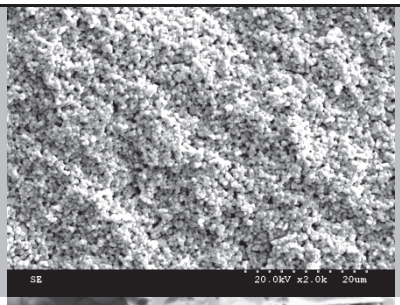
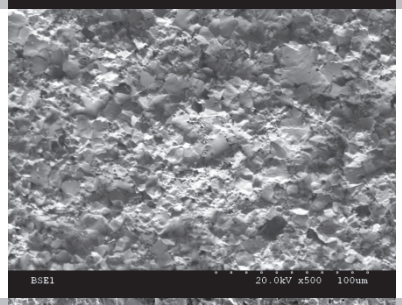
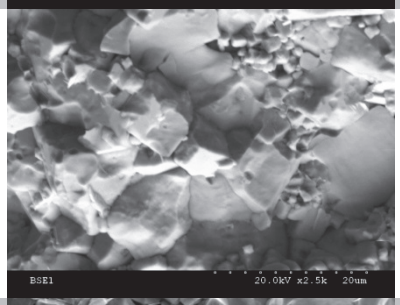
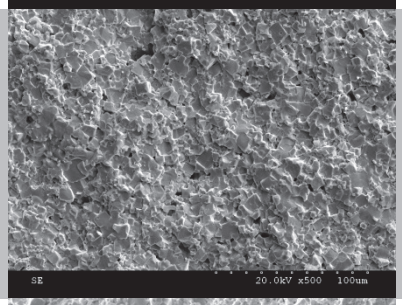
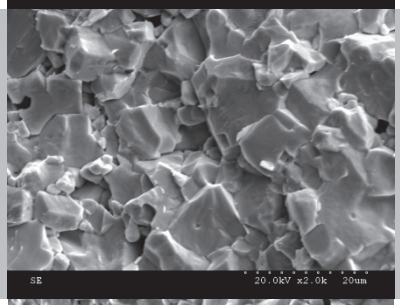
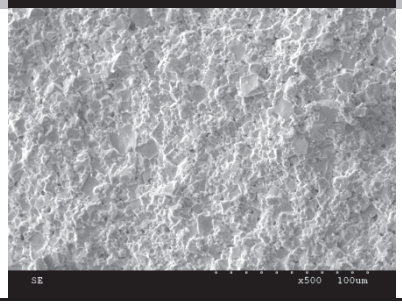
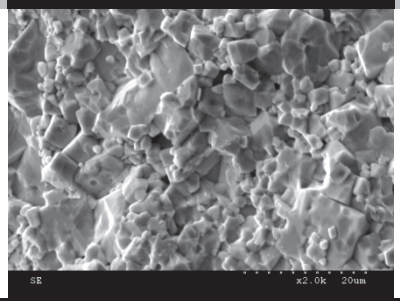
Figure V.15. Diffractogramme d'un échantillon massif mis en forme à partir de la poudre commerciale et d'additifs préalablement broyés par attrition et ajoutés au mortier fritté à 950°C/6h.

La structure cristalline de la poudre PZT ne semble pas être modifiée par la présence des additifs. On peut supposer que l'oxyde de cuivre ne s'intègre pas ou peu au réseau du PZT. Cette hypothèse a été vérifiée par Corker *et al.* [CORKER 2000]. L'identification de la phase PbO libre est conséquente à l'ajout de PbO pour former l'eutectique PbO-Cu_2O. La disparition de la phase massicot avec l'utilisation des additifs préalablement broyés est attribuée au changement de phase massicot → litharge par action mécanique lors du broyage.

V.4.2.5. Microstructures

Le Tableau V.5 présente les microstructures observées sur les différents échantillons frittés à 950°C pendant 6 heures, avec CP3 et sans additifs de frittage.

Tableau V.5. Microstructures des échantillons massifs sans et avec aides de frittage (CP3) observées au microscope électronique à balayage.

	× 500	× 2000
Sans additifs 950/6 (SE)		
CP3 mort. 950/6 (BSE) **! ×2500 !**		
CP3 EtOH-2h 950/6 (SE)		
CP3 attr. mort. 950/6 (SE)		

Dans les différents cas, la présence de la phase liquide est notable et l'on observe également de très gros grains. L'utilisation des additifs préalablement broyés permet d'obtenir des zones à taille de grains raisonnables (~ 2µm) malgré la présence de très gros grains.

La Figure V.16 présente une autre microstructure d'un échantillon sans additifs fritté à 950°C à plus fort grossissement.

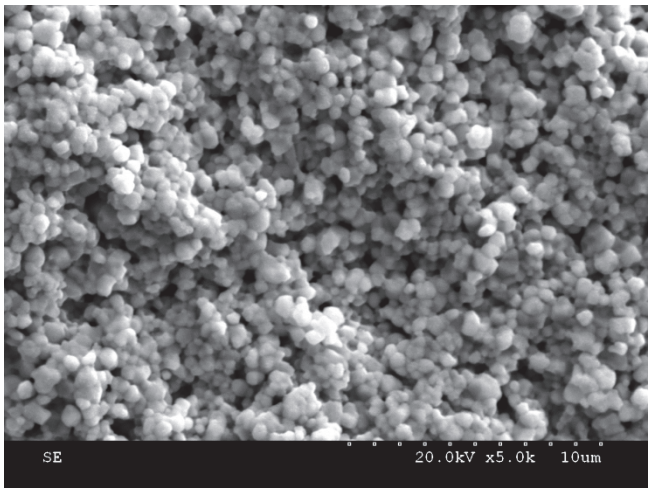


Figure V.16. Microstructure d'un échantillon sans additifs frittés à 950°C pendant 6 heures.

La différence avec les échantillons avec additifs est remarquable : il n'y a pas de trace de phase liquide, les grains sont relativement petits (~ 1 µm) et il existe des zones où la densification n'est pas complète. Ce dernier point confirme les résultats de densités obtenus sur ces échantillons.

V.4.2.6. Cycles d'hystérésis ferroélectriques

Le Tableau V.6 reprend les grandeurs ferroélectriques (polarisation rémanente P_r et champ coercitif E_c) mesurées à des valeurs de champs électriques appliqués de 3 kV/mm. L'échantillon de référence sans additifs fritté à 950°C/6h est également indiqué.

Les pastilles caractérisées issues de l'échantillon élaboré à partir d'additifs mélangés au planétaire présentent certaines singularités : des pastilles présentaient des bords clairs (orangés) alors que d'autres présentaient des bords sombres (gris foncés). Les caractérisations ferroélectriques sont alors déterminées sur ces deux types d'échantillons.

Tableau V.6. Grandeurs ferroélectriques mesurées à 3kV/mm pour les échantillons sans et avec additifs de frittage (CP3) frittés à 950/6.

	- 950/6	CP3 mort. 950/6	CP3 plan. 950/6 "clair"	CP3 plan. 950/6 "foncé"	CP3 attr. mort. 950/6
P_r (µC/cm²)	17,64	19,01	31,03	24,87	23,35
E_c (kV/mm)	1,19	0,92	1,08	2,22	1,14

Les valeurs de polarisation semblent plus élevées pour l'échantillon élaboré par un mélange en voie liquide. Néanmoins, la différence de comportement observée sur ces échantillons n'est pas présente pour les échantillons élaborés par mélange au mortier. Il semble par ailleurs que les additifs préalablement broyés favorisent une meilleure dispersion permettant ainsi l'obtention de propriétés plus élevées.

Les figures V.17 à V.26 présentent les cycles d'hystérésis mesurés à température ambiante et l'évolution des grandeurs ferroélectriques avec l'intensité du champ électrique appliqué pour les différents échantillons élaborés sans et avec des additifs (CP3).

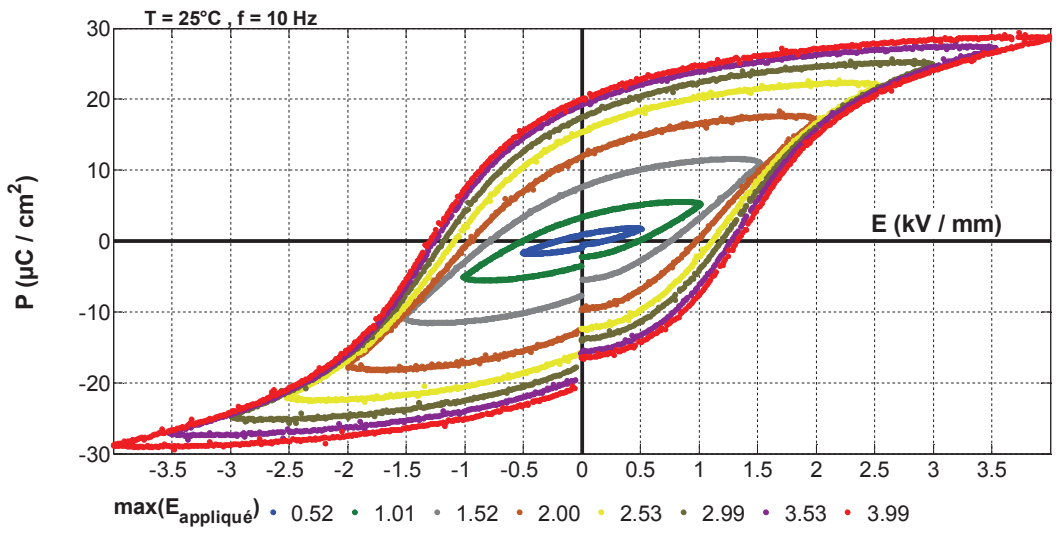


Figure V.17. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale sans additifs fritté à 950°C/6h.

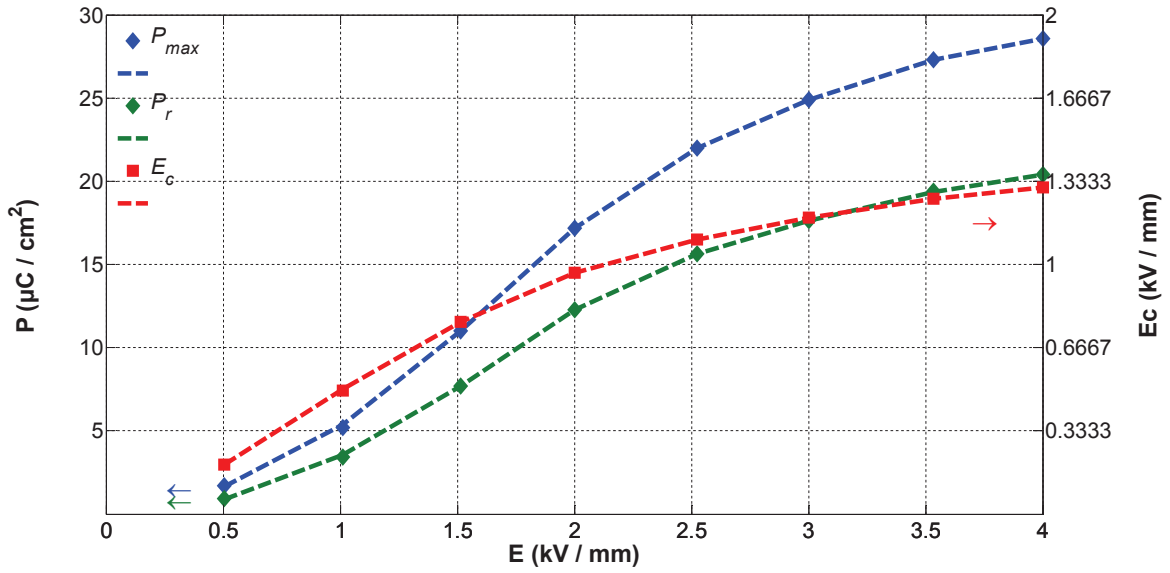


Figure V.18. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale sans additifs fritté à 950°C/6h.

Par rapport aux cycles d'hystérésis obtenus dans des conditions de frittage plus favorables (Chapitre III, $T_{frittage}$ = 1200°C), les valeurs atteintes par la polarisation rémanente aux champs électriques les plus élevés sont inférieures (~ 20 µC/cm² au lieu de 35 µC/cm²) et de la même manière, les champs coercitifs sont plus élevés (~1,3 kV/mm au lieu de ~1,0 kV/mm). Le frittage à basse température conduit donc à réduire la polarisabilité du matériau suite à une microstructure moins dense et moins homogène (chimiquement et cristallographiquement).

Sur ce point, Corker *et al.* précise que le frittage conventionnel à haute température permet, en plus de la densification, de compléter la formation de la phase PZT et d'augmenter l'organisation à longue distance de la structure pérovskite, ce qui favorise la polarisabilité du matériau et l'obtention de propriétés électriques plus importantes [CORKER 2000].

Ceci permet d'expliquer que le matériau fritté à basse température préserve un caractère ferroélectrique : les cycles d'hystérésis sont toujours ouverts et présentent un état de

saturation, mais la forme du cycle est plus arrondie et les valeurs atteintes par la polarisation sont plus faibles, ce qui traduit une orientation des domaines ferroélectriques plus progressive et une organisation longue distance plus difficile.

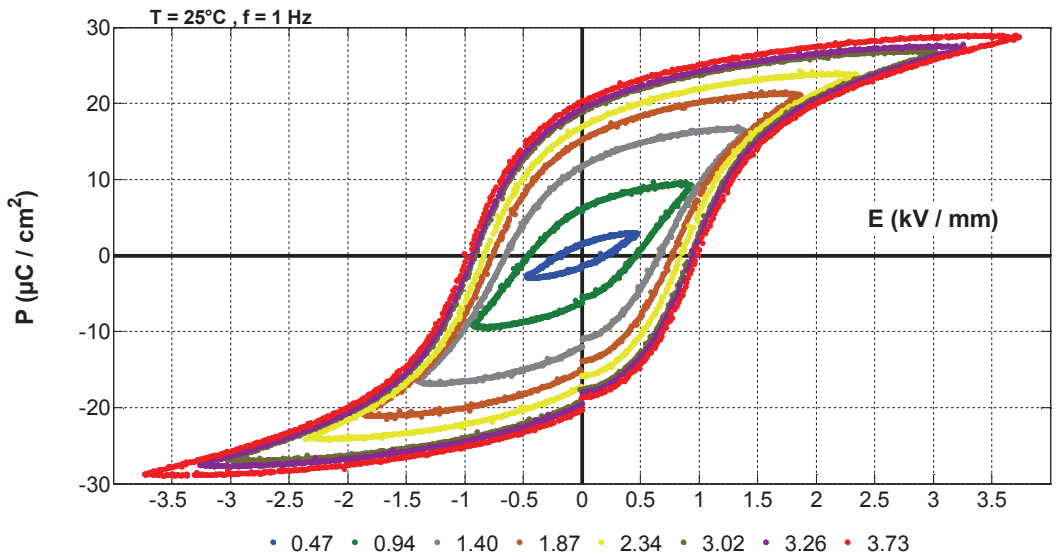


Figure V.19. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 et fritté à 950°C/6h.

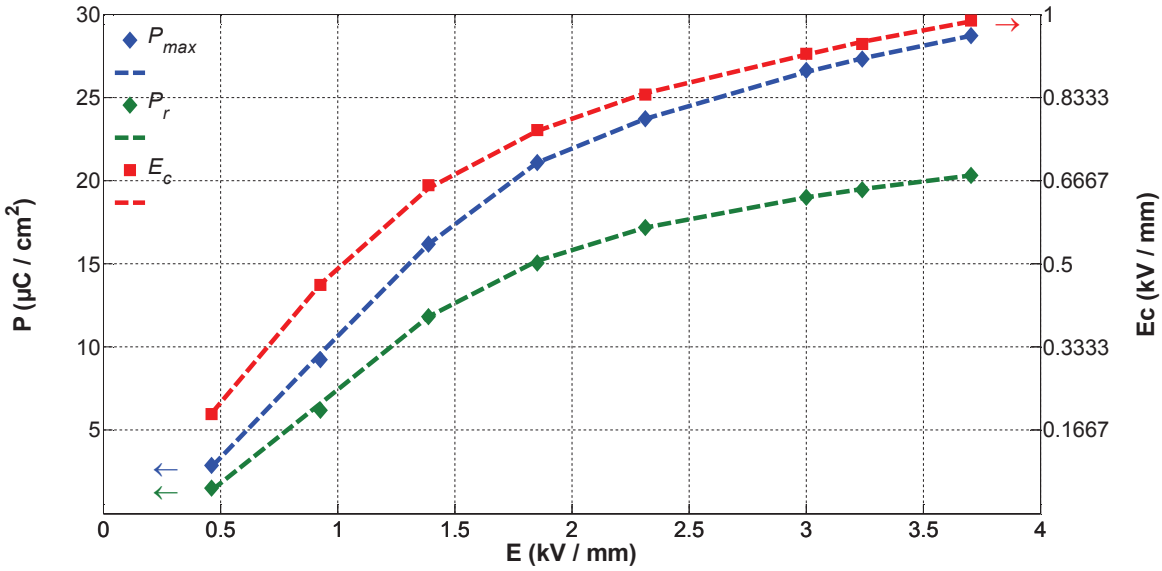


Figure V.20. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 et fritté à 950°C/6h.

L'ajout de CP3 pour le frittage à basse température ne modifie pas significativement les valeurs de polarisation. Néanmoins, l'augmentation de la densité par l'introduction d'une phase secondaire permet de faciliter la polarisation (les champs coercitifs sont plus faibles) en améliorant la continuité de la phase piézoélectrique.

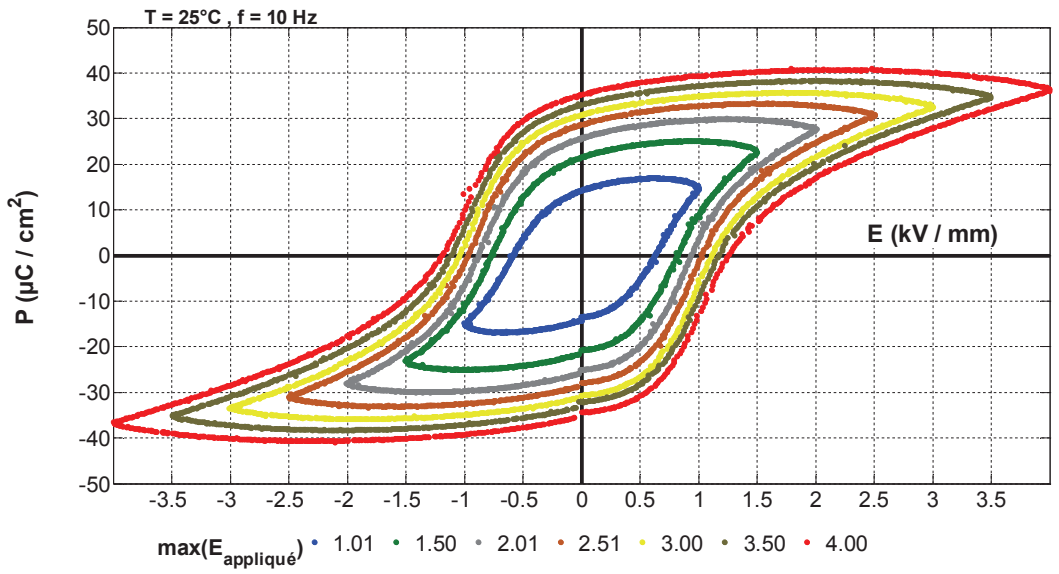


Figure V.21. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon "clair" mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire (EtOH-2h) de CP3 et fritté à 950°C/6h.

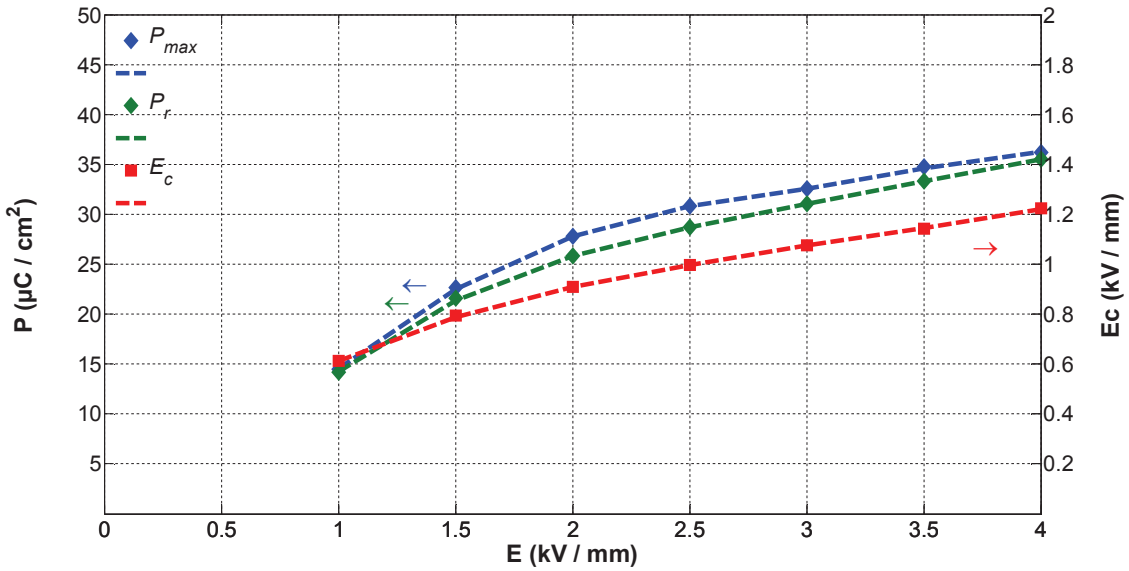


Figure V.22. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon "clair" mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire (EtOH-2h) de CP3 et fritté à 950°C/6h.

Sur ce premier type d'échantillons issus du mélange au planétaire en milieu humide de CP3 présentant une coloration claire, les cycles d'hystérésis sont très larges et arrondis. La principale différence vient du fait que de la polarisation rémanente à la polarisation à saturation, l'évolution n'est plus monotone. Cette forme est caractéristique d'un système fortement dissipatif.

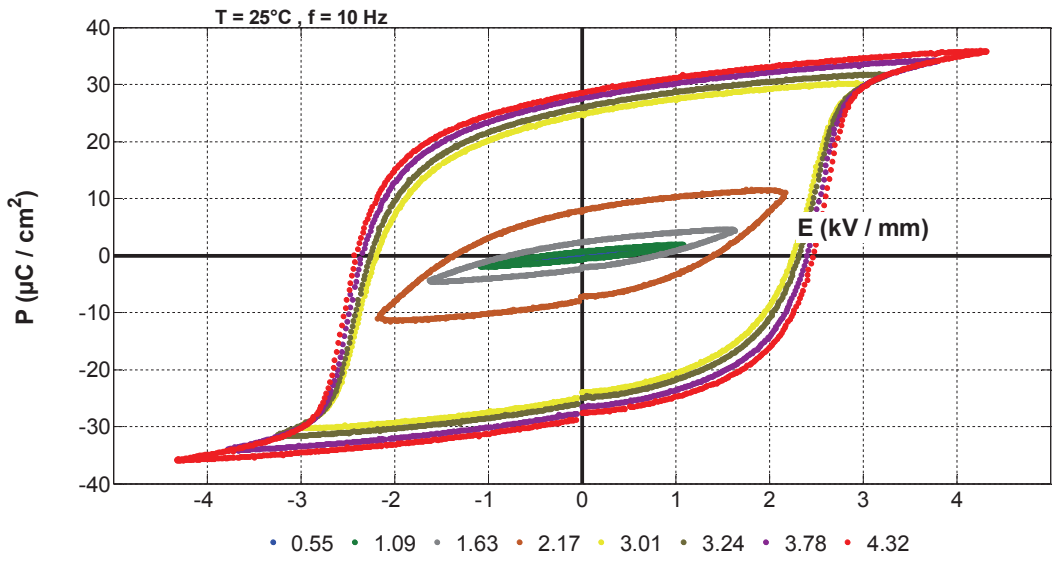


Figure V.23. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon "foncé" mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire (EtOH-2h) de CP3 et fritté à 950°C/6h.

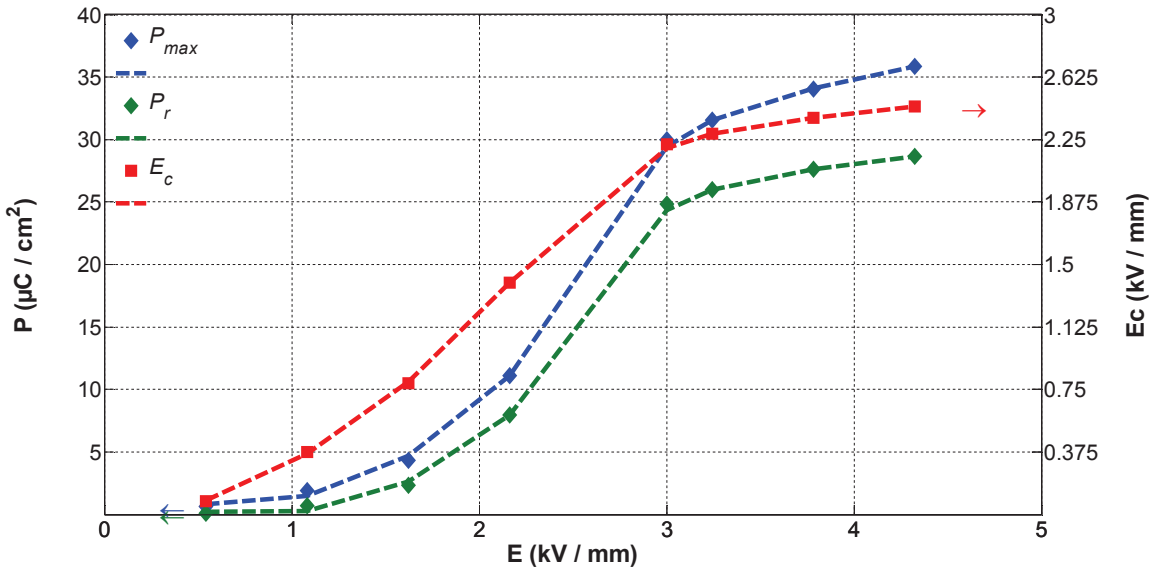


Figure V.24. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon "foncé" mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au planétaire (EtOH-2h) de CP3 et fritté à 950°C/6h.

Sur ce second type d'échantillons issus du mélange au planétaire en milieu humide de CP3 présentant une coloration foncée, les cycles d'hystérésis sont extrêmement larges et présentent cette fois un phénomène de saturation à champ électrique élevé. Les valeurs très élevées du champ coercitif indiquent une faible mobilité des domaines ferroélectriques qui ont des difficultés pour s'orienter dans le sens du champ électrique appliqué.

Ces deux types d'échantillons traduisent un état de grande hétérogénéité (chimique, densité…) dans le matériau avec les additifs ajoutés en milieu humide. Les comportements observés ne semblent pas favorables à la réalisation de matériau homogène par dispersion des additifs en milieu humide au planétaire.

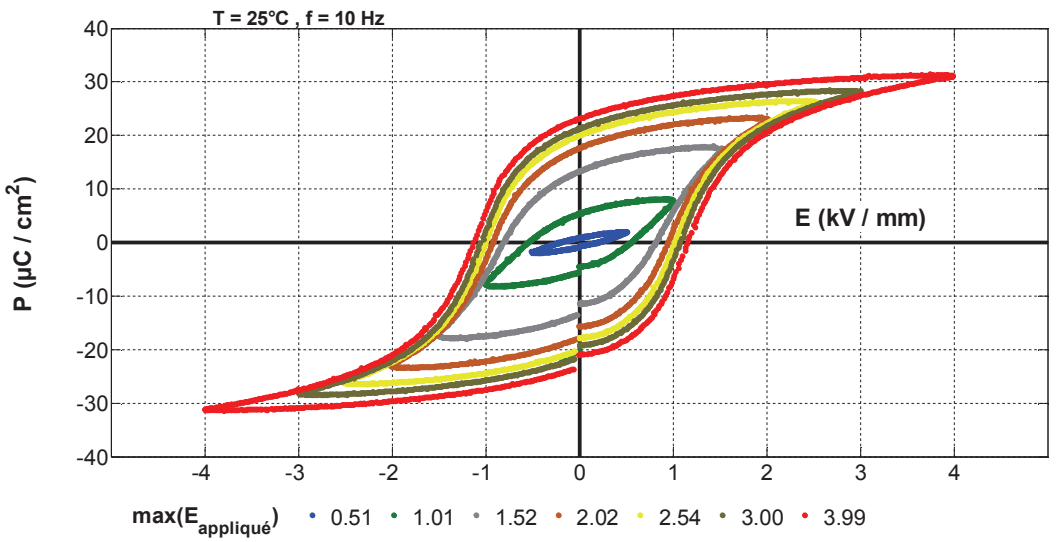


Figure V.25. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 préalablement broyés et fritté à 950°C/6h.

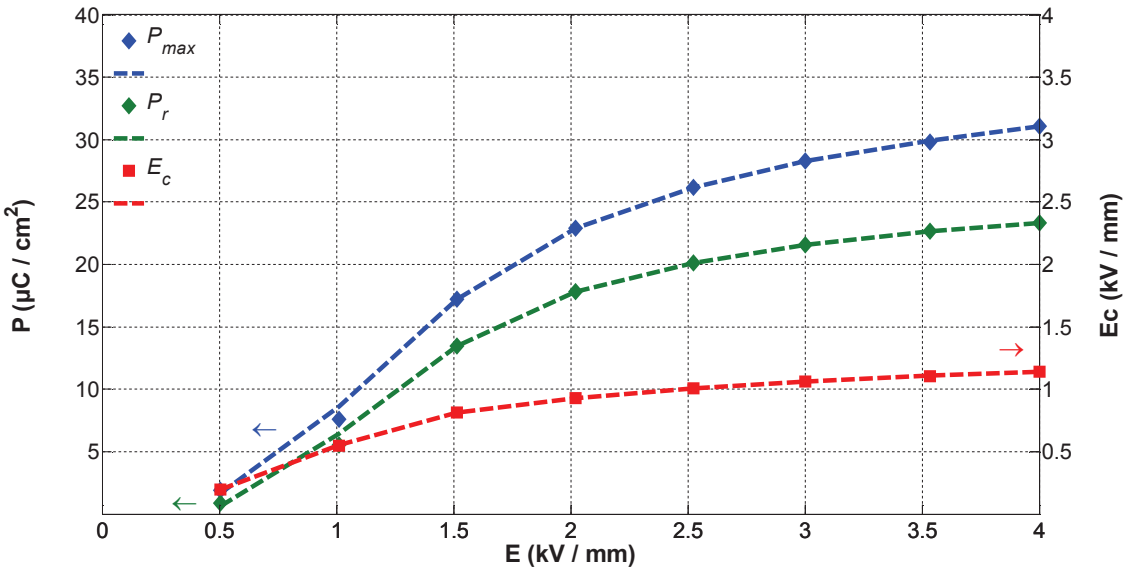


Figure V.26. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon mis en forme à partir de la poudre commerciale avec ajout au mortier de CP3 préalablement broyés et fritté à 950°C/6h.

Les additifs préalablement broyés semblent favoriser l'homogénéisation du matériau : la forme des cycles est plus rectangulaire, caractéristique généralement obtenue lors des frittages à haute température. De même les valeurs atteintes par la polarisation sont plus élevées que l'échantillon de référence sans additifs ou avec l'addition de CP3 non broyés.

L'utilisation d'additifs de tailles plus fines favorisant leur dispersion dans le matériau PZT améliore donc la polarisabilité du matériau fritté à basse température.

V.4.2.7. Caractéristiques piézoélectriques

Les tableaux V.4, V.5 et V.6 présentent les différentes caractéristiques piézoélectriques mesurées sur les échantillons avec additifs frittés et polarisés. Les valeurs obtenues sur un échantillon sans additifs fritté dans les mêmes conditions sont également indiquées.

Tableau V.7. Evolution des coefficients piézoélectriques (d_{33} et d_{31}) pour des échantillons avec et sans aditifs de frittage.

950°C/6h	d_{33} (×10-12 m/V)	d_{31} (×10^{-12} m/V)
Sans additifs	75	25
CP3 mort.	220	-85
CP3 plan.	210	-82
CP3 (attr.) mort.	260	-105

Tableau V.8. Evolution de caractéristiques piézoélectriques (k_p et s_{11}^E) pour des échantillons avec et sans aditifs de frittage.

950°C/6h	k_p	s_{11}^E (×10^{-12} m²/N)
Sans additifs	0,17	11,8
CP3 mort.	0,32	12,9
CP3 plan.	0,33	12,8
CP3 (attr.) mort.	0,39	12,6

Tableau V.9. Evolution des caractéristiques diélectriques (ϵ_r et *tan* δ) pour des échantillons avec et sans aditifs de frittage.

950°C/6h	$\epsilon_r^{1\,kHz}$	$tan\ \delta^{1\,kHz}$
Sans additifs	490	4,7%
CP3 mort.	1780	7,0%
CP3 plan.	1560	14,2%
CP3 (attr.) mort.	1805	5,9%

Les propriétés piézoélectriques mesurées sur les échantillons avec CP3 sont toujours nettement supérieures aux propriétés mesurées en l'absence d'additifs. Ce premier constat prolonge et conforte le choix de cet additif pour le frittage à basse température.

Les meilleurs résultats sont obtenus en utilisant les additifs sous forme de grains fins, c'est-à-dire les précurseurs préalablement broyés par attrition. Dans ces conditions (CP3 et frittage à 950°C/6h), les propriétés obtenues sont d'environ 50% des propriétés atteintes avec un frittage à 1200°C. L'ordre de grandeur est donc semblable aux travaux de Corker *et al.*

Une optimisation des paramètres des additifs (pourcentage ajouté, tailles initiales, conditions de mélange) pourrait permettre de limiter un peu plus la chute de propriétés.

V.4.2.8. Caractéristiques diélectriques en température

Les essais de polarisation à chaud ont montré des courants de fuite importants pendant l'opération. Pour tenter de caractériser le comportement en température des échantillons, les caractéristiques diélectriques (permittivité et pertes diélectriques) sont mesurées en fonction de la température à une fréquence de 1 kHz.

La Figure V.27 présente l'évolution de ces grandeurs en fonction de la température pour un échantillon de poudre commerciale sans additifs et fritté dans des conditions normales à 1200°C pendant 6 heures dans le but d'avoir une référence comparative.

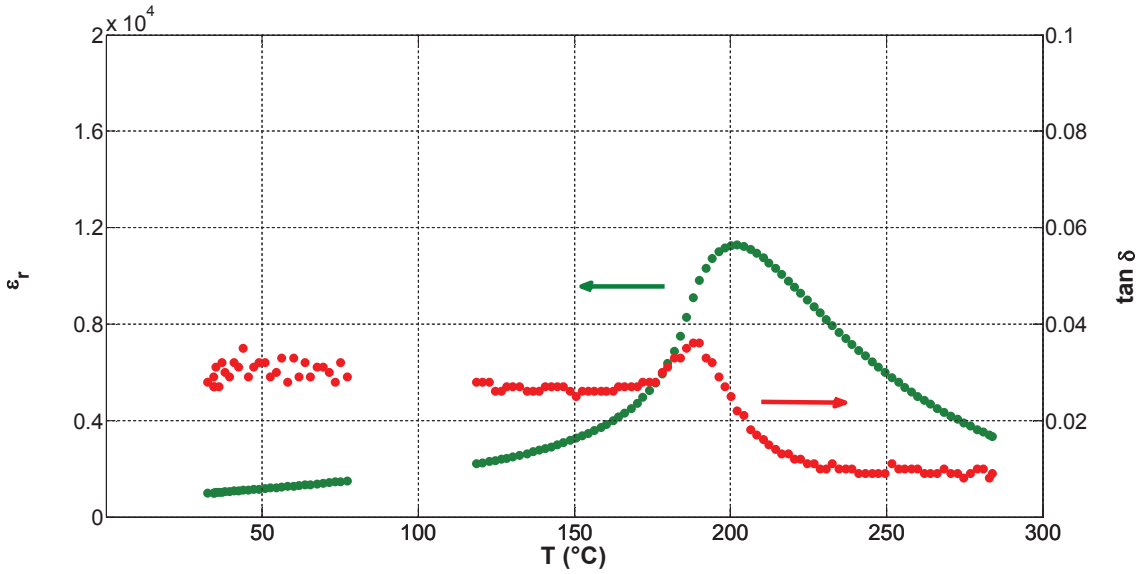


Figure V.27. Evolution de la permittivité et des pertes diélectriques avec la température pour un échantillon élaboré à partir de poudre commerciale fritté à 1200°C.

La permittivité relative ϵ_r augmente avec la température jusqu'à un maximum vers 200°C, correspondant à la température de Curie au-delà de laquelle le matériau perd ses propriétés ferroélectriques suite à la transition de phase (morphotropique → cubique) vers un état paraélectrique. Les pertes diélectriques varient peu avec la température jusqu'au voisinage de la température de Curie où elle présente une légère augmentation avant de chuter. Néanmoins, les pertes diélectriques ne dépassent jamais 4%.

La Figure V.28 présente l'évolution de ces grandeurs en fonction de la température pour un échantillon élaboré à partir de poudre commerciale avec les additifs préalablement broyés par attrition et mélangés à la poudre commerciale au mortier.

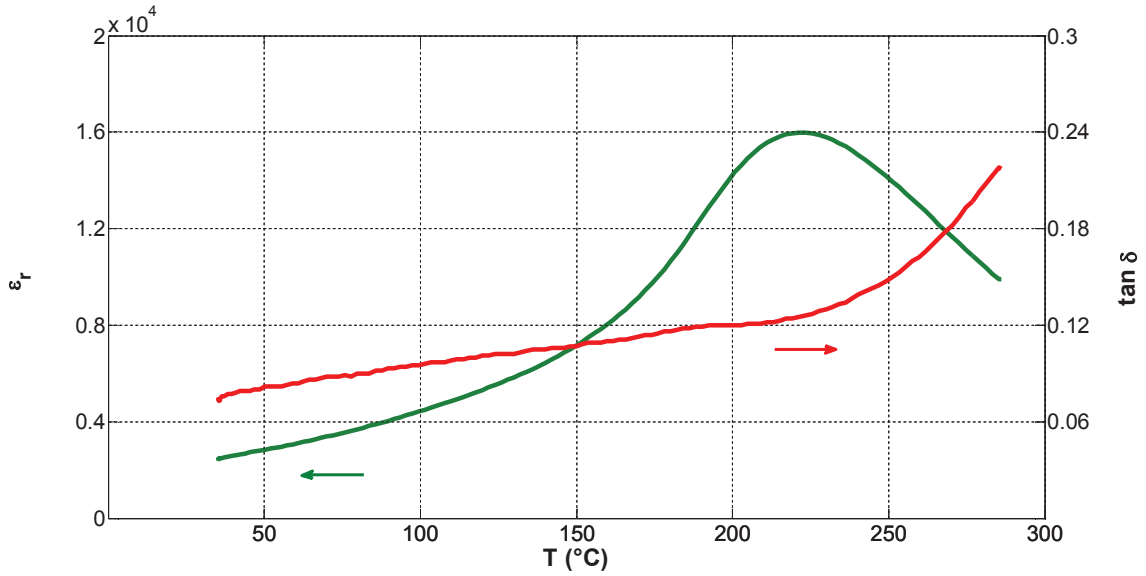


Figure V.28. Evolution de la permittivité et des pertes diélectriques avec la température pour un échantillon élaboré à partir de poudre commerciale avec 3m% de CP préalablement broyés par attrition.

La permittivité relative ϵ_r suit le même comportement que précédemment. Cependant, on constate que la température de Curie est légèrement décalée vers 220°C et que les valeurs maximales atteintes par la permittivité sont plus élevées (16 000 avec additifs et 11 250 sans

additifs). Le changement le plus significatif intervient pour les pertes diélectriques : à température ambiante, les pertes sont déjà plus élevées (environ 7% contre 2% pour l'échantillon sans additifs) et augmentent avec la température. Après la température de Curie, les pertes continuent à augmenter et il n'y a pas de maximum au voisinage de celle-ci.

Ce comportement en température peut expliquer les problèmes de polarisation à chaud rencontrés. En effet, les courants de fuite mesurés lors de la polarisation à chaud sont réduits au fur et à mesure du refroidissement, à l'image des pertes diélectriques dans le matériau.

V.4.3. Elaboration de fibres basses températures

Après avoir montré que l'utilisation du composé $PbO:Cu_2O$ réduit d'environ 50% les propriétés piézoélectriques sur un massif, son ajout à la poudre céramique piézoélectrique permet d'obtenir un bon état de densification et des propriétés piézoélectriques encore suffisantes à des températures de frittage de l'ordre de 950°C, soit une température suffisamment basse pour envisager des matériaux de substitution comme l'argent.

Par ailleurs, comme la température de frittage est réduite, l'utilisation d'alliages métalliques reste recherchée pour leur coût très faible. Il a été montré que les alliages métalliques à tenue haute température s'oxydaient à 950°C à cause de l'atmosphère oxydante. Pour tenter de protéger l'alliage métallique, un dépôt d'or de quelques microns a été réalisé (dépôt électrolytique réalisé par la société française Fransor).

De ce fait, trois matériaux ont été testés pour l'élaboration de fibres avec un frittage à basse température :

- le platine qui sert de référence et permet de mesurer les propriétés du dépôt avec les additifs de frittage ;
- l'argent, qui permet de s'assurer de l'inertie chimique pendant le traitement thermique ;
- l'alliage $Ni_{80}Cr_{20}$ revêtu d'or.

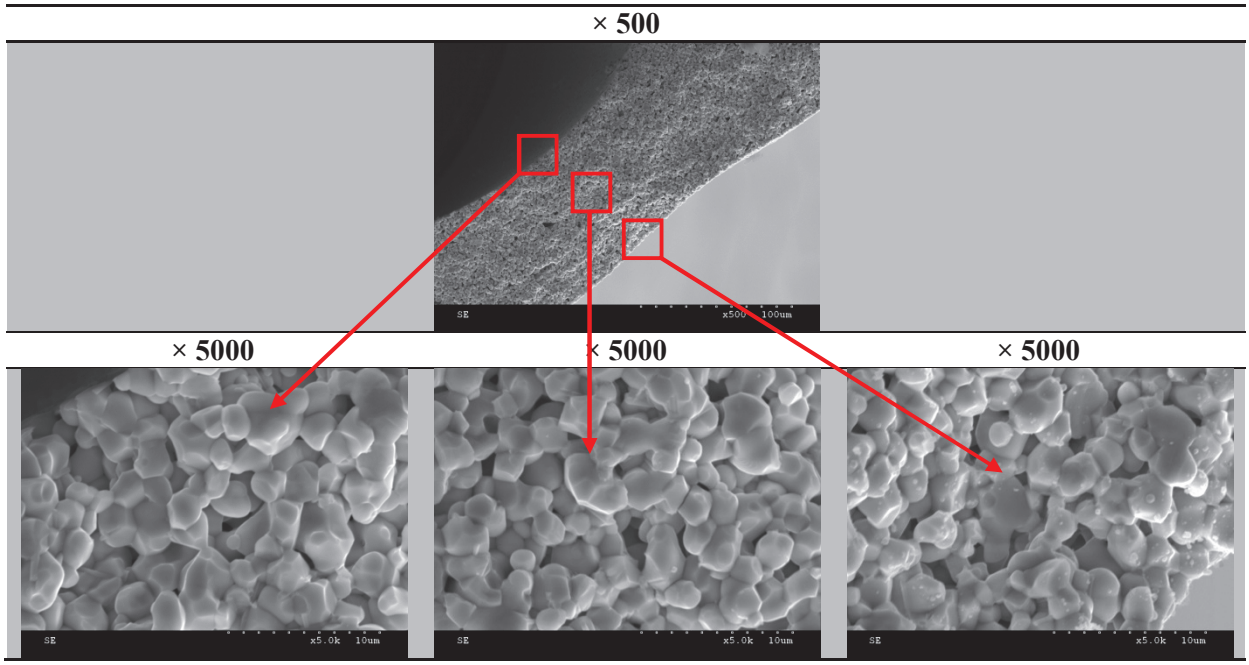
Le procédé d'enduction est utilisé pour réaliser le dépôt de 2 couches de poudre commerciale à laquelle sont ajoutés 3m% de CP préalablement broyés par attrition. Le traitement de consolidation est réalisé à 750°C pendant 2 heures et le frittage final à 950°C pendant 6 heures.

V.4.3.1. Sur fils de platine

V.4.3.1.i. Microstructure

Le Tableau V.10 présente la microstructure d'un dépôt fracturé sur un fil de platine de 500 µm de diamètre, revêtu de 2 couches de poudre commerciale avec additifs (CP3).

Tableau V.10. Microstructure d'un dépôt de 2 couches de poudre céramique commerciale avec additifs de frittage (CP3) sur un fil de platine de 500µm après consolidation à 750°C et frittage à 950°C.



La fracture présente un faciès de rupture intergranulaire. La microstructure est dense et homogène le long de la direction radiale. Il n'y a pas de croissance exagérée, la taille des grains de forme polygonale est de quelques microns. Il n'y a pas non plus de présence de phase secondaire aux joints de grains.

De la même manière que pour l'étape de consolidation à 950°C pour le frittage à 1200°C, les conditions choisies ici (consolidation à 750°C) permettent également de réaliser des dépôts uniformes dans l'épaisseur sans délaminage.

V.4.3.1.ii. Cycles d'hystérésis

Les figures suivantes (IV.29 à IV.30) présentent les cycles d'hystérésis et l'évolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué.

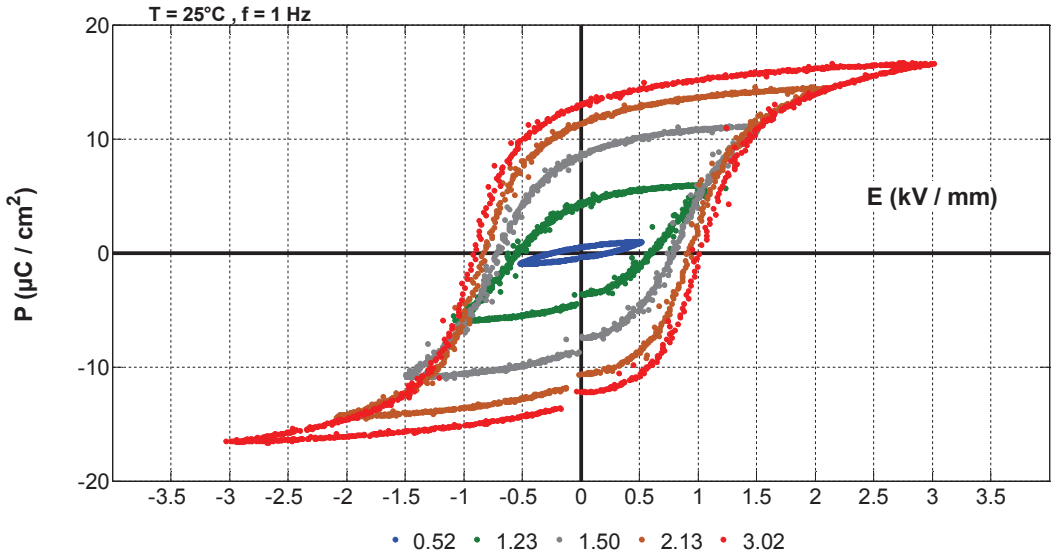


Figure V.29. Cycles d'hystérésis mesurés une fibre (Pt500-PC-Ag) 2 couches déposées à basse température frittées à 750°C/2h - 950°C/6h.

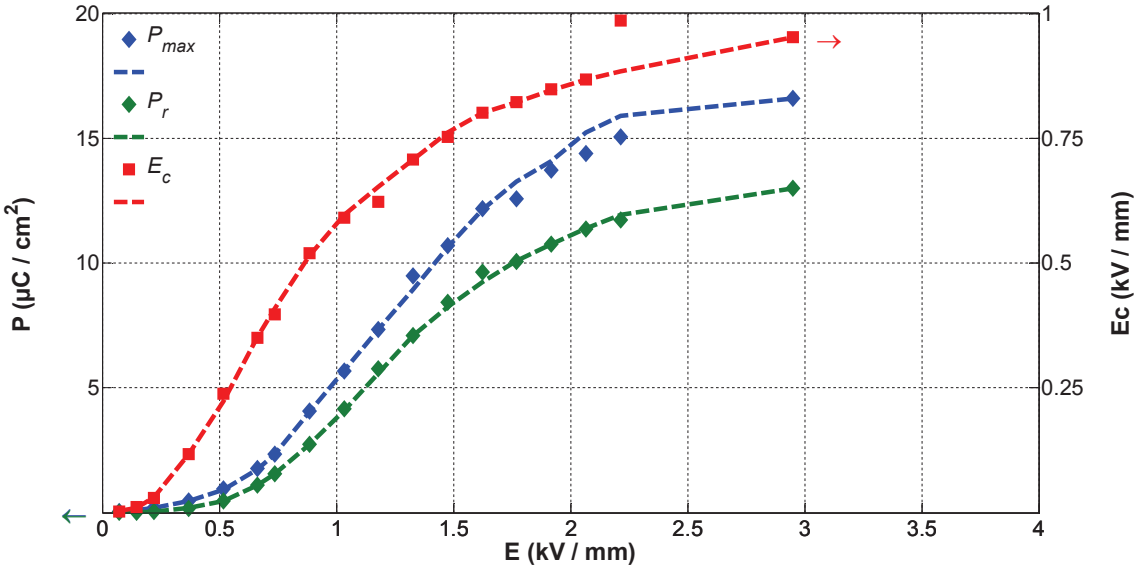


Figure V.30. Evolution des grandeurs ferroélectriques en fonction du champ électrique appliqué sur une fibre (Pt500-PC-Ag) 2 couches déposées à basse température frittées à 750°C/2h - 950°C/6h.

Les cycles d'hystérésis ont des allures semblables à celle d'un massif : les cycles sont symétriques, ouverts et avec un état de saturation marqué. Ceci traduit ce qui a déjà observé au chapitre III : l'augmentation d'épaisseur avec le nombre de couches (2 et 5 couches respectivement) conduisait à approcher le comportement ferroélectrique d'un massif. Les épaisseurs plus importantes atteintes avec l'utilisation d'une barbotine à basse température permettent donc d'atteindre plus rapidement le comportement "classique" d'une céramique massive.

V.4.3.2. Sur différentes âmes

Après avoir vérifié que la réalisation de fibres avec un dépôt traité à basse température grâce aux additifs de frittage permet d'avoir une microstructure et une aptitude à la polarisation adéquates, le même procédé est utilisé pour réaliser des fibres sur argent et sur $Ni_{80}Cr_{20}$ revêtu d'or.

V.4.3.2.i. $Ni_{80}Cr_{20}$

La Figure V.31 présente des photographies du fil de $Ni_{80}Cr_{20}$ revêtu d'or dans son état originel et avec le dépôt d'une couche de céramique après traitement de consolidation de la première couche à 750°C pendant 2 heures.

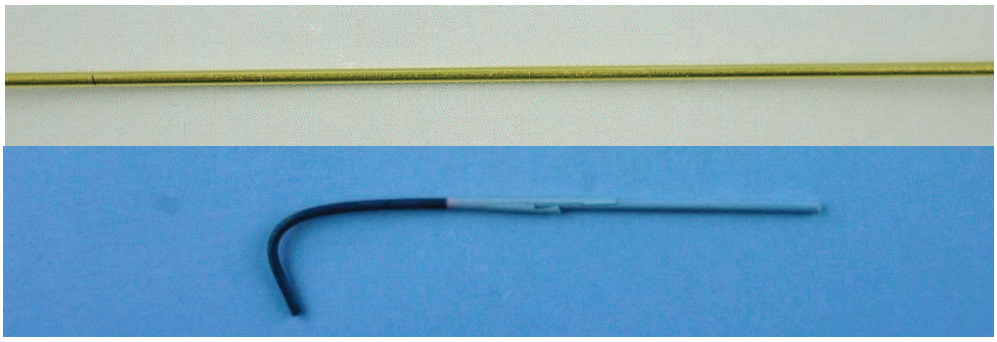


Figure V.31. Fil de $Ni_{80}Cr_{20}$ revêtu d'or avant (en haut) et après (en bas) dépôt d'une couche de PZT avec additifs et traité à 750°C pendant 2 heures.

La Figure V.32 présente des grossissements du fil de $Ni_{80}Cr_{20}$ revêtu d'or réalisés en microscopie optique au niveau de l'interface fil/dépôt et au niveau d'une partie écaillée.

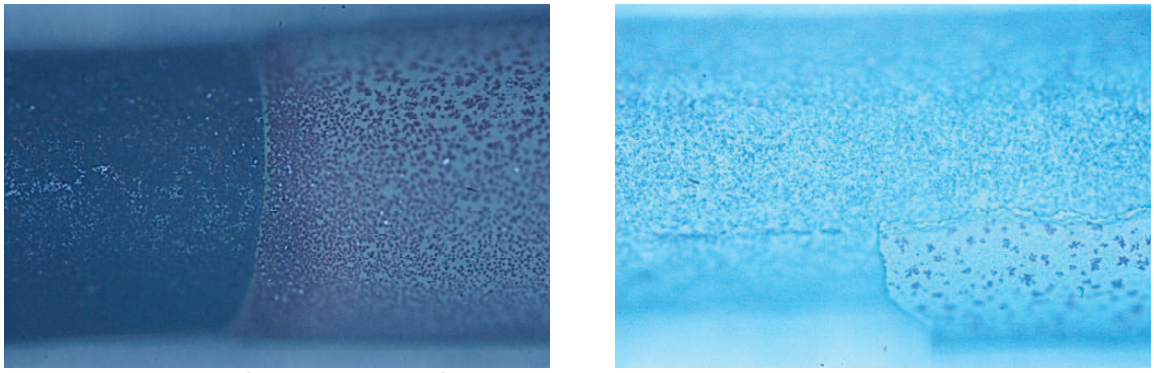


Figure V.32. Fil de $Ni_{80}Cr_{20}$ revêtu d'or après dépôt d'une couche de PZT avec additifs et traité à 750°C pendant 2 heures, zooms sur l'interface fil nu/dépôt (à gauche) et sur une partie écaillée (à droite).

La partie nue du fil, avec un dépôt d'or avant traitement thermique, apparait totalement oxydée et il n'y a plus de traces d'or. Sur le dépôt, on observe de nombreuses tâches rouges probablement dues à une diffusion du chrome et d'or dans la couche céramique.

Il semble qu'il ne soit pas possible de protéger de l'oxydation les fils d'alliages haute température dans ces conditions de frittage. Bien que la température soit réduite, le temps de traitement reste relativement long (plusieurs heures) et la couche d'or ne semble pas suffire à la protection contre l'oxydation.

V.4.3.2.ii. Argent

La Figure V.33 montre une photographie du fil d'argent d'une couche de PZT avec CP3 après le traitement thermique de consolidation à 750°C pendant 2 heures.

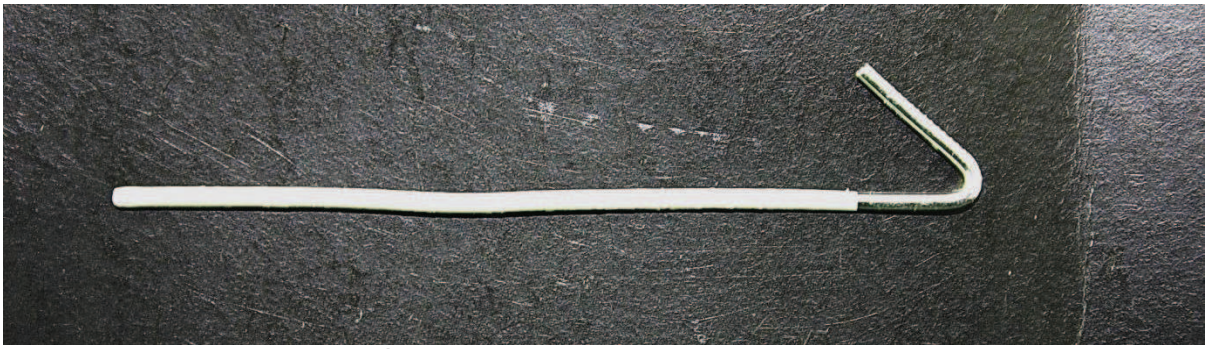


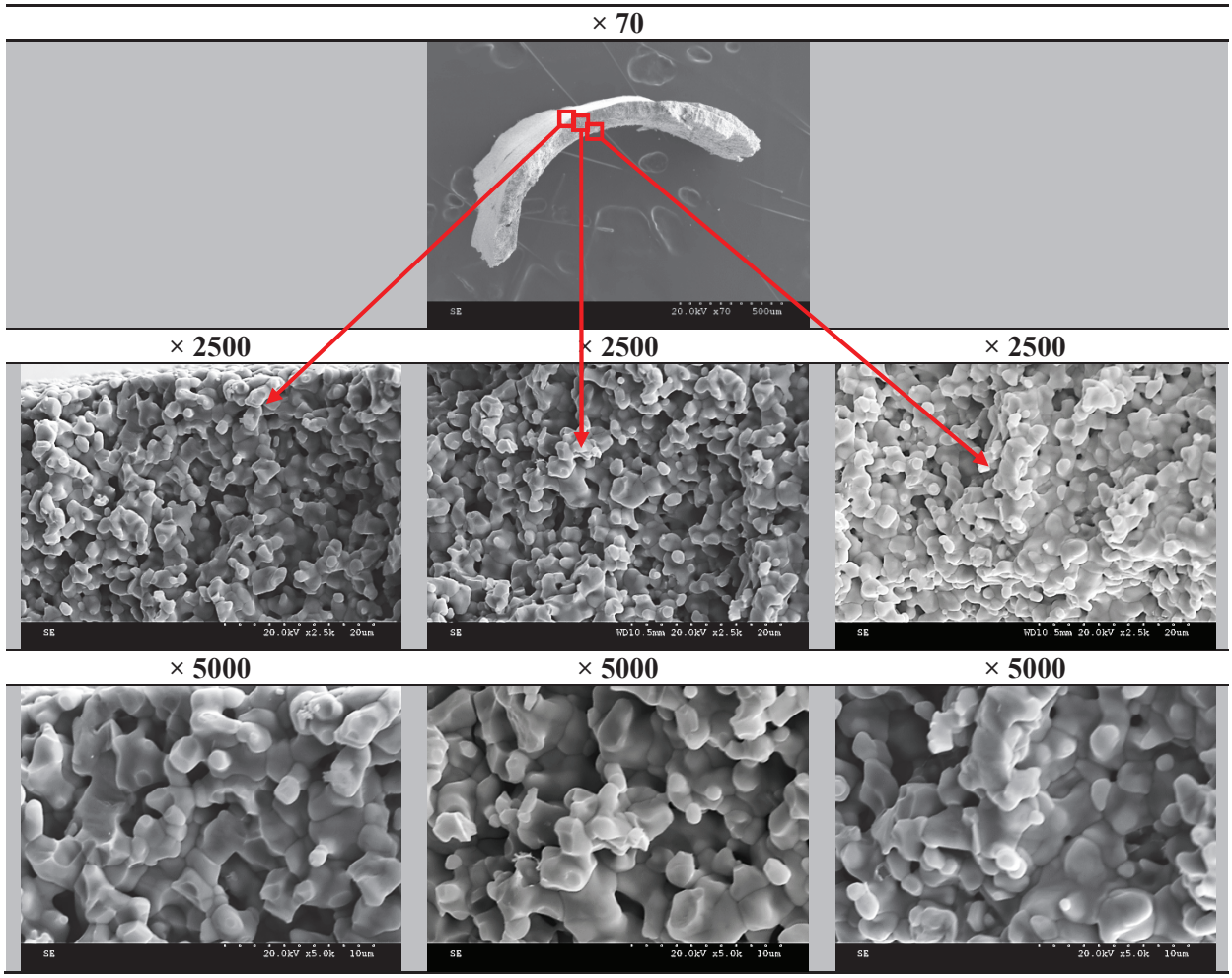
Figure V.33. Fil d'argent après le dépôt d'une couche de PZT avec additifs et consolidation à 750°C pendant 2 heures.

Contrairement au fil $Ni_{80}Cr_{20}$/Au, l'utilisation d'une âme en argent permet de garder l'intégrité physique de la fibre : l'argent n'est pas oxydé et le dépôt a une coloration jaune pâle caractéristique de la poudre commerciale utilisée. De plus, le dépôt est homogène sur toute la longueur de la fibre, il n'y a ni écaillage ni fissuration visible.

La réalisation d'une seconde couche peut alors avoir lieu. L'ensemble est alors fritté à 950°C pendant 6 heures.

Le Tableau V.11 présente les microstructures observées sur la fibre après frittage à 950°C.

Tableau V.11. Microstructure d'un dépôt de 2 couches de poudre céramique commerciale avec additifs de frittage (CP3) sur un fil d'argent de 1000 µm après consolidation à 750°C et frittage à 950°C.



La microstructure apparaît homogène dans l'épaisseur du dépôt. Néanmoins, le dépôt semble moins dense que lors du même essai sur un fil de platine. De même la forme et la taille des grains diffèrent : ici, il existe des grains sphéroïdes et des grains polygonaux, pour des tailles approximatives allant de quelques dixièmes de microns (~0,8µm) à plusieurs microns (~5 µm).

L'explication peut provenir du fait que la température de frittage choisie (950°C) est trop proche de la température de fusion de l'âme en argent (962°C). A cette température et pendant l'isotherme de 6 heures, l'argent ou en tout cas une partie à l'interface peut devenir suffisamment liquide pour s'infiltrer dans le dépôt encore poreux. Ceci perturbe alors l'arrangement des grains et la densification de la céramique. Ceci est cohérent avec l'état des fibres observé après le traitement thermique (Figure V.34).

Figure V.34. Fil d'argent après le dépôt de 2 couches de PZT avec additifs et frittage à 950°C pendant 6 heures.

De plus, les contraintes thermomécaniques liés à la dilatation de l'argent provoque la fissuration et l'écaillage du dépôt céramique. La diffusion de l'argent pourrait expliquer par ailleurs la présence des particules sphériques dans la microstructure.

Cette hypothèse se confirme à l'issue de la tentative des mesures de cycles d'hystérésis sur les fibres *a priori* les moins affectées et sur les parties saines de celles-ci. Aucun cycle n'a pu être mesuré ce qui suggère que les électrodes et/ou la structure du matériau ne permet plus d'appliquer un champ électrique homogène dans l'épaisseur du dépôt.

D'autres tests sur argent à plus basses températures (850-900°C) pourront être menés ultérieurement. Il sera nécessaire d'effectuer en parallèle la caractérisation des échantillons massifs à ces températures pour s'assurer des propriétés résultantes. Par ailleurs, des fils de nickel revêtus par du platine sont disponibles sur le marché à coût raisonnable. Ils devraient également faire l'objet de tests pour la réalisation de MCPF basse température.

Pour estimer les propriétés que pourraient avoir les fibres à âme en argent, le calcul par éléments finis est mis en œuvre pour tenir compte des effets antagonistes :

- l'argent étant moins rigide que le platine d'environ 50%, la fibre pourra se déformer d'avantage ;
- les propriétés piézoélectriques étant plus faibles d'environ 50%, la capacité de déformation de la fibre sera réduite.

Le calcul est ainsi effectué sur une fibre de 250 µm de diamètre avec une céramique PZT5AH et des âmes en platine et en argent. Un autre calcul est effectué en considérant l'argent et une céramique PZT5AH-CP3 dont les propriétés ont été réduites (cf. Chapitre IV). On considère ainsi :

- le cas de référence sur platine avec une céramique frittée à 1200°C qui présente ses propriétés maximales ;
- le cas hypothétique sur argent avec une céramique frittée à 1200°C pour évaluer l'impact de la différence de propriétés élastiques entre les deux matériaux métalliques ;
- le cas potentiel sur argent avec une céramique avec additifs frittée à basse température pour conjuguer l'abaissement de la rigidité de l'âme et des propriétés piézoélectriques.

Le Tableau V.12 présente les valeurs de déformations libres obtenues dans ces trois cas.

Tableau V.12. Résultats de modélisation de la déformation libre de MCPF à cœur en argent ou en platine avec des propriétés piézoélectriques équivalentes à un frittage à 1200°C ou 950°C.

Dépôt céramique	Ame métallique	Sz (µdef)
PZT5AH	Pt	160
PZT5AH	Ag	185
PZT5AH-CP3	Ag	94

A propriétés équivalentes, l'utilisation d'une âme 50% moins rigide entraîne une augmentation de la déformation longitudinale libre de 16%. En intégrant les propriétés réduites du matériau piézoélectrique suite à son frittage à basse température, la déformation longitudinale résultante est réduite de 41%.

L'utilisation d'une âme moins chère que le platine, telle que l'argent, est ainsi possible mais s'accompagne d'une réduction des performances. Il s'agira donc de déterminer le compromis coût/performance en fonction des développements et des applications visés.

V.5. Réduction du temps de frittage

Le frittage rapide des céramiques peut être obtenu à l'aide de différentes techniques : le frittage rapide (*flash sintering*), le frittage assisté par plasma (*spark plasma sintering*), le frittage sous charge (*hot isostatic pressing*), le frittage laser (*laser sintering*) ou le frittage micro-ondes (*micro-waves sintering*). La géométrie et les dimensions des fibres rend abscons l'utilisation des trois premières techniques citées puisqu'elles nécessitent de pouvoir appliquer une contre électrode ou un contre moule pour pouvoir appliquer le champ électrique et/ou une pression sur le matériau à fritter.

V.5.1. Frittage laser

V.5.1.1. Bibliographie

Dans le traitement des céramiques, les lasers sont couramment utilisés pour le marquage laser, la découpe ou le prototypage rapide. Le frittage, en toute rigueur, est la consolidation d'un compact de poudre par des processus de diffusion activés thermiquement. Le frittage laser implique le plus souvent la fusion, partielle ou totale, du matériau à traiter. Ainsi, le traitement laser (SLS pour *Selective Laser Sintering* ou SLM pour *Selective Laser Melting*) est mis en œuvre pour réaliser la densification de différentes matériaux pulvérulents comme les métaux, les polymères et les céramiques parmi lesquelles l'hydroxyapatite HA, le carbure de silicium SiC, la zircone stabilisée ZrO_2-Y_2O_3 [BERTRAND 2007, JASIM 1992], l'alumine Al_2O_3 [GAILLARD 2006], les céramique transparentes à base de Ta_2O_5 [JI 2006], les ferroélectriques à base de BIT ($Bi_4Ti_3O_{12}$) [MACEDO 2005, 2002]…

Dans le cas des matériaux céramiques notamment, le frittage laser est délicat à mettre en œuvre car le paramétrage nécessite alors de grandes précautions pour obtenir un état de densification important et homogène dans le matériau [GAILLARD 2006]. En effet, le procédé par traitement laser met en jeu un nombre important de paramètres :

- la nature du laser utilisé, généralement YAG (λ = 1,06 µm) ou CO_2 (λ = 10,6 µm), définit la longueur d'onde du rayonnement et l'absorption du matériau à celui-ci ;
- la puissance du laser ;
- la largeur de la zone traitée ;
- le temps de traitement ;
- …

Le phénomène d'interaction laser-matière est complexe à décrire et c'est pour cela que des notions comme la densité d'énergie, l'énergie spécifique ou le temps d'interaction avec le rayonnement sont introduites pour rendre compte et modéliser les phénomènes induits par le traitement laser [JASIM 1992, KOLOSSOV 2004, TIAN 2009]. En particulier, Kolossov *et al.* s'intéressent au profil de température lors du traitement laser. En effet, les temps d'interactions étant généralement courts et la zone traitée localisée, la connaissance précise de la température à laquelle est traitée le matériau est difficile.

Cela peut expliquer en partie pourquoi il n'y a pas de données dans la littérature sur l'application du frittage laser aux matériaux PZT. En effet, le frittage des PZT a lieu à des températures proches de leur température de décomposition, sans compter la volatilisation de l'oxyde de plomb, ce qui rend difficile l'application de la technologie laser. Le traitement laser est cependant utilisé pour le recuit de matériau PZT, notamment sous formes de films [CHOU 2002, ZHU 1998]. A titre d'exemple, les travaux de Gureev *et al.* portent sur la synthèse et le frittage simultanés de PZT par laser. Dans les conditions utilisées et en ajoutant une étape de recuit sous vide à 1240°C dans un four conventionnel, il est difficile d'obtenir des densités élevées et un contrôle de la nature chimique du matériau PZT [GUREEV 2000].

Des essais sur bandes ont été entrepris pour tenter d'établir la faisabilité de mise en œuvre de cette technique. De plus, il faudra pouvoir adapter le traitement laser à la géométrie des fibres, ce qui pourra poser de nouveaux problèmes.

Les essais de frittage laser ont été réalisés en collaboration avec l'INISMA de Mons. Le traitement laser a été utilisé pour tenter de fritter des morceaux de bandes (10×10×0,4 mm^3) de PZT commerciale non déliantées ou déliantées élaborées par coulage en bande.

V.5.1.2. 1ère gamme d'essais

Ces essais sont réalisés avec un laser continu CO_2 (λ = 10,6 µm). Le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon à traiter. Le diamètre du faisceau laser est d'environ 45 µm. Le faisceau se déplace sur l'échantillon à une vitesse *v* en suivant un motif déterminé par l'utilisateur (c'est en réalité le porte-échantillon qui se déplace). Dans le cas présent, il s'agit de lignes parallèles. La distance entre celles-ci (*d*) permet de définir des zones de recouvrement, comme illustré sur la Figure V.35.

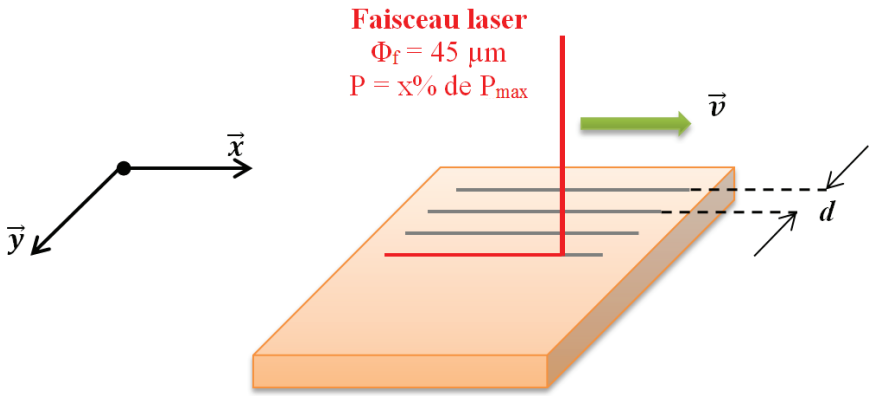


Figure V.35. Illustration du traitement laser d'un échantillon de bande PZT.

Les variables d'essais retenues sont les suivantes :

- la puissance du laser, exprimée en % de la puissance maximale. Elle varie entre 3 et 21 W pour les essais réalisés ;
- la vitesse du déplacement du faisceau laser. Elle varie entre 50 et 500 mm/s pour les essais réalisés ;
- la distance entre deux lignes de passage du laser pour modifier la zone de recouvrement. Trois distances ont été utilisées : 10, 40 et 100 µm. Dans le premier cas, la zone de recouvrement entre deux traits est d'environ 77%, environ 10% dans le deuxième cas et les zones traitées sont disjointes dans le dernier cas ;
- le nombre de passages du faisceau laser. Il est possible de répéter plusieurs fois le même motif pour augmenter la durée d'interaction entre le faisceau laser et l'échantillon. Il a été choisi de réaliser un seul passage dans cette étude.

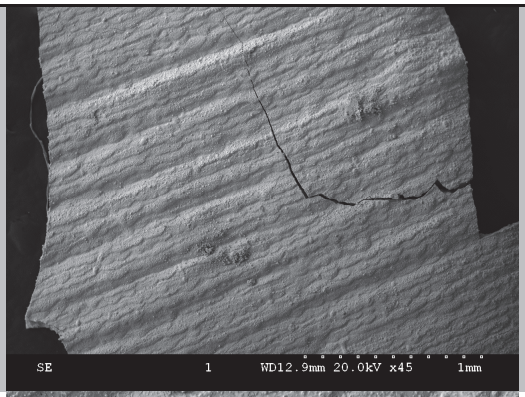
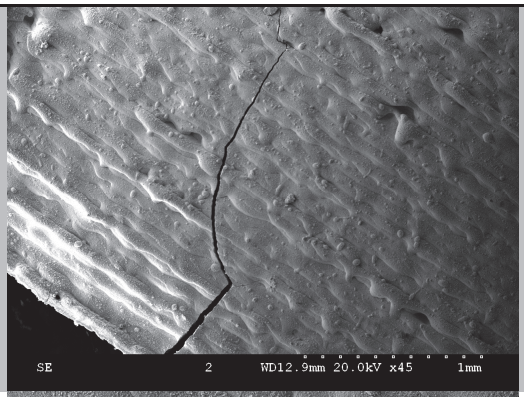
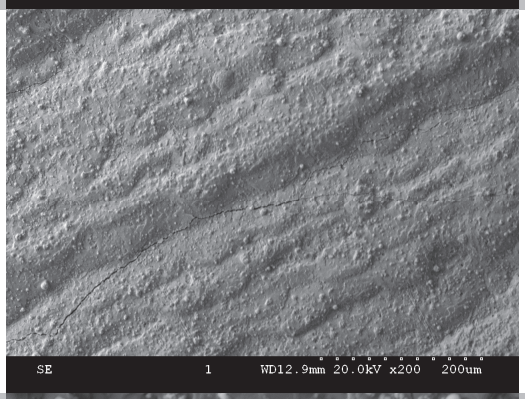
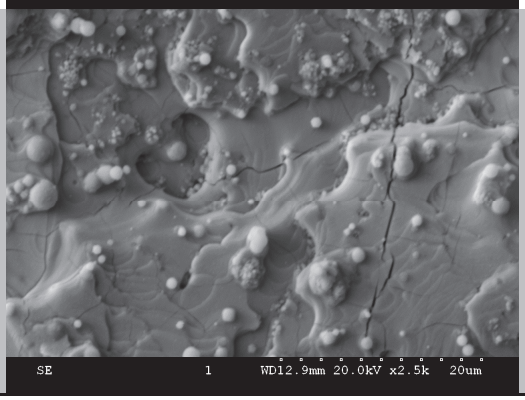
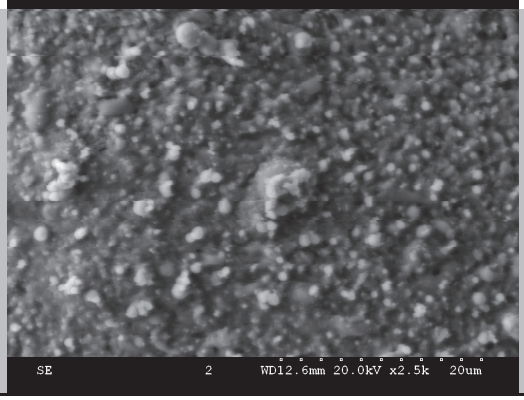
Le Tableau V.13 résume les différentes conditions d'essais testées. Le déroulement des essais suit les observations à l'œil nu des échantillons après traitement. Les bandes ont été déliantées à 450°C pendant une heure avant d'être traitées par le laser.

Tableau V.13. Résumé des premiers tests effectués en frittage laser.

Référence d'essai	Puissance (% de P_{max})	Vitesse (mm/s)	Distance entre 2 lignes (µm)
1	100	100	40
2	100	500	40
3	70	500	40
4	70	500	10
5	70	500	100
6	90	100	40
7	80	100	40
8	60	100	40
9	40	100	40
10	60	500	40
11	60	500	10
12	60	500	100
13	60	300	40
14	60	200	40
15	60	50	40

Les deux premiers essais à puissance maximale et avec un faible recouvrement permettent d'observer l'influence de la vitesse. Le Tableau V.14 présente les microstructures observées sur les surfaces en interaction avec le laser.

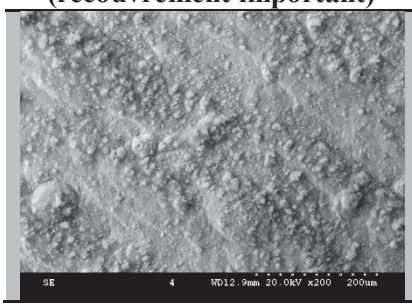
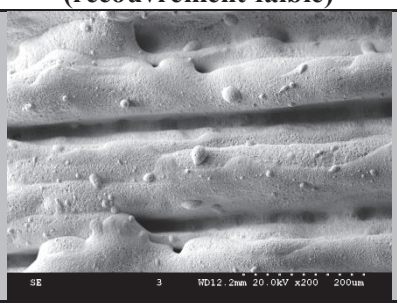
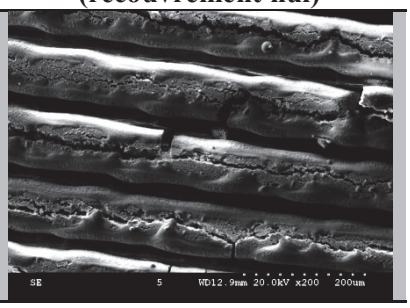
Tableau V.14. Microstructures observées sur les bandes traitées par laser à différentes vitesses (P = 100%P_{max}, d = 40µm).

100 mm/s	500 mm/s
	
	
	

Dans les deux cas, la puissance semble être trop importante car il est possible d'observer à fort grossissement de petites billes parfaitement sphériques, résultat de la volatilisation du plomb. Avec l'utilisation d'une vitesse élevée, la surface apparaît plus rugueuse : l'interaction avec le laser éjecte de la matière. Avec des vitesses plus lentes, la matière rejetée est probablement traitée plus longtemps ce qui permettrait d'expliquer l'aspect plus lisse de la surface.

Le Tableau V.15 présente les microstructures observées sur les surfaces en interaction avec le laser pour les essais qui ont suivis (3, 4 et 5) à puissance réduite (70%) et à vitesse constante (500 mm/s). Ils permettent d'appréhender l'effet du taux de recouvrement entre deux lignes de passage du faisceau laser.

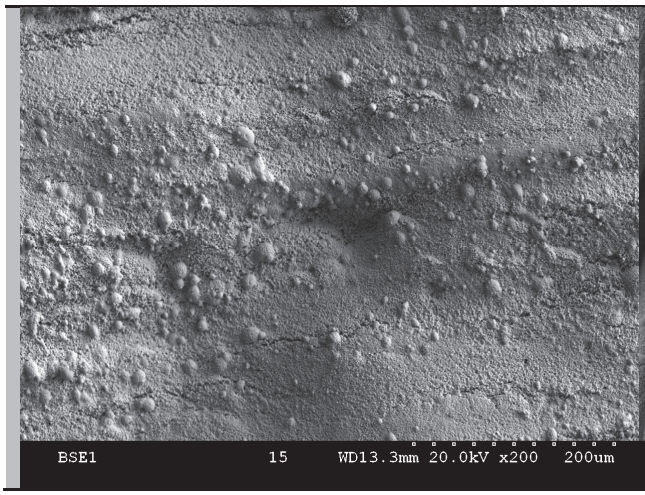
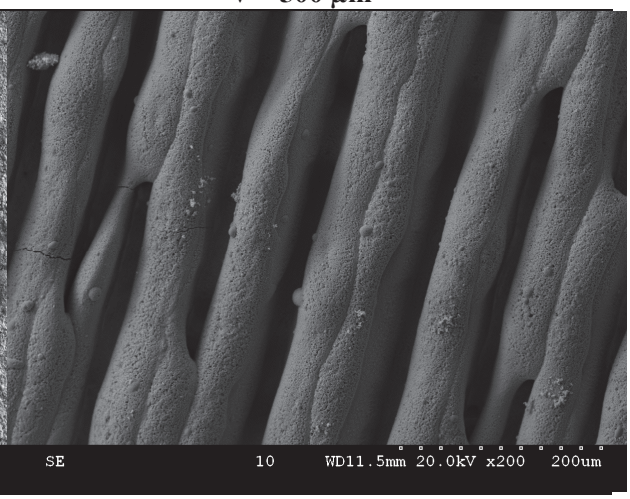
Tableau V.15. Microstructures observées sur les bandes traitées par laser avec différents taux de recouvrement (P = 70%P_{max}, v = 500mm/s).

d = 10 µm (recouvrement important)	d = 40 µm (recouvrement faible)	d = 100 µm (recouvrement nul)
		

Lorsque le recouvrement est nul, il est possible de constater que même à puissance réduite (70%), le traitement laser a plus une action d'ablation qu'une action thermique (au sens du frittage). En déterminant une zone de recouvrement assez large, l'aspect de la surface est relativement homogène bien que l'action d'ablation reste la même.

Les essais entrepris par la suite ont donc consisté à ajuster la vitesse à faible puissance (60%) avec un faible recouvrement (d = 40µm). Pour les puissances plus faibles (≤ 50%), le dispositif ne permet pas de contrôler précisément la puissance laser et c'est pour cela que la limite de 60% de puissance a été choisie. Le Tableau V.16 présente les microstructures obtenues pour les échantillons n°10 et n°15 correspondant au maximum et au minimum de la vitesse testée, respectivement 500 et 50 mm/s.

Tableau V.16. Microstructures observées sur les bandes traitées par laser avec différents vitesses à basse puissance (P = 60%P_{max}, d = 40 µm).

v = 50 mm/s	v = 500 µm
	

A basse puissance, l'utilisation de vitesse élevée, correspondant à des durées d'interaction faibles, permet de constater que le traitement laser a pour conséquence l'éjection de matière. En utilisant des vitesses plus faibles, l'aspect de la surface est plus homogène.

Pour tenter de vérifier que le traitement laser permet de conserver la structure cristallographique du matériau, des bandes un peu plus larges ont été traitées dans les conditions qui semblent les meilleures : 60% P_{max}, d = 40 µm et deux vitesses sont testées, v = 50 et 100 mm/s.

La Figure V.36 présente les diffractogrammes-X des bandes traitées au laser. A titre de comparaison, le diffractogramme-X d'une bande déliantée est également présenté. Pour la bande traitée à vitesse faible (50 mm/s), l'analyse a lieu sur la face supérieure traitée par le laser et sur la face inférieure non directement traitée.

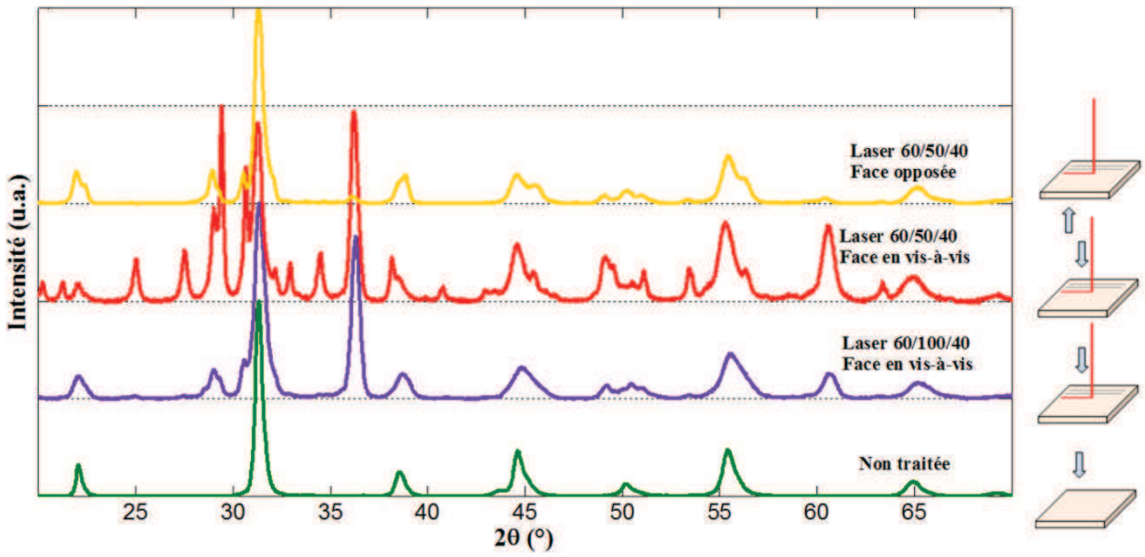


Figure V.36. Diffractogrammes-X obtenus sur des échantillons de bandes PZT crues et traitées au laser (60% P_{max}, v = 50 ou 100 mm/s, *d* = 40 µm).

Les pics observés sur la bande non traitée correspondent à ceux d'une structure pérovskite. Le diffractogramme-X de la bande traitée avec une vitesse de 100 mm/s laisse apparaître des pics supplémentaires correspondant à l'apparition d'oxyde de plomb libre et à la séparation des phases PZ et PT. Le pic important vers 37° n'est pas identifié. En effet, ne connaissant pas les éléments constitutifs du matériau de la poudre commerciale, il est difficile de pouvoir réaliser l'indexation complète du diffractogramme-X.

L'échantillon traité à vitesse inférieure présente une structure cristalline encore plus complexe. Au-delà de l'indexation, il apparait évident que la structure cristallographique du PZT est détériorée par la volatilisation et la décomposition de certaines espèces. Sur la face opposée, on constate que la structure est également affectée mais dans une moindre mesure. La diffusion thermique a donc eu lieu sur toute l'épaisseur de la bande (~ 400 µm).

Les conditions testées n'ont pas permis de traiter les bandes PZT sans les dégrader. Même aux faibles puissances utilisées, la densité d'énergie semble être trop importante car le faisceau était focalisé sur l'échantillon. Ces premiers essais illustrent la difficulté de la mise en œuvre du frittage laser des céramiques PZT. D'autres essais dans des conditions moins sévères ont été réalisés pour tenter d'obtenir de meilleurs résultats.

V.5.1.3. 2nd gamme d'essais

Ces essais sont réalisés avec un laser continu Nd-YAG (λ = 1,06 µm). Le même type d'échantillon a été utilisé (bandes PZT déliantées). Sur ce nouvel appareillage, les nouvelles variables d'essais retenues sont :

- la puissance du laser. Elle a varié entre 300 et 800 W durant ces essais ;

- la vitesse de déplacement du faisceau laser. Des vitesses de 5, 6 et 7 mm/s ont été utilisées ;
- la défocalisation du faisceau laser, obtenue en déplaçant d'une hauteur *h* le porte-échantillon par rapport au point de focalisation du faisceau. Des hauteurs de 70 à 85 mm ont été utilisées ;
- le nombre de passage du faisceau laser. Des essais avec un seul passage jusqu'à 8 passages ont été réalisés.

L'objectif est ici de traiter les bandes par des interactions moins intenses avec le faisceau laser : l'utilisation de faibles puissances avec une zone défocalisée permet *a priori* de réduire l'intensité du traitement laser et la répétition du motif peut alors permettre d'augmenter le temps d'interaction.

Dans la plupart des conditions testées, le traitement conduit à la fissuration de l'échantillon et la volatilisation du plomb, caractérisée par un changement de teinte orangée prononcé. La décomposition totale voire la combustion des échantillons (probablement dû à un déliantage partiel) n'ont pas permis de réaliser de caractérisations conséquentes.

Dans les conditions les plus douces testées (puissance minimale 300 W, défocalisation maximale de 85 mm, vitesse de 5 mm/s), les microstructures observées, dont un exemple est présenté sur la Figure V.37, ne semblent pas présenter un état de densification avancé.

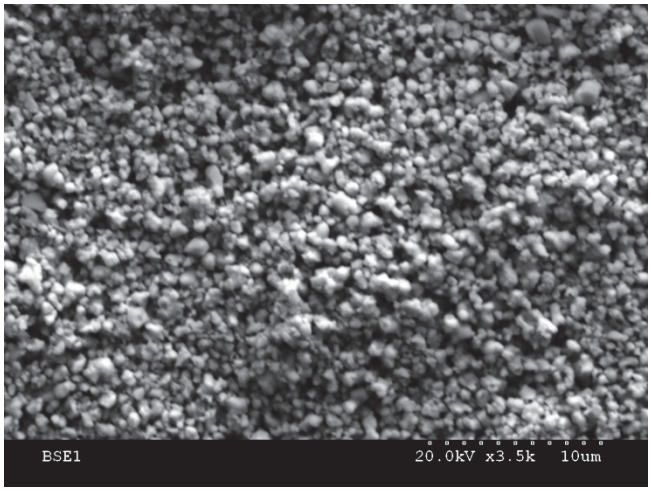


Figure V.37. Microstructure observée en microscopie électronique à balayage d'une bande PZT traitée au laser à 300 W à une vitesse de 5 mm/s et une défocalisation de 85mm.

La mise en œuvre du frittage laser des matériaux PZT s'avère une nouvelle fois délicate. Les nouvelles conditions testées ne semblent pas permettre non plus la densification du matériau dans son volume.

V.5.1.4. Conclusion

Le frittage laser s'avère une technique de frittage intéressante car les densités d'énergie apportées par le rayonnement laser favorisent la consolidation rapide du matériau. Néanmoins, dans le cas des matériaux PZT, sa mise en œuvre semble difficile car le matériau est très sensible à la température à cause de la volatilisation du plomb et de la dégradation du matériau à des températures légèrement supérieures à sa température de frittage.

Ainsi, l'application de ce procédé de frittage nécessite une étude approfondie pour déterminer le comportement du matériau PZT vis-à-vis du rayonnement laser afin de déterminer les conditions qui permettent d'apporter l'énergie nécessaire et suffisante pour

favoriser le pontage et la consolidation des grains. Il faut également s'intéresser à la diffusion de l'énergie thermique pour traiter le matériau dans son volume, l'énergie étant apportée à la surface du matériau.

Le traitement laser n'est donc pas abandonné comme piste pour le frittage rapide des dépôts céramiques sur les MCPF mais il nécessite des travaux approfondis pour sa mise en œuvre, travaux qui n'ont pas pu être poursuivis dans le cadre de cette thèse.

V.5.2. Frittage micro-ondes

V.5.2.1. Bibliographie : principes

Les micro-ondes font partie plus généralement des ondes électromagnétiques dont la gamme de fréquences s'étend de 300 MHz à 300 GHz, ce qui correspond à des longueurs d'ondes comprises entre 1 mm et 1 m. L'utilisation de ce type d'ondes concerne deux principaux domaines d'applications : les communications (radars, télévisions, satellites…) et le chauffage des matériaux. Cette deuxième application concerne l'alimentaire (chauffage, séchage…), le médical (thérapie par micro-ondes) et aussi la densification des matériaux. Par ailleurs, jusqu'aux années 2000, le frittage micro-ondes était limité aux matériaux non métalliques comme les céramiques, les polymères et les semi-conducteurs. Les fréquences classiquement utilisées pour ces matériaux sont de l'ordre de 915 MHz à 2,45 GHz et correspondent à la législation relative à l'utilisation des micro-ondes dans les domaines industriels, scientifiques et médicaux. L'efficacité de la conversion en énergie électrique à ces fréquences sont respectivement de 85% et 50% [HAQUE 1999].

Ce procédé diffère du frittage conventionnel par le mécanisme : il ne s'agit plus de transferts thermiques mais de transferts d'énergie [HAQUE 1999]. En effet, les micro-ondes sont majoritairement absorbées par le matériau et cette énergie est transformée en chaleur. Dans les méthodes classiques, l'échauffement est créé par transfert par les mécanismes de conduction, de convection et de rayonnement. Ainsi, la surface du matériau est chauffée en premier lieu puis il y a propagation vers l'intérieur du matériau. Il en résulte un gradient de température qui conduira à un gradient de propriétés ou à des hétérogénéités. Ceci se traduit en pratique par l'utilisation de montée/descente en température lente et/ou à l'utilisation de palier isotherme intermédiaire pour limiter ce gradient. A contrario, les micro-ondes génèrent d'abord une élévation de température au sein du matériau qui se propage ensuite dans tout le volume [YADOJI 2003].

Ce mécanisme conduit à plusieurs avantages : les processus de diffusion sont plus rapides, la consommation d'énergie est réduite, la montée en température est beaucoup plus rapide, les temps de cycle sont réduits, les températures de frittage sont réduites, les propriétés physiques et mécaniques sont accrues [OGHBAEI 2010, XIE 1999, 1998]. Il faut donc noter que le frittage micro-ondes conduit à des temps de cycles beaucoup plus courts, à des taux de densification aussi élevés et limite le grossissement granulaire [XIE 1999, 1998].

L'interaction d'un matériau avec le rayonnement micro-ondes peut se décrire à l'aide de deux paramètres : la puissance absorbée P et la profondeur de pénétration des micro-ondes D. L'absorption volumique de l'énergie micro-ondes définie la puissance moyenne absorbée et s'exprime par [CLARK 2000, MARINEL 2006, XIE 1999, 1998] :

$$P(W/m^3) = (2\pi f \times \varepsilon_0 \varepsilon_r' \times \tan\delta + \sigma) \times |E|^2 \qquad (V.1)$$

Dans cette expression, f est la fréquence des micro-ondes, σ la conductivité électrique, ε_0 la permittivité du vide, ε_r' la permittivité diélectrique relative et $tan\ \delta$ l'angle de perte qui traduit la capacité du matériau à être polarisé et chauffé. Il peut s'exprimer par le rapport entre le facteur de perte et la permittivité du matériau [MARINEL 2006] :

$$\tan\delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \qquad (V.2)$$

Le facteur de perte traduit la capacité à transformer l'énergie micro-ondes en chaleur et la permittivité diélectrique l'aptitude à la polarisation [SUTTON 1989].

L'accroissement de température induit par la transformation de la puissance absorbée en chaleur peut s'exprimer en fonction de la puissance absorbée P, de la densité du matériau ρ et de sa chaleur spécifique C_p [CLARK 2000] :

$$\dot{T} = \frac{P}{\rho \times C_p} \qquad (V.3)$$

La profondeur de pénétration, notée ici D et qui correspond à la distance à laquelle la puissance incidente est réduite de moitié, traduit l'uniformité de l'élévation de température dans le matériau. Avec c correspondant à la célérité de la lumière, elle s'exprime par [CLARK 2000, MARINEL 2006] :

$$D = \frac{c}{2\pi f \times \sqrt{2\varepsilon'} \times \left(\sqrt{1+\tan^2(\delta)} - 1\right)^{1/2}} \qquad (V.4)$$

Pour les matériaux purement diélectriques *i.e.* en négligeant les effets magnétiques et la conductivité électrique, cette expression permet de montrer que les propriétés diélectriques du matériau ont une influence sur l'absorption des micro-ondes et ainsi, l'utilisation de hautes fréquences et/ou d'un matériau à hautes propriétés diélectriques conduit à un échauffement uniquement à la surface de celui-ci.

On distingue ainsi trois catégories de matériaux : les transparents, les opaques et les absorbants représentés sur la Figure V.38 .

Figure V.38. Les différents types d'interactions avec les micro-ondes : de gauche à droite, transparent, opaque et absorbant.

La Figure V.39 illustre les profils de température des échantillons frittés par micro-ondes et par des méthodes conventionnelles.

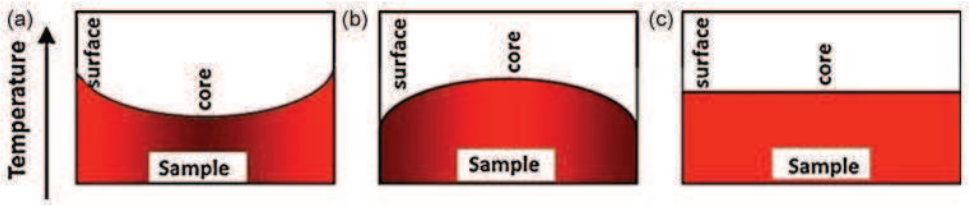


Figure V.39. Schéma des profils de température pour des échantillons frittés par des méthodes coventionnelles (à gauche), par micro-ondes (au centre), par des méthodes "hybrides" (à droite) [OGHBAEI 2010].

Pour réaliser des profils de température plus uniformes, mais surtout pour résoudre des problèmes liés à la faible absorption ou pour limiter l'échauffement catastrophique de certains matériaux (Al_2O_3, SiO_2, Fe_3O_4, ZrO_2…), une méthodologie hybride associant l'énergie micro-onde et l'infrarouge a été mise au point. Ce procédé dérive de l'étude du comportement sous micro-ondes de matériaux à pertes diélectriques différentes [CHATTERJEE 1998, XIE 1999, 1998]. Par exemple, Chatterjee *et al.* comparent le comportement de Al_2O_3 et de SiC qui possèdent une constante diélectrique de 10,8 et 26,7 respectivement et un facteur de pertes diélectriques de 0,16 et 28 respectivement (à 2,45 GHz). Ainsi, la surface du SiC chauffe rapidement (faible profondeur de pénétration, forte puissance absorbée) et il est utilisé pour transférer cette énergie par rayonnement à des matériaux à faibles pertes à basse température : on parle alors de suscepteur. La température du matériau à fritter s'élève alors et son facteur de pertes augmente, ce qui permet d'augmenter son absorption aux micro-ondes. Dans ce cas, les deux profils de température étant conjugués (rayonnement et micro-ondes), le profil global est uniforme du cœur vers la surface. Par ailleurs, l'utilisation de suscepteur(s) permet de limiter les perturbations électromagnétiques générées par des substrats métalliques lorsque l'on souhaite travailler sur des dépôts [CHANG 2008, 2007]. La Figure V.40 présente un schéma du dispositif mettant en jeu ce type de frittage hybride.

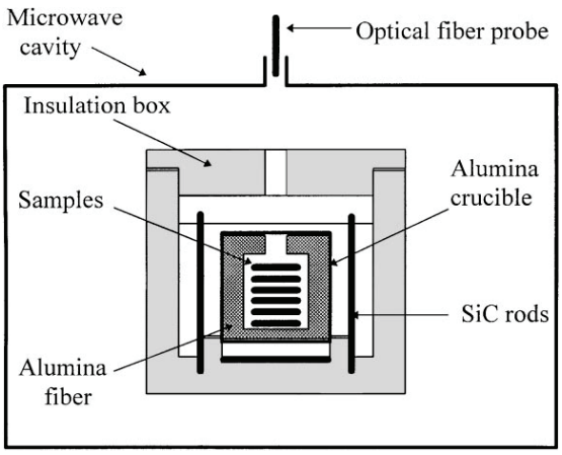


Figure V.40. Cavité micro-onde pour frittage hybride [XIE 1999].

L'utilisation d'un matériau diélectrique dans des configurations hybrides permet donc l'interaction avec les micro-ondes pour le traiter dans son volume afin de le densifier rapidement.

V.5.2.2. Bibliographie : applications aux céramiques PZT

L'application du frittage micro-ondes aux céramiques PZT, et plus généralement aux céramiques ferroélectriques et diélectriques, a été étudiée par de nombreux auteurs. Le Tableau V.17 recense, de manière non exhaustive, quelques travaux réalisés sur des matériaux de la famille des PZT.

Tableau V.17. Quelques références sur l'application du frittage micro-ondes à des céramiques PZT.

Matériau(x)	Conditions	Référence
PT	Multimodes*, suscepteurs 1100°C/30 min	[SINGH 2005]
PMN-PZN-PT	Multimodes*, suscepteurs 960°C/10-15 min	[XIE 1998]
PMN-PZN-PT	Multimodes*, suscepteurs 800→960°C/15 min	[XIE 1999]
PZT douce et dure	Multimodes*, suscepteurs ~1250°C/1 min	[GOLDSTEIN 1999]
PZT	Monomode*, suscepteurs 800→950°C/20 min	[CHEN 2008]
PZT (films sur alumine)	Monomode*, suscepteurs 820°C/20 min	[CHANG 2007]
PZT (films sur acier)	Multimodes*, suscepteurs 500 W/5 min	[CHANG 2008]

* Dans tous les cas, la fréquence des micro-ondes est de 2,45 GHz.

D'une manière générale, le frittage micro-ondes est réalisé en présence de suscepteurs en SiC pour augmenter l'absorption des micro-ondes à basse température (température ambiante). Dans le cas particulier du frittage de films PZT sur acier, la présence des suscepteurs permet entre autres de limiter les perturbations du champ électromagnétique causées par la présence du substrat métallique.

Pour le frittage d'échantillons massifs, il est généralement constaté que le traitement micro-ondes permet d'obtenir des densités et des propriétés (diélectriques et piézoélectriques) au moins équivalentes à celles de massifs traités en four conventionnel, pour des durées de cycles nettement inférieures.

Pour les films, le même constat peut être effectué sous réserve de choisir plus finement les conditions de frittage pour garantir la cohésion et la non fissuration de l'interface ainsi que l'intégrité du substrat.

Le frittage micro-ondes semble adapté au frittage des céramiques piézoélectriques PZT. Il est possible de fritter plus rapidement ces céramiques sans effet néfaste sur leurs propriétés. Des essais sur la poudre PZT commerciale ont alors été entrepris. Les essais de frittage micro-ondes ont été réalisés en collaboration avec le CRISMAT de Caen. Dans un premier temps, une cavité monomode ouverte (avec suscepteur) a été utilisée pour traiter des bandes PZT identiques à celles utilisées en frittage laser. Dans un second temps, une cavité monomode étanche (sans suscepteur) a été utilisée pour traiter des échantillons massifs mis en forme par pressage isostatique à 300 MPa.

V.5.2.3. 1ère gamme d'essais

Dans un premier temps, pour comparer le traitement laser avec le traitement micro-ondes, des morceaux de bandes PZT ont été traitées par micro-ondes de 850°C à 950°C pendant 20 min après déliantage à 450°C pendant 1 heure.

L'équipement micro-ondes utilisé pour ces essais est constitué d'une cavité rectangulaire ouverte fonctionnant en monomode à une fréquence de 2,45 GHz. Un suscepteur tubulaire en chromite de lanthane ($LaCrO_3$) entoure l'échantillon à traiter.

La caractérisation des échantillons s'est avérée problématique car les échantillons, une fois déliantés, sont extrêmement fragiles. Sur des échantillons aussi minces et fragiles, leur manipulation pour déposer les électrodes et leur mise en place dans les dispositifs de polarisation ont conduit à leur fissuration. L'échantillon traité à 950°C pendant 20 minutes a pu être caractérisé électriquement (cycles d'hystérésis) avant d'être fracturé pour être observé en microscopie électronique à balayage.

La Figure V.41 présente la microstructure d'un échantillon de bande PZT traité en micro-ondes à 950°C pendant 20 minutes.

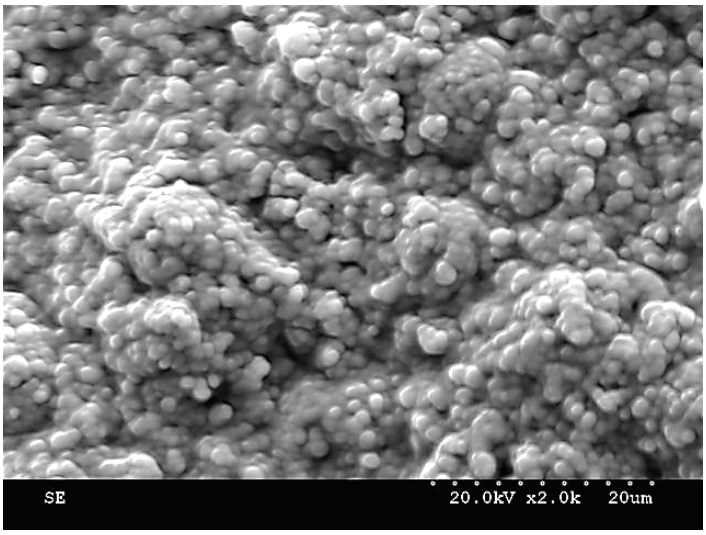


Figure V.41. Microstructure sur fracture d'un échantillon de bande PZT traité par micro-ondes à 950°C pendant 20 minutes.

Il est difficile de statuer sur l'état de densification du matériau. Il semble qu'il y ait un début de cohésion entre les grains mais la forme et la taille des grains sont loin d'être semblables au traitement en four conventionnel (grains polygonaux de plusieurs microns).

Les figures V.42 et V.43 présentent les cycles d'hystérésis mesurés à température ambiante et l'évolution des grandeurs ferroélectriques avec l'intensité du champ électrique appliqué sur l'échantillon traité par micro-ondes à 950°C pendant 20 minutes. Les valeurs de polarisation étant directement reliées à la surface des électrodes, comme celle-ci est déterminée de manière très approximative sur ces échantillons (forme et taille des échantillons, surfaces effectivement recouvertes…), les valeurs sont données ici à titre indicatif.

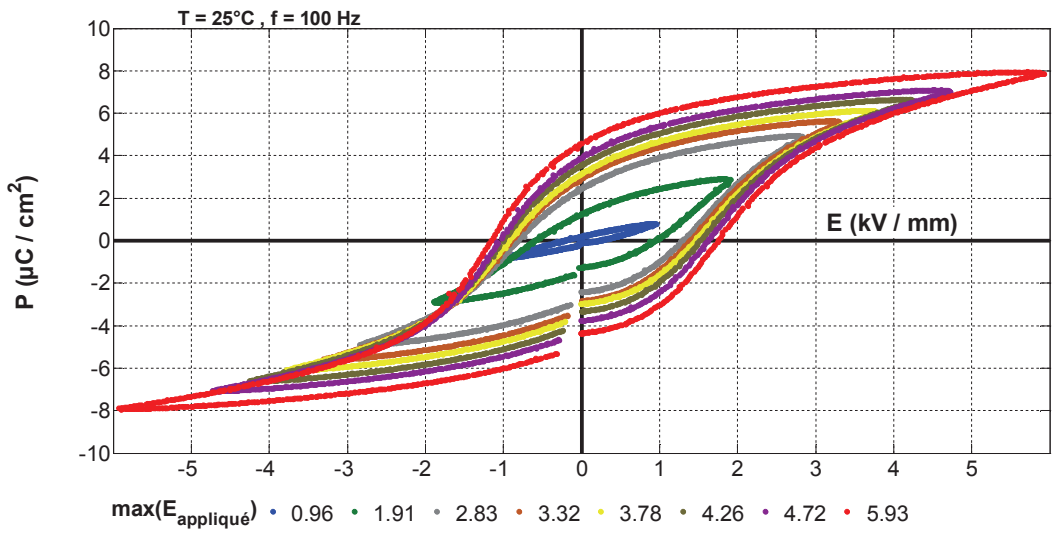


Figure V.42. Cycles d'hystérésis mesurés sur un échantillon de bande PZT traité en micro-ondes à 950°C pendant 20 minutes.

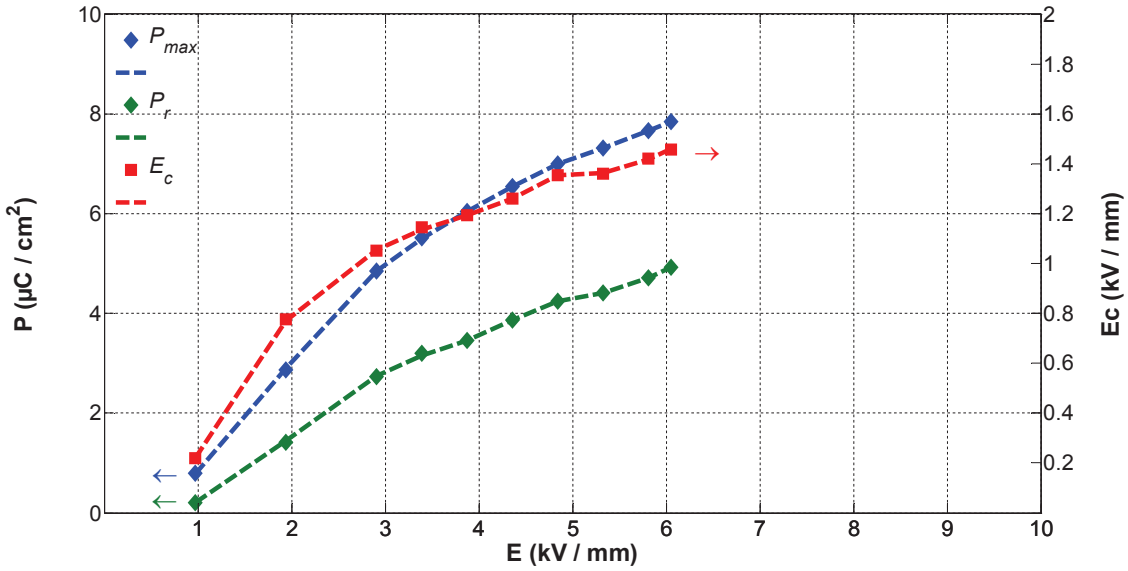


Figure V.43. Evolution des grandeurs ferroélectriques avec le champ électrique appliqué sur un échantillon de bande PZT traité en micro-ondes à 950°C pendant 20 minutes.

L'échantillon montre un comportement ferroélectrique bien que les valeurs de polarisation soient beaucoup plus faibles que celles d'un échantillon conventionnel ($P_r \geq 30$ µC/cm²). Ces faibles valeurs, au-delà de l'erreur sur l'estimation des surfaces conductrices, sont corrélées aux faibles tailles de grain et à l'état de densification observés sur la microstructure.

Les résultats semblent néanmoins prometteurs car ces premiers essais réalisés dans des conditions non optimales permettent déjà d'obtenir des résultats en termes de comportement ferroélectrique. De plus, en comparaison avec le frittage laser expérimenté précédemment, la mise en œuvre du frittage micro-ondes parait plus simple et plus adéquate pour le traitement thermique des fibres.

C'est pour cela qu'une seconde étude plus approfondie a été entreprise pour déterminer les conditions opératoires à mettre œuvre pour réaliser des échantillons denses avec de bonnes

propriétés piézoélectriques. L'utilisation d'échantillons massifs mis en forme par pressage isostatique devrait faciliter les caractérisations ultérieures.

V.5.2.4. 2nd gamme d'essais

L'équipement micro-ondes utilisé pour ces essais est constitué d'une cavité étanche fonctionnant en monomode à une fréquence de 2,45 GHz. Des échantillons cylindriques mis en forme par pressage isostatique ont été utilisés pour ces essais.

Dans un premier temps, le traitement micro-ondes est réalisé à haute température (1000 → 1200°C) pendant une courte durée (5 minutes). Le but est d'évaluer les propriétés pour un frittage à haute température en utilisant des durées de traitement beaucoup plus courtes. Dans un second temps, l'opération sera renouvelée sur des fibres piézoélectriques à âme métallique pour vérifier que la présence d'un conducteur métallique dans l'enceinte micro-ondes puisse permettre de traiter la céramique dans les mêmes conditions.

Cette seconde étude, lancée en toute fin de thèse n'a pas encore pu être pleinement exploitée. Les premiers résultats obtenus concernent la mesure de la densité des échantillons massifs.

Pour les 4 températures testées, à savoir 1050, 1100, 1150 et 1200°C, pour une durée de traitement de 5 minutes, toutes les densités relatives sont supérieures ou égales à 96%.

Le traitement micro-ondes permet de densifier de manière tout à fait satisfaisante des échantillons massifs PZT (composition commerciale) dans des durées très courtes (quelques minutes) au lieu des quelques heures nécessaires dans un four conventionnel.

La poursuite de cette étude permettra d'évaluer les propriétés microstructurales et piézoélectriques des échantillons massifs traités dans ces conditions ainsi que pour des MCPF traitées dans les conditions qui seront jugées optimales pour les massifs.

V.6. Conclusion

Les contraintes liées au développement à grande échelle des MCPF sont nombreuses. Des pistes ont ainsi été abordées pour répondre à ces contraintes de développement.

Dans un premier, le procédé d'élaboration continu d'une fibre piézoélectrique à âme métallique a été étudié. La coextrusion reste le procédé le plus attractif. Ne disposant pas des ressources matérielles pour la développer, une collaboration avec l'école des Mines de Douai a permis de réaliser des essais de coextrusion de polymère chargé en poudre céramique sur un fil métallique. Des difficultés sont rapidement apparues pour obtenir le centrage du fil et pour l'extrusion d'un mélange fortement chargé (>60 vol%) afin d'obtenir, après élimination du medium polymère, des dépôts suffisamment denses pour les fritter dans une seconde étape. Le procédé de coextrusion pour réaliser des dépôts céramiques denses ne peut donc être envisagé qu'avec des pâtes céramiques qui nécessitent des équipements spécifiques. Par ailleurs, si la limitation du diamètre final est aux alentours de 200 µm comme l'évoque Hiroshi Sato, cela peut s'avérer limitant pour la production de fibres actives très fines intégrables dans des structures composites (de type CFRP).

Dans ce sens, le procédé d'enduction développé est beaucoup plus versatile. Néanmoins, pour envisager son utilisation à grande échelle, il est indispensable de réduire le nombre de couches à déposer pour atteindre les rapports d'aspect adéquats. Ainsi, en optimisant les conditions d'enduction (composition de la barbotine, température, vitesses…) de telles manières que le dépôt soit réalisé en une (cas idéal) ou un nombre raisonnable d'étapes de trempage, ce procédé peut devenir un candidat sérieux pour la réalisation de fibres (MCPF) fines et continues.

Les capacités des fibres étant directement liées aux propriétés piézoélectriques du matériau constitutif de la couche active des fibres, les matériaux PZT s'avèrent à l'heure actuelle les meilleurs candidats. Les conditions de frittage conventionnelles de ces matériaux s'avèrent contraignantes vis-à-vis du choix des matériaux possibles pour constituer l'âme centrale conductrice des fibres. C'est pour cela que le platine a été utilisé jusqu'à maintenant : il est le seul matériau capable de garder sa stabilité dimensionnelle et son intégrité physique pendant le traitement thermique à des températures de l'ordre de 1200°C en atmosphère oxydante. Néanmoins, le platine est relativement rigide, lourd mais surtout, très cher. Dans le but de substituer le platine, la réduction de la température de frittage de la céramique de base PZT a été étudiée. L'utilisation d'une température de frittage plus faible permet d'élargir la gamme de matériaux utilisables avec des métaux nobles à plus bas points de fusion ou des alliages revêtus pour garantir la tenue à l'oxydation.

L'utilisation du composé eutectique Cu_2O:PbO pour introduire une phase liquide pendant le frittage permet d'obtenir la densification complète du matériau de base PZT utilisé à des températures aussi basse que 950°C. Néanmoins, la présence de la phase liquide aux joints de grain et l'utilisation d'une basse température de frittage conduit à une réduction des propriétés piézoélectriques de l'ordre de 50%.

Dans ces conditions, des essais de réalisation de fibres ont été menés en utilisant des âmes en platine, en argent et en alliage NiCr revêtu par une couche d'or. Le procédé d'enduction multicouche a été utilisé avec un traitement de consolidation à 750°C et un frittage à 950°C. Pour les fibres de référence à 950°C réalisées sur platine, il a été possible de mesurer des cycles d'hystérésis et de vérifier ainsi qu'il était possible de réaliser des fibres avec un frittage à basse température. Malgré la couche d'or et une température aussi basse que 750°C, l'alliage NiCr n'a pas résisté à l'oxydation. L'utilisation d'une âme en argent permet de réaliser des

MCPF dans ces conditions. Néanmoins, la température de frittage utilisée est trop proche de la température de fusion de l'argent, ce qui a conduit à la diffusion de celui-ci dans la couche céramique et à des contraintes thermomécaniques importantes provoquant l'écaillage du dépôt. D'autres essais, qui n'ont malheureusement pas pu être réalisés pendant ces travaux, avec des âmes en nickel revêtu de platine et des âmes en argent en utilisant une température de frittage un peu plus basse encore (850-900°C) devraient permettre effectivement de proposer un candidat pour la substitution du platine.

En considérant l'argent comme remplaçant au platine, le changement de rigidité de l'âme et la réduction des propriétés piézoélectriques sont des facteurs antagonistes sur les capacités de déformations des fibres. Un calcul par éléments finis a permis d'évaluer à 40% la réduction de déformation longitudinale, suite à l'utilisation d'un cœur moins rigide (favorable) et de propriétés piézoélectriques réduites (défavorable).

La réduction du temps de frittage apparaît comme un paramètre déterminant pour le procédé de fabrication. Le frittage conventionnel dans un four électrique nécessitant plusieurs heures de traitement, des techniques de frittage rapide sont étudiées. Le frittage laser et micro-ondes sont retenus comme techniques potentielles pour la rapidité de leur traitement et la réduction de la température de frittage généralement constatée.

Dans une première collaboration avec l'INISMa de Mons, le frittage laser a été mis en œuvre sur des bandes PZT déliantées de 400 µm d'épaisseur. Les conditions opératoires utilisées n'ont pas permis de traiter les échantillons avec des densités d'énergie suffisamment faibles pour ne pas dégrader le matériau. Il est délicat de choisir les paramètres du traitement laser sans une étude approfondie des interactions du matériau PZT avec le laser. De plus, l'utilisation du traitement laser dans le cas des fibres conduira à de nouvelles complications : le traitement étant ponctuel, il faudra utiliser plusieurs faisceaux lasers ou imaginer mettre la fibre en rotation afin de traiter la géométrie cylindrique.

Une seconde collaboration avec le CRISMAT de Caen a permis d'étudier le traitement micro-ondes sur le matériau PZT utilisé, qui a été plus largement étudié dans la littérature, contrairement au frittage laser des PZT. Les essais préliminaires sur les mêmes bandes ont permis d'obtenir une densification partielle à 950°C pendant 20 minutes et ainsi montrer une bonne aptitude à la polarisation. Suite aux essais prometteurs réalisés et à la possibilité de traiter le matériau dans son volume, une étude approfondie sur le comportement au frittage micro-ondes de la composition céramique piézoélectrique utilisée a débuté en fin de thèse. Les premiers résultats montrent que la densification complète du matériau peut être obtenue à des températures comprises entre 1000 et 1200°C pour des durées de 5 minutes. Les caractérisations piézoélectriques permettront de statuer sur l'efficacité du traitement micro-ondes. L'extension de l'étude sur les fibres sera alors menée, sachant que la présence du fil métallique perturbera la distribution du champ électromagnétique dans l'enceinte micro-ondes. Néanmoins, des essais de frittage micro-ondes de films PZT sur substrats métalliques plans ayant été réalisés avec succès dans la littérature, il est possible de s'attendre à des résultats encourageants pour le frittage rapide des MCPF.

La réflexion menée sur les moyens à mettre en œuvre pour envisager des conditions de développement à grande échelle a apporté des pistes concrètes sur la résolution des principales limitations en termes de coût et de temps de production.

Bibliographie du Chapitre V

Bertrand P. Bayle F. Combe C. Goeuriot P. Smurov I. (2007) *Ceramic components manufacturing by selective laser sintering*. Applied Surface Science, **254** (4), 989‑992.

Chang H.-Y. Cheng S.-Y. Sheu C.-I. (2008) *Microwave sintering of ferroelectric PZT thick films*. Materials Letters, **62** (21-22), 3620‑3622.

Chang H.-Y. Sheu C.-I. Cheng S.-Y. (2007) *Microwave enhanced sintering of tape-cast ferroelectric films*. Journal of the European Ceramic Society, **27** (13-15), 3793‑3797.

Chatterjee A. Basak T. Ayappa K.G. (1998) *Analysis of microwave sintering of ceramics*. AIChE Journal, **44** (10), 2302‑2311.

Chen Y.-T. Sheu C.-I. Lin S.-C. Cheng S.-Y. (2008) *Effects of microwave heating on dielectric and piezoelectric properties of PZT ceramic tapes*. Ceramics International, **34** (3), 621‑624.

Chou C.-F. Pan H.-C. Chou C.-C. (2002) *Electrical properties and microstructures of PbZrTiO3 thin films prepared by laser annealing techniques*. Japanese Journal of Applied Physics, **41** (11), 6679‑6681.

Clark D.E. Folz D.C. West J.K. (2000) *Processing materials with microwave energy*. Materials Science and Engineering: A, **287**, 153‑158.

Corker D.L. Whatmore R.W. Ringgaard E. Wolny W.W. (2000) *Liquid-phase sintering of PZT ceramics*. Journal of the European Ceramic Society, **20** (12), 2039‑2045.

Corker D.L. Zhang Q. Whatmore R.W. Perrin C. (2002) *PZT 'composite' ferroelectric thick films*. Journal of the European Ceramic Society, **22** (3), 383‑390.

Gaillard J.-M. Abelard P. (2006) *Le frittage laser (2D et 3D)*. Présenté à : Matériaux 2006, Dijon (France), p. 17.

Goldstein A. Kravchik M. (1999) *Sintering of PZT powders in MW furnace at 2·45GHz*. Journal of the European Ceramic Society, **19** (6-7), 989‑992.

Gureev D.M. Ruzhechko R.V. Shishkovskii I.V. (2000) *Selective laser sintering of PZT ceramic powders*. Technical Physics Letters, **26** (3), 262‑264.

Hajjaji A. Benayad A. Sebald G. Pruvost S. Guiffard B. Qiu J. Guyomar D. (2008) *Synthesis and characterization of 0.65Pb(Mg1/3Nb2/3)O3–0.35PbTiO3 fibers with Pt core*. Materials Research Bulletin, **43** (3), 493‑501.

Haque K.E. (1999) *Microwave energy for mineral treatment processes - a brief review*. International Journal of Mineral Processing, **57** (1), 1‑24.

Jasim K.M. Rawlings R.D. West D.R.F. (1992) *Operating regimes for laser surface engineering of ceramics*. Journal of Materials Science, **27** (7), 1937‑1946.

Ji L. Jiang Y. (2006) *Laser sintering of transparent Ta2O5 dielectric ceramics*. Materials Letters, **60** (12), 1502‑1504.

Kingery W.D. (1959) *Densification during sintering in the presence of a liquid phase. I. Theory*. Journal of Applied Physics, **30** (3), 301.

Kolossov S. Boillat E. Glardon R. Fischer P. Locher M. (2004) *3D-FE simulation for temperature evolution in the selective laser sintering process*. International Journal of Machine Tools & Manufacture, **44** (2-3), 117-123.

Macedo Z.S. Hernandes A.C. (2002) *Laser sintering of $Bi_4Ti_3O_{12}$ ferroelectric ceramics*. Materials Letters, **55** (4), 217-220.

Macedo Z.S. Hernandes A.C. (2005) *A quantitative analysis of the laser sintering of bismuth titanate ceramics*. Materials Letters, **59** (27), 3456-3461.

Marinel S. (2006) *Aspects fondamentaux et pratiques du frittage micro-ondes*. Présenté à : Matériaux 2006, Dijon (France), p. 1-12.

Oghbaei M. Mirzaee O. (2010) *Microwave versus conventional sintering: A review of fundamentals, advantages and applications*. Journal of Alloys and Compounds, **494** (1-2), 175-189.

Qiu J. (2003) *Fabrication of piezoelectric fibers with metal core*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2003: Active Materials: Behaviour and Mechanics, Proceedings of SPIE, San Diego, CA (USA), p. 475-483.

Sato H. Sekiya T. Nagamine M. (2004) *Design of the metal-core piezoelectric fiber*. Présenté à : Smart Structures and Materials 2004: Smart Structures and Integrated Systems, Proceedings of SPIE, San Diego, CA (USA), p. 97-103.

Sebald G. Benayad A. Qiu J. Guiffard B. Guyomar D. (2006) *Electromechanical characterization of $0.55Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3$–$0.45Pb(Zr_{0.3}Ti_{0.7})O_3$ fibers with Pt core*. Journal of Applied Physics, **100** (5), 54-106.

Sebald G. Qiu J. Guyomar D. Hoshi D. (2005) *Modeling and characterization of piezoelectric fibers with metal core*. Japanese Journal of Applied Physics, **44** (8), 6156-6163.

Seveyrat L.M.M. (2002) *Elaboration et caractérisation de films épais piézoélectriques sérigraphiés sur alumine, silicium, aciers inoxydables et vitrocéramiques* (Thèse de doctorat). INSA, Lyon.

Shimojo Y. Sato H. Takagi K. Shan Y.J. Imoto H. Nagamine M. (2007) *Smart system using new piezoelectric fiber with metal core*. Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, **1** (6), 728-733.

Singh S. Thakur O.P. Rawal D.S. Prakash C. Raina K.K. (2005) *Improved properties of Sm substituted PCT ceramics using microwave sintering*. Materials Letters, **59** (7), 768-772.

Sutton W.. (1989) *Microwave processing of ceramic materials*. American Ceramic Society bulletin, **68** (2), 376-386.

Tian X. Günster J. Melcher J. Li D. Heinrich J.G. (2009) *Process parameters analysis of direct laser sintering and post treatment of porcelain compenents using Taguchi's method*. Journal of the European Ceramic Society, **29**, 1903-1915.

Whatmore R.W. Corker D. (2001) *Sintering aids for ceramics*. Brevet N°2353994.

Xie Z. Gui Z. Li L. Su T. Huang Y. (1998) *Microwave sintering of lead-based relaxor ferroelectric ceramics*. Materials Letters, **36** (1-4), 191-194.

Xie Z. Yang J. Huang X. Huang Y. (1999) *Microwave processing and properties of ceramics with different dielectric loss*. Journal of the European Ceramic Society, **19** (3), 381-387.

Yadoji P. Peelamedu R. Agrawal D. Roy R. (2003) *Microwave sintering of Ni-Zn ferrites: comparison with conventional sintering*. Materials Science and Engineering: B, **98**, 269-278.

Yoon C.-B. Jun S.-H. Lee S.-M. Kim H.-E. Lee K.-W. (2006) *Piezoelectric fibers with uniform internal electrode by co-extrusion process*. Journal of the American Ceramic Society, **89** (4), 1333-1336.

Zhu Y. Zhu J. Song Y.J. Desu S.B. (1998) *Laser-assisted low temperature processing of Pb(Zr, Ti)O_3 thin film*. Applied Physics Letters, **73** (14), 1958.

Conclusion générale

Conclusion générale

Le travail effectué dans le cadre de cette thèse s'inscrit dans un contexte global de recherche de nouvelles solutions en termes de capteurs et d'actionneurs pour le secteur aéronautique. Ainsi, les fibres piézoélectriques à âme métallique permettent d'imaginer de nombreuses utilisations grâce à de nombreux avantages :

- le matériau actif, à base de fibre céramique piézoélectrique PZT, permet d'atteindre des déformations/efforts importants avec un temps de réponse très court dans une large gamme de températures ;
- la géométrie tubulaire du matériau piézoélectrique permet d'utiliser des tensions d'activations très faibles recommandées pour leur application dans des systèmes embarqués ;
- le diamètre des fibres potentiellement très faible (100-300 µm) permet de les intégrer dans des structures composites de type stratifiés en CFRP UD sans modifier de manière significative les propriétés mécaniques du composite ;
- l'élaboration sous forme de fibres longues permet de les intégrer sur des grandes longueurs pour suivre en continu le profil d'une structure ;
- la présence du cœur ductile permet d'améliorer la tenue mécanique de la fibre et ainsi, rend possible leur intégration à des structures de formes complexes (profil courbe…) voire d'imaginer leur mise en œuvre par des méthodes textiles ;
- l'effet piézoélectrique réversible peut être mis en œuvre pour réaliser les fonctions de capteurs et actionneurs indépendamment au sein d'un réseau de fibres intégrées.

Ces fibres pourraient être utilisées comme capteur structurel pour le contrôle santé intégré, pour l'amortissement de vibrations, pour la microdéformation, pour le micropositionnement, pour le contrôle aérodynamique, pour la récupération d'énergie *et cetera*.

La première partie de l'étude s'intéresse à l'élaboration de ces fibres par un procédé d'enduction multicouche. Cette technique, "simple" et peu onéreuse à mettre en œuvre, s'avère particulièrement versatile pour réaliser des fibres de tailles variées, contrairement aux autres procédés explorés dans la littérature. Cependant, pour les applications d'actionneur, il est nécessaire de déposer des épaisseurs importantes de céramique sur le fil métallique. Les dimensions étant difficilement réalisables en une seule étape, le dépôt multicouche a été développé. Pour réaliser des dépôts homogènes pendant les différentes phases de dépôt, il a été nécessaire de réaliser un traitement thermique intermédiaire pour éliminer les composés organiques et commencer la consolidation du dépôt. Les conditions choisies permettent de réaliser des dépôts successifs en garantissant l'homogénéité du dépôt final. Dans les conditions opératoires actuelles, le nombre de couches nécessaires pour atteindre les ratios optimums est relativement important (~6-8). Une des pistes étudiée pour réduire le nombre d'étapes de trempage repose sur la diminution de la température de la barbotine pendant l'étape d'enduction. L'augmentation de la viscosité et la réduction de la volatilisation du solvant organique permettent de réaliser des dépôts plus épais avec une excellente homogénéité. En optimisant tous les paramètres du procédé (composition de la barbotine, vitesse de retrait, température…) il est possible d'envisager de réaliser les épaisseurs requises en seulement quelques étapes, voire une seule.

La seconde partie est consacrée à la caractérisation des fibres. Les dimensions et la géométrie des fibres rendant difficile l'utilisation des méthodes usuelles de caractérisations, il a d'abord été considéré des échantillons massifs traités dans les mêmes conditions thermiques que les fibres réalisées. Les échantillons massifs ont ainsi subi *n* traitement(s) de consolidation à 950°C et un frittage final à 1200°C avec des vitesses plus lentes de 1°C/min. L'influence des traitements intermédiaires et des vitesses de chauffe et de refroidissement sont ainsi comparées avec le traitement standard des échantillons massifs (1200°C – 5°C/min). Les résultats ont montré deux points fondamentaux :

- l'utilisation de cycles hautes températures plus longs (palier intermédiaire et vitesse plus lente) conduit à une augmentation des propriétés mesurées sur les échantillons massifs (densité, propriétés diélectriques et piézoélectriques) ;
- les traitements de consolidation à 950°C n'ont pas d'incidence significative sur les propriétés finales des échantillons massifs.

Les conditions choisies pour le traitement thermique des fibres sont donc adéquates pour l'obtention de propriétés élevées.

Les premières caractérisations sur les fibres concernent leur microstructure, leur structure cristallographique et leur comportement à la polarisation. Avec les traitements de consolidation, aucune différence n'est apparue sur les structures cristallographiques. De même, pour les différentes fibres réalisées, les microstructures sont homogènes le long du rayon de la fibre et ne présentent pas de délaminage. Cette homogénéité structurale se retrouve dans le comportement à la polarisation qui est semblable à celui observé sur des échantillons massifs avec des cycles d'hystérésis ouverts et saturés. De manière générale, les échantillons massifs et les fibres multicouches réalisés présentent les mêmes structures cristallographiques, les mêmes microstructures et les mêmes comportements à la polarisation. L'hypothèse est alors posée que les fibres peuvent présenter les mêmes propriétés piézoélectriques, à savoir : $k_p > 0{,}60$; $d_{33} > 500$ pm/V ; $d_{31} > 200$ pm/V.

La seconde série de caractérisations s'intéresse à la détermination des caractéristiques piézoélectriques des fibres. Deux techniques différentes ont été mises en œuvre dans ce but : la vibrométrie laser et la micro-traction. La première permet de mesurer les déplacements lorsque la fibre est sollicitée par une tension alternative. En quasi-statique, la déformation longitudinale est reliée au champ électrique appliqué. Cependant, dans les expérimentations, il est apparu que les déformations principales sont hors de la direction longitudinale de la fibre. Il est supposé que les conditions d'encastrement, les variations d'épaisseur et l'utilisation de fils métalliques non rectilignes sont responsables de ces déformations complexes. En bloquant la fibre sur son contour, la déformation longitudinale peut être observée mais les valeurs résultantes de coefficient piézoélectrique d_{31} sont relativement faibles, soit -16 pm/V pour les fibres avec les rapports d'aspect les plus élevés (~0,38) parmi celles réalisées. L'association de plusieurs fibres (α~0,05) au sein d'un patch a permis de vérifier le comportement en tant qu'actionneur et capteur.

Les caractérisations à l'aide de machine de micro-traction, réalisées en collaboration avec l'école des Mines de Douai et l'UMET de Lille, devaient permettre de s'affranchir des limitations rencontrées avec la vibrométrie laser. En effet, en appliquant une traction initiale permettant d'aligner la fibre, la mise sous tension de la fibre devait permettre de mesurer des déformations longitudinales et d'accéder aux efforts développés par les fibres. Dans les conditions opératoires utilisées, les évolutions de la force et du déplacement avec la tension appliquée sont linéaires et permettent d'estimer une valeur du coefficient piézoélectrique

transverse d_{31} à -21 pm/V pour les fibres avec les rapports d'aspect les plus élevés (~0,38). Cette approche préliminaire semble prometteuse mais les spécificités des matériels utilisés n'ont pas permis d'exploiter pleinement le potentiel offert par cette technique de caractérisation. Ainsi, il semble intéressant d'optimiser cette technique de caractérisation en améliorant les conditions d'encastrement et les propriétés des fibres utilisées (linéarité, rapport d'aspect plus élevé) afin de déterminer les courbes de fonctionnement des fibres réalisées.

La troisième partie de l'étude est dédiée à la modélisation des MCPF. Deux objectifs sont poursuivis :

- modéliser le comportement effectif des fibres en fonction de leur dimensionnement et des matériaux utilisés ;
- modéliser le comportement piézoélectrique des fibres lorsqu'elles sont intégrées dans une structure en fonction des géométries et des matériaux utilisés afin de simuler des applications de capteur et d'actionneur.

Tout d'abord, un modèle analytique a été utilisé pour décrire les paramètres pertinents qui conditionnent les propriétés des fibres en prenant en compte les particularités de la géométrie cylindrique et la présence d'élément(s) passif(s) rigide(s), à savoir :

- le rapport d'aspect, ratio entre l'épaisseur du dépôt céramique et le rayon total de la fibre ;
- les propriétés élastiques des matériaux considérés (céramique, âme, matrice).

En ne s'intéressant qu'à la déformation longitudinale et en négligeant tout effet transverse, le modèle analytique permet de mettre en évidence qu'il existe des rapports d'aspect optimums pour obtenir des déformations maximales. Ces déformations sont néanmoins réduites par rapport à une céramique tubulaire seule à cause de la présence du cœur métallique qui apporte une rigidité supplémentaire. De la même manière, si ces fibres sont intégrées uniformément dans une matrice, les déformations sont également réduites, et ce, d'autant plus que la matrice utilisée est rigide. Ainsi, pour obtenir des déformations importantes, il est nécessaire de privilégier des cœurs et des structures peu rigides.

Le calcul par éléments finis avec le code ATILA permet de caractériser le fonctionnement des fibres en tant que capteur ou actionneur en piézoélectricité linéaire. En prenant en compte les effets transverses, le calcul par éléments finis décrit de manière plus précise le comportement des fibres. Dans un premier temps, les fibres seules sont modélisées afin de comparer les valeurs de déformation libre avec celles accessibles par le calcul analytique. Les résultats diffèrent d'environ 15% et la surestimation du modèle analytique est attribuée à la prise en compte des effets transverses dans le calcul par éléments finis.

Le calcul a été poursuivi pour déterminer les courbes de fonctionnement des actionneurs afin de déterminer l'évolution des déplacements libres et des forces de blocage en fonction du rapport d'aspect. Le calcul effectué en considérant une âme en platine et pour trois rapports d'aspect différents montre que l'augmentation de la proportion de matériau actif permet d'augmenter les déformations et les efforts lors de l'activation des fibres.

L'intégration des fibres à la surface d'une structure permet de déformer celle-ci en flexion. Il a été montré que la flèche obtenue dépendait à la fois de la rigidité de la structure et de son épaisseur. Dans cette configuration, en simulant le fonctionnement en tant que capteur, il s'est

avéré difficile de remonter à la tension aux bornes d'une fibre car la réponse du matériau piézoélectrique en termes de charges électriques au niveau des électrodes n'est plus homogène lorsque la déformation n'est plus purement longitudinale.

Une autre configuration a été modélisée sous forme de patch (feuillets souples, fibres, résine souple) afin de montrer les différentes configurations possibles. Par exemple, en collant deux patchs de part et d'autre d'une plaque d'aluminium de 5 mm, il est possible d'allonger ou de fléchir celle-ci.

Enfin, l'utilisation de ces fibres en tant que capteur de défaut structurel a été simulée. En considérant qu'un défaut modifie les propriétés mécaniques locales de la structure soumise à une sollicitation, la réponse de la fibre est modifiée. Il est alors possible d'imaginer un réseau de fibres dans la structure pour localiser précisément le défaut.

Les premiers travaux de modélisation réalisés permettent ainsi de mieux appréhender les propriétés et le type d'applications des fibres. Lorsque l'élaboration des fibres sera étendue pour obtenir de hauts rapports d'aspect et que les techniques de caractérisations seront optimisées, il sera alors possible de confirmer les résultats de l'analyse numérique. Des travaux complémentaires sur l'interprétation et l'exploitation des calculs numériques sont nécessaires pour analyser les cas plus complexes d'utilisation de ces fibres.

La dernière partie aborde les solutions à apporter afin d'envisager un développement industriel de ces fibres. Les principales limitations actuelles concernent la rapidité de production, qui dépend à la fois du procédé et des traitements thermiques, et du coût de production qui est fortement dépendant du coût du matériau de l'âme utilisé, en l'occurrence le platine.

En ce qui concerne le procédé, l'élaboration par enduction peut être transposée à grande échelle, à condition d'optimiser le procédé pour réduire le nombre de couches à déposer. La mise en œuvre du procédé de coextrusion à l'aide d'un mélange polymère chargé en poudre céramique a été expérimentée en collaboration avec l'école des Mines de Douai. L'objectif étant d'utiliser des taux de charges élevés (>60~70 vol.%) pour densifier le dépôt céramique. Cette technique s'est avérée ne pas convenir à l'extrusion de mélanges fortement visqueux. Au-delà de 40 vol.% de charges, il est devenu difficile d'assurer le centrage du fil métallique et les limitations de l'extrudeuse, en termes de couple notamment, ne permettaient plus d'assurer l'extrusion du mélange. La coextrusion utilisant un polymère chargé reste néanmoins intéressante pour le développement de dépôts actifs souples à base de polymères piézoélectriques par exemple.

Les conditions de frittage de la céramique piézoélectrique utilisée (à base de PZT) sont relativement sévères : température élevée et atmosphère oxydante. Le matériau de l'âme métallique doit résister à ces conditions tout en assurant une dilatation thermique proche de la céramique pour éviter la fissuration pendant le frittage, une bonne conductivité électrique, un faible module d'élasticité pour ne pas trop réduire les déformations de la fibre en utilisation, et à un coût aussi faible que possible. Les contraintes thermochimiques du frittage ont conduit à utiliser principalement du platine mais il serait préférable d'utiliser des matériaux moins rigides, moins lourds et surtout, moins chers. Des recherches ont alors été menées pour abaisser la température de frittage afin d'élargir la gamme de matériaux utilisable. L'additif de frittage composé d'un mélange eutectique d'oxyde de plomb et d'oxyde de cuivre (I) a été retenu pour réduire la température de frittage en dessous de 950°C afin d'obtenir des densités

élevées et préserver au moins 50% des propriétés piézoélectriques. Une première expérimentation sur des échantillons massifs a permis d'obtenir des résultats cohérents avec la littérature. L'utilisation de cette composition pour la réalisation de fibres a été mise en œuvre sur des fils de platine, d'argent et d'alliage métallique haute température revêtu d'or. Sur platine, la composition avec additifs permet d'obtenir des microstructures et des cycles d'hystérésis satisfaisants. L'alliage revêtu s'est complétement oxydé et détérioré à l'issu du premier traitement de consolidation à 750°C. L'argent quant à lui a montré des signes de fusion locale ou en tout cas de ramollissement important à 950°C. La température de frittage, probablement trop proche de la température de fusion de l'argent, a conduit à la fissuration du dépôt et à la diffusion de l'argent dans la couche céramique. Ces résultats sont cependant positifs car ils montrent qu'il est possible d'abaisser significativement la température de frittage tout en conservant des propriétés piézoélectriques satisfaisantes (≥ 50%). Il est ainsi nécessaire de poursuivre l'étude de l'abaissement de température, sur argent et sur nickel revêtu par du platine notamment, à des températures de l'ordre de 800-900°C et de mesurer les propriétés résultantes. Par ailleurs, l'optimisation de la formulation avec les additifs peut également permettre d'augmenter les propriétés piézoélectriques. En utilisant les données recueillies à 950°C, le calcul par éléments finis prévoit une réduction de la déformation libre d'environ 40% en utilisant une âme en argent.

Enfin, la réduction du temps de frittage à l'aide de techniques de frittage non conventionnelles a été étudiée afin d'imaginer une production continue des fibres piézoélectriques à âme métallique. Des collaborations avec l'INISMa de Mons et le CRISMAT de Caen ont été entreprises afin d'étudier le frittage laser et le frittage micro-ondes.

Dans un premier temps, le frittage laser a été étudié. Le frittage laser apporte une densité d'énergie importante à la surface du matériau pour réaliser la consolidation des grains par diffusion à l'état solide ou à l'état liquide ou par fusion. Il est délicat à mettre en œuvre dans le cas des céramiques PZT car il faut apporter l'énergie nécessaire et suffisante pour activer les mécanismes de diffusion à l'état solide sans volatiliser le plomb et sans dégrader la structure chimique et cristallographique du PZT. Lors des essais réalisés, les différents paramètres testés (puissance, vitesse, focalisation…) n'ont pas permis d'avoir un début de densification sans dégrader le matériau. En effet, soit les conditions utilisées sont trop faibles pour débuter la consolidation, soit elles sont trop intenses et le matériau se décompose avec création de plomb métallique. Il est probable que le traitement laser soit inadapté à la densification de poudres "grossières" de PZT qui requièrent des densités d'énergie trop élevées vis-à-vis de l'instabilité thermique de cette céramique particulière.

Dans un second temps, le frittage micro-ondes a été étudié. Le rayonnement micro-ondes absorbé par le matériau permet d'élever sa température. Leur utilisation pour le frittage des PZT est plus répandue dans la littérature et dans ce cas de figure, ce sont les propriétés diélectriques du matériau qui conditionnent l'interaction avec les micro-ondes. L'utilisation des micro-ondes en présence d'un suscepteur dans une cavité monomode a permis de réaliser un début de densification sur des bandes PZT de 400 µm traitées à 950°C pendant 20 minutes et de mesurer des cycles d'hystérésis ferroélectriques. Les essais préliminaires ayant été plus prometteurs que le frittage laser, une étude approfondie a été lancée pour étudier le comportement d'échantillons massifs de PZT dans une cavité monomode sans suscepteur à des températures allant de 1000 à 1200°C (dans un premier temps) pendant 5 minutes. Les premiers résultats de cette étude montrent que des densifications tout à fait satisfaisantes (>96%) sont atteintes dans ces conditions. Les résultats sont encourageants et la technologie micro-ondes est sans doute l'une des meilleures solutions pour le frittage rapide des MCPF.

Après avoir vérifié que le traitement micro-ondes permette d'obtenir des caractéristiques piézoélectriques sur les massifs pour des durées de traitement très courtes, il sera intéressant d'étudier le frittage direct des MCPF par micro-ondes.

Pour conclure, l'objectif de ces travaux était de montrer si des fibres piézoélectriques à âme métallique de grandes longueurs et suffisamment fines pour être intégrées dans une structure composite aéronautique pouvaient être réalisées selon un procédé d'élaboration céramique compatible avec une production continue.

Plusieurs difficultés ont été mises en évidence : difficulté de réaliser les fibres avec les rapports d'aspect requis (rapport entre l'épaisseur du matériau céramique et le rayon total des fibres), choix limité de matériau pour l'âme des fibres (cofrittage obligatoire avec la poudre PZT), difficulté pour obtenir les caractéristiques piézoélectriques des fibres (dimensions des fibres, faibles déplacements à mesurer, fibres non rectilignes).

Différentes solutions ont été proposées et il est envisageable d'élaborer de telles fibres par un procédé d'enduction optimisé couplé au frittage micro-ondes. L'utilisation d'additifs de frittage, si elle reste indispensable, impose d'accepter que les fibres présentent des caractéristiques inférieures aux céramiques traitées à haute température.

Les travaux de modélisation ont permis d'approcher quantitativement les comportements en tant qu'actionneur et capteur dans différentes conditions d'intégration à des structures composites. Elles devront être poursuivies afin de préciser le positionnement de ces fibres par rapport aux autres techniques envisagées pour les applications capteur/actionneur dans l'aéronautique.

Annexes

Annexe I TECHNIQUES EXPERIMENTALES

I.1. Préparation de poudre piézoélectrique

La composition retenue est un PZT dopé au lanthane caractérisée par des coefficients piézoélectriques et des coefficients de couplage élevés. Le pourcentage molaire de lanthane est fixé à 7% et le ratio molaire zircone/titane est fixé à 60/40.

La synthèse de poudre s'effectue par voie solide. Les différents précurseurs sous forme d'oxydes (Tableau 1) sont mélangés au planétaire (jarre et media en agate) en milieu alcoolique (éthanol à 35 m% + ester phosphorique à 0,5 m%) pendant 2 heures à 180 tr/min.

Tableau 1. Précurseurs utilisés pour la préparation de poudre PZT.

Oxyde	Fournisseur	Pureté (%)
PbO	Alfa Aesar	> 99,9
ZrO_2	Huels AG	> 95,5
TiO_2	Degussa	> 95,5
La_2O_3	Merck	> 99,995

Le mélange est ensuite séché à 45°C pendant au moins 12 heures. Le mélange de poudre est récupéré, placé dans un creuset clos en alumine et placé au four pour le traitement de calcination.

La calcination a lieu à 960°C pendant 4 heures avec des vitesses de chauffe/refroidissement de 5°C/min. A l'issue de la calcination, la poudre forme un compact dense. Ce compact est broyé dans un mortier avant d'être tamisé grossièrement à 500 microns.

La poudre est alors broyée par attrition pendant 20 minutes en milieu aqueux (NH_3) par des media en zircone yttriée de 1 mm de diamètre. Le milieu basique permet de limiter l'agglomération de la poudre dans le milieu liquide. Après l'opération d'attrition, le mélange est tamisé à 750 microns pour séparer la poudre des media. La poudre est alors mise à sécher à 90°C pendant au moins 24 heures. Après séchage, la poudre est tamisée à 25 microns.

I.2. Préparation d'échantillons massifs

I.2.1. Mise en forme

Les échantillons massifs sont mis en forme par pressage isostatique à froid. La poudre est placée dans un moule cylindrique en caoutchouc fermé par un bouchon en caoutchouc. Le moule est placé dans un sachet sous vide. L'ensemble est alors placé dans la presse isostatique.

Les échantillons sont pressés à 300 MPa pendant 10 à 15 minutes. Ils sont alors retirés du sachet et du moule avant d'être éventuellement rectifiés, notamment pour les analyses thermodilatométriques.

I.2.2. Métallisation

Après frittage, en fonction des dimensions, les échantillons peuvent être carottés. Ils sont ensuite découpés en pastilles de 500 et 1000 microns d'épaisseurs, rectifiés avec du papier SiC puis nettoyer aux ultrasons dans l'éthanol. Après séchage, de la pâte d'oxyde argent est déposée sur les deux faces des pastilles par sérigraphie. L'oxyde d'argent est ensuite réduit en

argent métallique par traitement thermique à 600°C pendant 15 minutes. Les tranches des échantillons sont rectifiées pour éviter les contacts éventuels entre les deux électrodes.

I.3. Analyse granulométrique

I.3.1. Principe

Les analyses granulométriques sont effectuées à l'aide d'un granulomètre laser *Mastersizer 2000 Hydro MUA* de *Malvern Instruments*.

La granulométrie laser est basée sur la diffraction de la lumière par les particules. L'analyse des intensités diffractées par une particule permet de calculer son diamètre.

En effet, en utilisant la théorie de Fraunhofer, qui s'applique pour des particules sphériques parfaitement denses et non absorbantes avec un diamètre bien supérieur à la longueur d'onde utilisée, la figure de diffraction obtenue est une tâche d'Airy constituée de cercles concentriques successivement clairs et sombres (Figure 1).

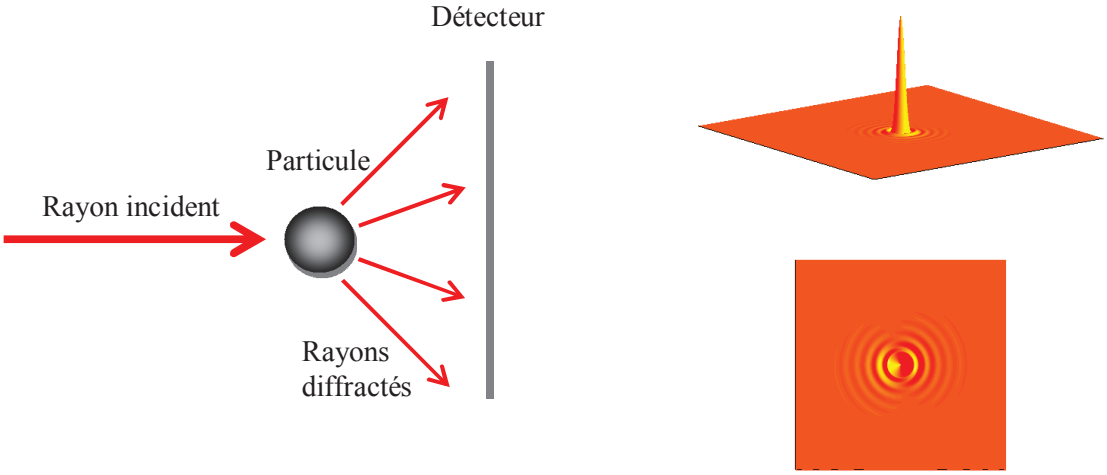


Figure 1. Figure de diffraction (tâche d'Airy) dans la théorie de Fraunhofer appliquée à la granulométrie laser.

L'intensité diffractée suit une loi en sinus cardinal au carré (Figure 2).

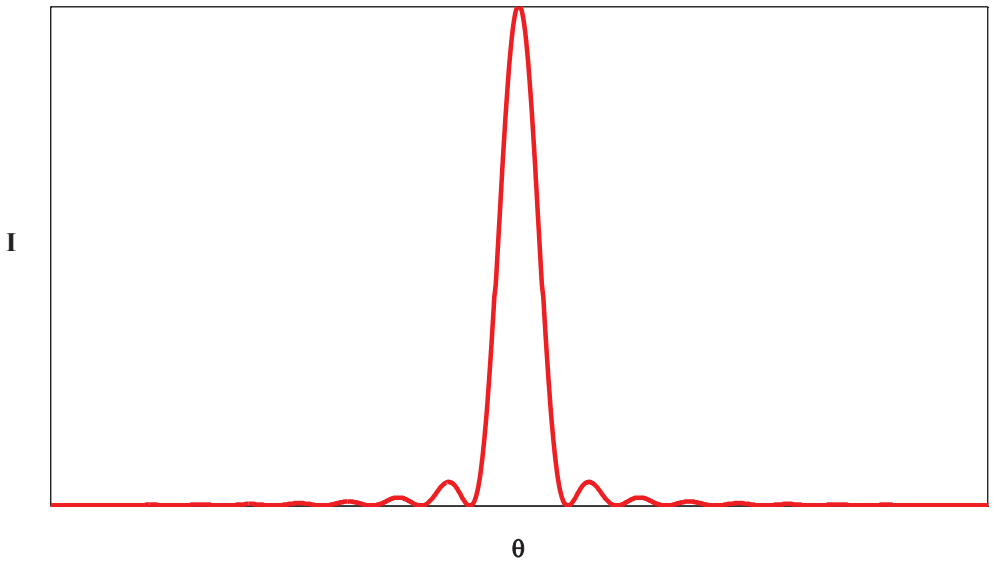


Figure 2. Intensité diffractée dans une direction θ pour une tâche d'Airy.

Le premier lieu où l'intensité devient nulle peut être approximé par la relation suivante :

$$\sin\theta \approx 1{,}22 \times \frac{\lambda}{d} \qquad (1)$$

Le rayon de la tâche centrale est donc inversement proportionnel à la particule qui diffracte.

Lorsque les particules deviennent plus petites, la théorie de Mie complète la diffraction de Fraunhofer en prenant en compte les effets d'absorption et de diffusion des particules sphériques pour des concentrations en particules faibles. Il est donc ici nécessaire de connaître les indices de réfraction des particules et du milieu considéré ainsi que les coefficients d'absorption des particules pour la longueur d'onde utilisée. Ainsi, en comparant l'intensité angulaire mesurée avec les figures de diffraction obtenues par la théorie de Mie, il est possible de déterminer la taille des particules.

Notons qu'en réalité, les particules analysées ne sont pas parfaitement sphérique voire pas du tout (cas des trichites par exemple). L'information retenue est alors une gamme de diamètre particulaire.

I.3.2. Protocole d'analyse

Les poudres à analyser sont dispersées dans un milieu choisi pour limiter leur agglomération et dans lequel les poudres ne se dissolvent pas (milieu ammoniacal pour les oxydes de plomb et les PZT, milieu aqueux pour les oxydes de titane et de zircone…). La solution ainsi préparée est relativement concentrée. Celle-ci est introduite au goutte-à-goutte dans le circuit de l'appareil pour atteindre une concentration plus faible mais suffisante pour la mesure.

La mesure s'effectue sous agitation et sous ultrasons pour limiter l'agglomération pendant la mesure. Une mesure dure 15 secondes et elle est répétée 8 fois à partir de la même solution. Ceci permet d'augmenter la représentation statistique des populations granulométriques et permet également de constater l'agglomération des particules dans le milieu avec un

glissement du profil granulométrique vers les tailles importantes où l'apparition de populations de tailles importantes au fil du temps avec la répétition de la mesure.

Dans le cas d'une distribution granulométrique gaussienne, la courbe des effectifs cumulés est une sigmoïde croissante dont le point d'inflexion représente la taille médiane des particules d_{50} (Figure 3).

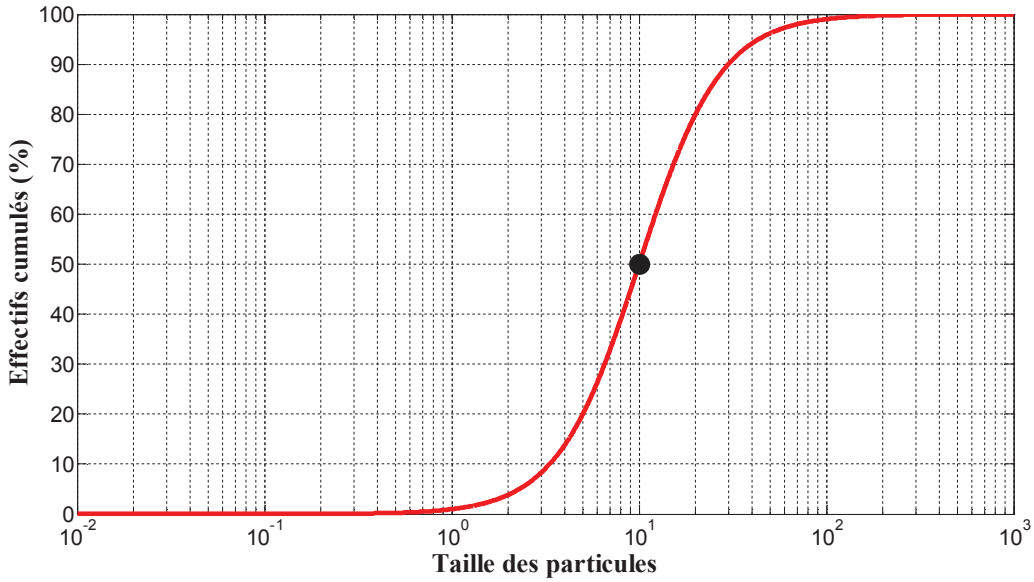


Figure 3. Courbe des effectifs cumulés dans le cas d'une distribution granulométrique gaussienne.

C'est cette valeur d_{50} qui est présentée dans les résultats bien que le traitement des courbes d'effectifs cumulés soit réalisé en considérant des combinaisons de sigmoïdes représentatives des différentes populations granulométriques mesurées.

I.4. Mesure de surface spécifique

I.4.1. Principe

La mesure de la surface spécifique des poudres se fait avec un appareil *FlowSorb III* de *Micromeritics*.

La mesure de la surface spécifique d'un solide par l'adsorption d'un gaz est basée sur la théorie de Brunauer, Emmet et Teller [BRUNAUER 1938, PICKETT 1945] qui décrit la formation de couches de gaz à la surface d'un solide.

I.4.2. Protocole de mesure

Une masse de poudre est introduite dans une cellule de mesure et placée dans un manchon chauffant à 200°C pour dégazer la poudre.

La calibration de l'appareil est effectuée en injectant un volume connu d'azote dans des conditions de température et de pression connues.

La cellule de mesure est ensuite mise en place et l'adsorption d'azote est mesurée à la température ambiante. Une fois cette mesure effectuée, la cellule est refroidit brutalement en la plongeant dans l'azote liquide pour réaliser la mesure en désorption.

La mesure est répétée plusieurs fois afin de réaliser une moyenne de la surface spécifique de la poudre. Le diamètre équivalent des grains peut être déterminé en faisant l'hypothèse de grains sphériques de tailles identiques :

$$D_{B.E.T} = \frac{6}{\rho \times S_{B.E.T}} \qquad (2)$$

I.5. Mesure de densité

Les densités apparentes des échantillons massifs frittés sont déterminées par pesée hydrostatique en utilisant le principe de la poussée d'Archimède.

Les échantillons sont préalablement séchés à l'étuve avant d'être pesés pour déterminer leurs masses sèches. Ils sont ensuite plongés dans de l'eau distillée pour déterminer leurs masses immergées représentatives du volume d'eau déplacé. La température de l'eau est mesurée pour corriger la densité de l'eau prise en compte dans le calcul. La mesure des masses est effectuée sur une balance de précision dont l'incertitude absolue est de 10^{-4} g.

La densité apparente des échantillons est calculée en utilisant la relation suivante :

$$d_{app} = \frac{m_s}{V} = \frac{m_s}{(m_s - m_i)/\rho_{H_2O}(T)} \qquad (3)$$

La correction de la densité de l'eau est effectuée en utilisant la formulation publiée par Tanaka *et al* [TANAKA 2001] valable dans l'intervalle [0 ; 40°C] en supposant une pression de 101 325 pascals :

$$\rho_{H_2O}(T) = a_5 \left[1 - \frac{(a_1 + T)^2 \times (a_2 + T)}{a_3(a_4 + T)}\right] \qquad (4)$$

Les coefficients sont déterminés expérimentalement à l'aide de différentes méthodes et des corrections peuvent être apportées selon différentes cas de figure (air dissout, influence de la pression…).

I.6. Analyse thermodilatométrique

I.6.1. Principe

Le dilatomètre utilisé pour les analyses est un modèle *DI24* de *Adamel Lhomargy*. La Figure 4 présente le schéma de l'appareil avec ses principaux composants.

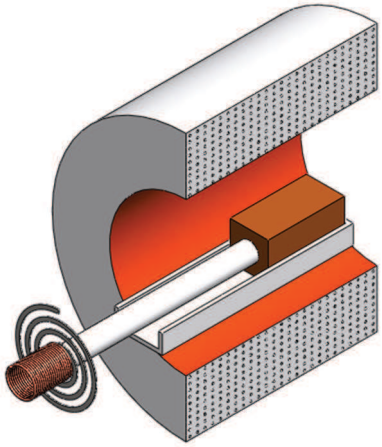


Figure 4. Schéma de principe de l'appareil pour les analyses thermodilatométriques.

Il se compose d'un four tubulaire (ambiante → 1600°C) monté sur glissières et d'un système de suivi du retrait linéaire de l'échantillon. Une canne en alumine est précomprimée sur l'échantillon et reliée au noyau de fer d'une inductance. Lorsque le retrait de l'échantillon débute, la canne suit les variations de l'échantillon ce qui modifie l'inductance de la bobine. Ces variations sont traduites en termes de déplacements qui sont tracés sur une table traçante en fonction de la température mesurée par un thermocouple placé au voisinage de l'échantillon.

Deux types d'analyses sont ainsi possibles :

- mesurer les coefficients de dilation thermique d'un échantillon ;
- étudier le comportement au frittage d'une céramique.

Dans le cas le plus simple pour une céramique (compaction homogène, taille de grains identique, monophasée), la courbe retrait-température présente deux zones:

- à basse température, la relaxation des contraintes internes avec l'augmentation de la température conduit à une dilatation de l'échantillon ;
- à plus haute température, lorsque les processus de diffusion sont activés, le retrait augmente brutalement puis un état asymptotique s'installe lorsque la densification maximale a été atteinte.

En négligeant les variations de dilatation dues à la relaxation (faibles comparées au retrait de frittage), la courbe présente une forme de sigmoïde décroissante illustrée sur la Figure 5.

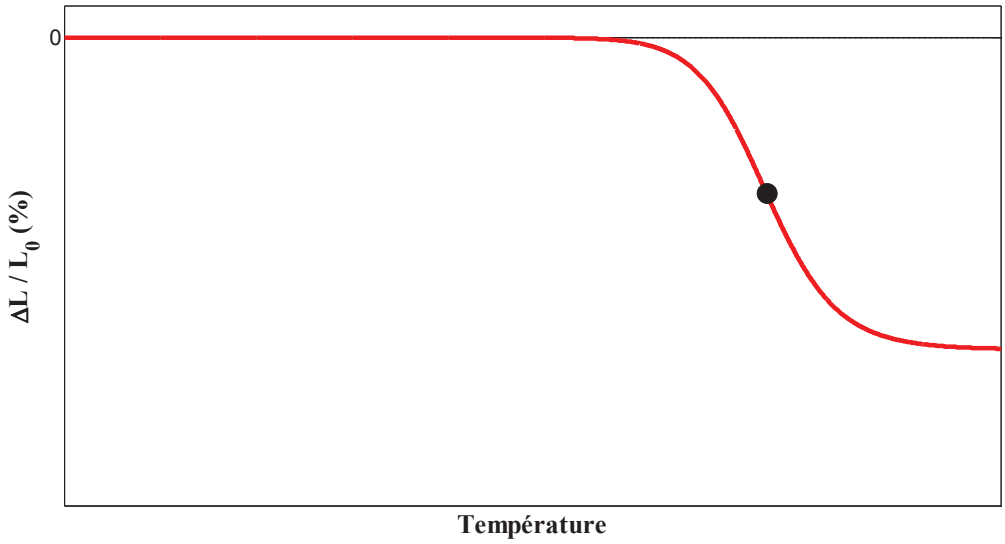


Figure 5. Allure standard d'une courbe retrait-température pour une céramique.

Le point d'inflexion de la courbe, qui correspond au minimum de sa dérivée, représente la température minimale de frittage à considérer pour obtenir le maximum de retrait en un minimum de temps. C'est cette température qui est choisie comme référence pour les traitements thermiques.

Dans un second temps, il est possible de réaliser des paliers isothermes pour observer l'évolution retrait-temps à la température choisie. Ces courbes présentent un comportement asymptotique qui permet de déterminer le temps nécessaire pour obtenir le retrait maximal.

Ces deux analyses permettent d'optimiser le cycle de frittage pour obtenir la densification des matériaux dans les meilleures conditions.

I.6.2. Préparation des échantillons

La poudre est mise en forme par pressage isostatique à froid pour former des compacts cylindriques dont la densité relative est de l'ordre de 60%. Les échantillons sont rectifiés pour adapter les dimensions au porte-échantillons et pour présenter deux faces planes parallèles qui seront en contact avec la canne en alumine et la butée du porte-échantillon.

Pour limiter les interactions éventuelles entre les éléments du système et l'échantillon, des cales en alumine frittée sont disposées entre la canne et l'échantillon et entre la butée et l'échantillon.

I.6.3. Analyses

Deux types d'essais sont effectués :

- montée/descente en température jusqu'à une température déterminée pour évaluer le point d'inflexion de la courbe retrait-température ;
- montée/isotherme/descente pour évaluer l'évolution du retrait dans le temps à la température considérée.

Les vitesses de chauffe et de refroidissement sont fixées à 5°C/min, la charge initiale appliquée sur l'échantillon par la canne en alumine est fixée à 0,425 N, les durées pour les paliers isothermes sont d'au moins 6 heures.

I.6.4. Exploitation des résultats

La courbe retrait-température qui est obtenue par une table traçante est la seule donnée exploitable. Pour réaliser une analyse plus fine de la courbe, notamment lors de la recherche du point d'inflexion, les données sont numérisées afin de réaliser un traitement mathématique.

Un relevé est ainsi effectué pour traiter les données : un échantillonnage fin est réalisé sur la première partie de la courbe (avant le début du frittage) et l'échantillonnage est encore affiné ensuite. Les points relevés sont utilisés pour déterminer une courbe d'ajustement de type double sigmoïde définit par la relation suivante :

$$\left(\frac{\Delta L}{L_0}\right)_{fit} = \left(\frac{\Delta L}{L_0}\right)_{min} + \left[\left(\frac{\Delta L}{L_0}\right)_{max} - \left(\frac{\Delta L}{L_0}\right)_{min}\right] \times \left[\frac{p}{1+10^{n_1(T_1-T)}} + \frac{1-p}{1+10^{n_2(T_2-T)}}\right] \quad (5)$$

Pour déterminer la cohérence de la courbe d'ajustement, l'analyse de la variance est utilisée pour déterminer le coefficient de corrélation ajusté entre les variables mesurées et la courbe d'ajustement. Le coefficient de corrélation ajusté est corrigé en fonction des degrés de liberté ce qui permet de comparer des séries avec des nombres de variables différents (en comparaison avec le coefficient de corrélation standard).

La courbe d'ajustement est ensuite dérivée pour déterminer le(s) point(s) d'inflexion de la courbe de retrait et ainsi déterminer les températures minimales de frittage.

I.7. Analyse par diffraction des rayons X

I.7.1. Principe

L'appareil de diffraction des rayons X est un *X'Pert Pro MRD* de *PANalytical* utilisant la radiation Kα du cuivre (λ=15,4187 nm, doublet $K\alpha_1/K\alpha_2$ respectivement 15,40593/15,4442 nm) associé avec un filtre en nickel (réduction Kβ de 99%, Kα de 58%) fonctionnant sous une tension de 45 kV et un courant de 40 mA.

La radiocristallographie est basée sur l'interaction d'un rayonnement avec la matière : l'interaction du rayonnement incident avec le nuage électronique provoque l'émission d'un rayonnement de même fréquence par diffusion Rayleigh. Les rayonnements ainsi diffusés sont la source d'interférences constructives ou destructives. Les directions de l'espace particulières qui provoquent des interférences constructives donnant naissance à un pic de diffraction sont données par la relation de Bragg dans laquelle d est la distance entre deux plans réticulaires (distance interréticulaire), θ est l'angle d'incidence du rayonnement X, n l'ordre de diffraction et λ la longueur d'onde du rayonnement X :

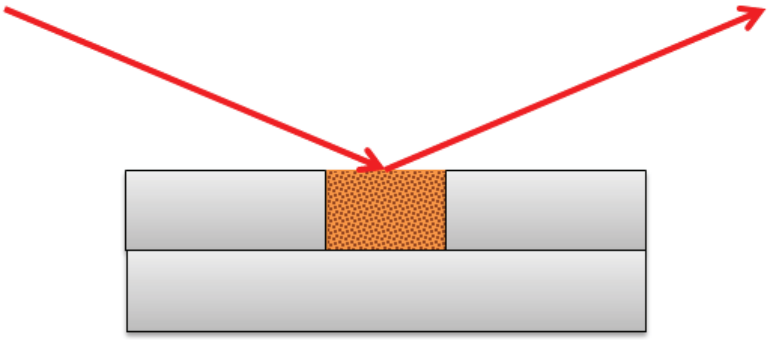
$$2d_{hkl} \times \sin\theta = n.\lambda \quad (6)$$

La diffraction des rayons X est principalement utilisée pour étudier des matériaux cristallisés mais la diffusion des matériaux amorphes est également une source d'informations notamment dans le cas des polymères partiellement cristallisés. La diffraction des rayons X permet de faire de l'analyse chimique, de l'analyse de texturation, de la mesure de contraintes résiduelles *et cetera*.

I.7.2. Préparation des échantillons

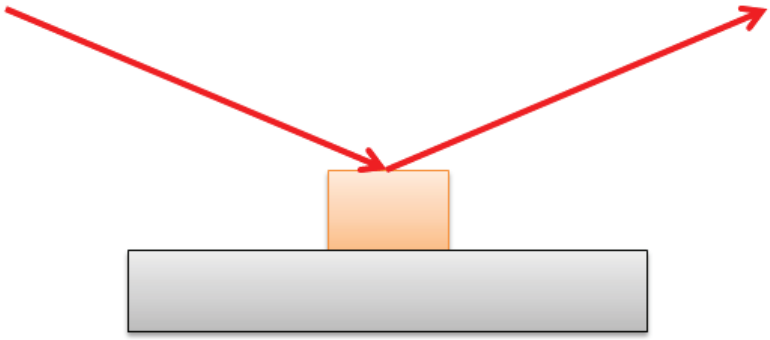
I.7.2.1. Poudres

La poudre à analyser est placée dans un porte-échantillons contenant une cavité cylindrique. Le porte échantillon est rempli de façon à laisser une surface d'analyse parfaitement plane. Pendant l'analyse, le porte-échantillons est mis en rotation pour augmenter la représentation statistique des plans cristallins analysés.



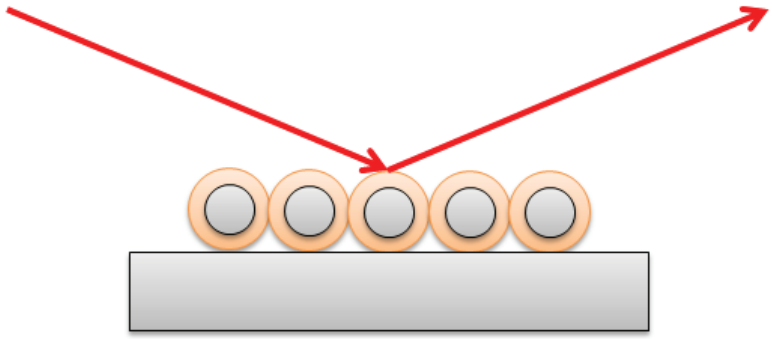
I.7.2.2. Massifs

Les massifs plans sont placés sur le porte-échantillons. L'altitude est réglée pour positionner la face supérieure de l'échantillon avec le point de focalisation du rayonnement incident.



I.7.2.3. Fibres

Le diamètre des fibres élaborées est trop petit pour permettre de focaliser le faisceau incident sur celles-ci. La majorité du rayonnement interagit avec le porte échantillon et non avec la fibre. Plusieurs fibres d'une même série sont alors juxtaposées pour augmenter la surface effective d'analyse. La courbure de la surface analysée provoque par ailleurs un élargissement des pics de diffraction.



I.7.3. Indexation

Les diffractogrammes obtenus après analyse sont comparés aux diffractogrammes de produits de référence appartenant à la base de données *Powder Diffraction File* (PDF) de l'*International Center for Diffraction Data* (ICDD) :

- deux phases PLZT : 10/65/35 et 10/30/70. La poudre synthétisée (7/60/40) ne figurant pas dans la base de données, le composé présentant la composition la plus proche (10/65/35) est pris comme référence. Le second composé 10/30/70 permet de vérifier que le zirconate de plomb rhomboédrique est bien majoritaire.
- l'oxyde de plomb sous sa forme litharge et massicot. L'oxyde de plomb introduit en excès lors de l'élaboration de la poudre peut être encore présent à l'issue de la calcination si celle-ci n'a pas lieu à une température assez élevée ou en un temps trop court.
- une phase PZT cristallisée dans le système pyrochlore ($A_2B_2O_7$) qui ne possède pas de propriétés piézoélectriques. Il faut donc veiller à ce que les conditions de traitement thermique ne permettent pas au réseau oxygène de s'organiser dans ce système irréversible.
- le zirconate de plomb (rhomboédrique) et le titanate de plomb (quadratique). La composition choisie est morphotropique. La détection singulière de l'une de ces deux phases peut indiquer une mauvaise cristallisation ou un défaut de l'une des espèces chimiques. Néanmoins, le zirconate de plomb étant majoritaire dans la composition considérée, l'algorithme d'indexation fait parfois ressortir le zirconate de plomb.
- la zircone yttriée : les media en zircone utilisés lors du broyage peuvent être responsable d'une pollution si le processus de broyage est prolongé.
- le porte-échantillons : lorsque les dimensions de l'échantillon à analyser ne permettent pas de focaliser suffisamment le faisceau, la détection du porte-échantillons vient modifier le diffractogramme, notamment dans le cas des fibres.

La Figure 6 présente le diffractogramme-X du porte-échantillons dont la contribution modifie l'analyse du système pérovskite des PZT dans la région $2\theta \in [40° ; 50°]$.

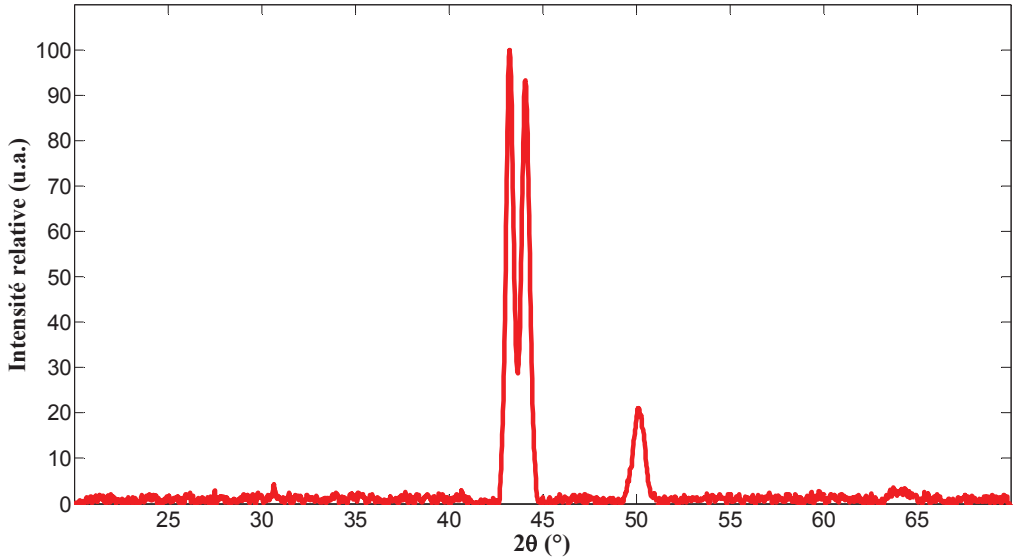


Figure 6. Contribution du porte-échantillons dans l'analyse des échantillons.

I.8. Microscopie électronique à balayage

I.8.1. Principe

Le modèle de microscope électronique à balayage utilisé est un *HITACHI S3500N* couplé à une sonde X-EDS pour l'analyse chimique.

Des électrons de hautes énergies (20 kV dans le cas présent) sont focalisés à la surface d'un échantillon. Les interactions de ceux-ci avec l'échantillon sont responsables de l'émission de différents rayonnements qui permettent d'accéder à différentes informations :

- les électrons rétrodiffusés sont issus du faisceau primaire et sont déviés par la présence des noyaux atomiques. Il garde ainsi une énergie importante ce qui conduit à de faibles résolutions. Par contre, étant sensible à la masse atomique, ils fournissent un contraste en fonction des éléments rencontrés : les éléments lourds apparaissent brillants et inversement pour les éléments plus légers.
- les électrons secondaires proviennent de l'interaction du faisceau incident avec le nuage électronique des atomes rencontrés. Le choc inélastique conduit à des électrons d'énergies plus faibles ce qui permet d'obtenir de meilleures résolutions.
- lorsque qu'un électron d'une couche interne est éjecté par l'interaction avec un électron incident, l'arrangement des couches électroniques provoque l'émission de rayons X. L'analyse de ces rayonnements (X-EDS) permet d'obtenir des informations sur la nature chimique de l'échantillon.

D'autres phénomènes d'interaction peuvent être utilisés comme l'émission d'électrons Auger, la création de paires électrons-trous *et cetera*.

I.8.2. Préparation des échantillons et type d'analyse

Les échantillons massifs sont généralement fracturés pour observer leur microstructure en électrons rétrodiffusés sous vide partiel. Parfois, les échantillons sont métallisés à l'or par évaporation pour obtenir des images de meilleures qualités, notamment dans le cas des essais sur les additifs de frittage.

Les fibres sont également analysées sous vide partiel avec les électrons rétrodiffusés pour la mesure de leur diamètre. Ceci permet d'éviter de les métalliser pour les caractérisations ultérieures. Lorsque des fractures de dépôts sont réalisées, les sections sont métallisées avant observation.

I.9. Microscopie confocale

I.9.1. Principe

Le modèle de microscope confocal utilisé est *Leica DCM 3D*. Le microscope confocal est un microscope optique qui fonctionne avec un laser et un filtre pour récupérer uniquement les photons passant par le plan focal. En déplaçant l'altitude du plan focal, il est possible de réaliser des sections de l'objet analysé et d'en reconstruire le profil tridimensionnel en superposant les différentes sections.

La microscopie confocale est utilisé pour la profilométrie, la topographie, en biologie *et cetera*.

I.9.2. Procédure utilisée pour l'observation des fibres

Il y a trois zones analysées par fibre, chacune d'elle représentant une longueur d'environ 1 mm (au grossissement ×10) ou 0,5 mm (au grossissement ×20). La première zone est située à 10 mm de la partie non revêtue. Les zones suivantes sont espacées de 10 mm, ainsi la seconde zone est proche du milieu de la fibre et la dernière zone est proche de l'extrémité de la fibre.

Sur chaque zone observée Z_i, 3 profils P_i sont extraits pour la détermination du rayon. Ils sont respectivement mesurés à 25, 50 et 75% de la longueur analysée.

La Figure 7 reprend ces différentes informations.

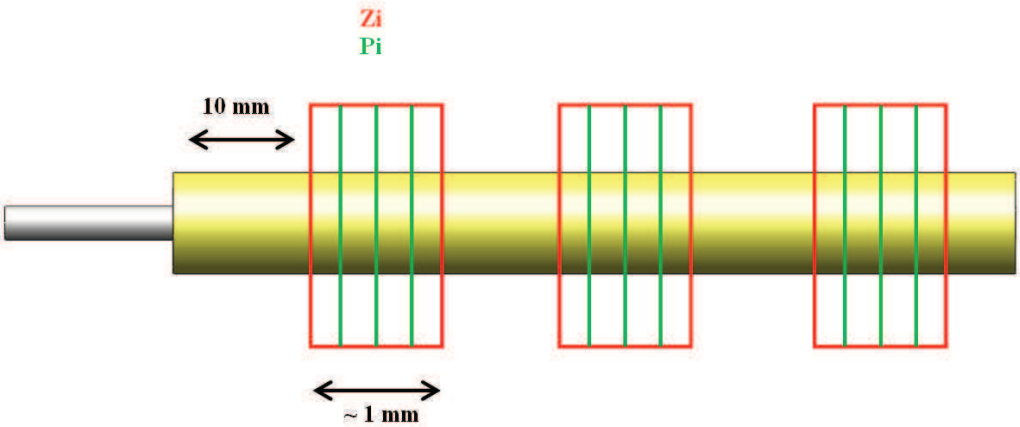


Figure 7. Schéma d'analyse d'une fibre en microscopie confocale.

I.9.3. Traitement des images

En fonction des dimensions de la fibre, l'image obtenue est plus ou moins bruitée sur les zones adjacentes à la fibre, comme le montre la Figure 8.

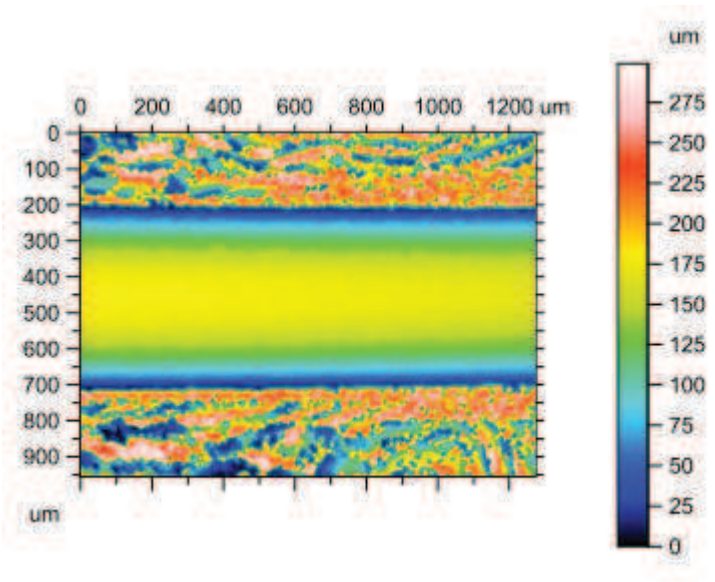


Figure 8. Image brute reconstituée en microscopie confocale.

Une retouche de ces zones bruitées est alors effectuée pour leur attribuer l'altitude mesurée en extrémité de fibre. Le résultat obtenu est présenté sur la Figure 9.

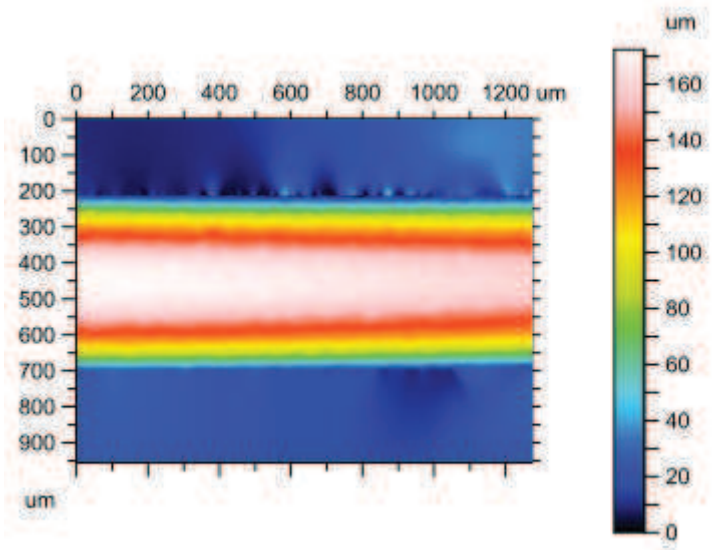


Figure 9. Réduction du bruit sur les zones extérieures de l'image obtenue en microscopie confocale.

L'échantillon analysé peut présenter une certaine inclinaison qui peut être corrigée par un algorithme mathématique qui détermine un plan moyen sur des points de même altitude et en détermine ainsi l'inclinaison. Le résultat final est présenté sur la Figure 10.

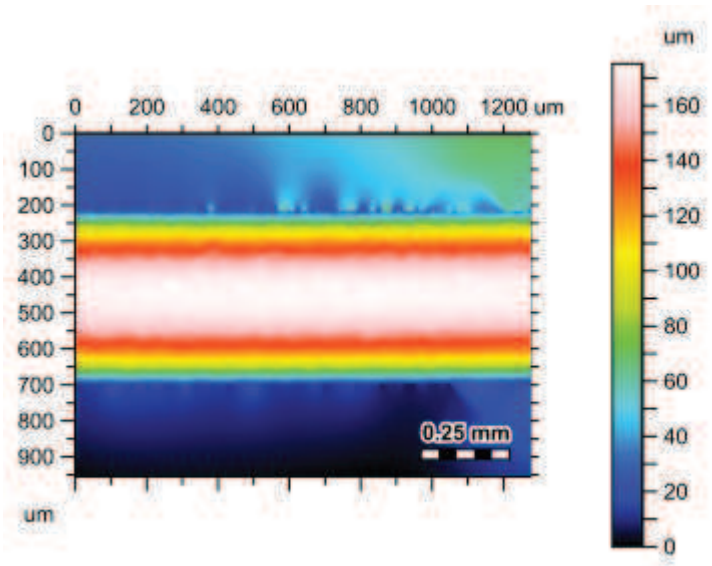


Figure 10. Redressement d'une image en microscopie confocale.

Les altitudes des zones adjacentes aux fibres pouvant être fortement modifiée par le traitement de l'image, elles ne sont pas prises en compte lors de l'extraction des profils 2D.

I.9.4. Traitement des données

Après avoir amélioré l'image, les profils 2D peuvent être extraits, comme présenté sur la Figure 11. Les profils forment ainsi des portions de cercle. La détermination du rayon de ce cercle permet de remonter à l'épaisseur du dépôt connaissant le rayon de l'âme centrale.

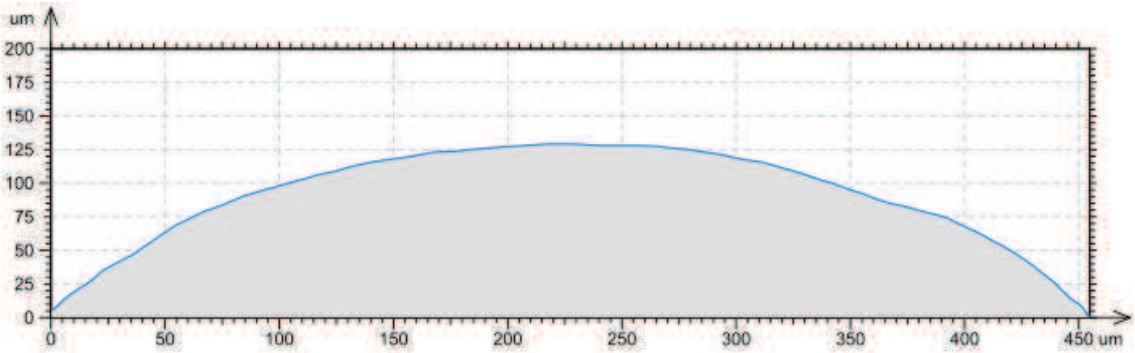


Figure 11. Profil 2D extrait après traitement de l'image obtenue en microscopie confocale.

La détermination du rayon se fait par ajustement non linéaire. La méthode des moindres carrés est utilisée pour déterminer les coefficients (rayon et coordonnées du centre du cercle) de la courbe d'ajustement suivante :

$$z(y) = z_0 + \sqrt{r^2 - {y_0}^2 + 2y_0 z - z^2} \qquad (7)$$

Un traitement statistique de l'analyse de la variance permet d'évaluer la corrélation entre la courbe d'ajustement et les données mesurées. Un exemple de résultat est donné sur la Figure 12.

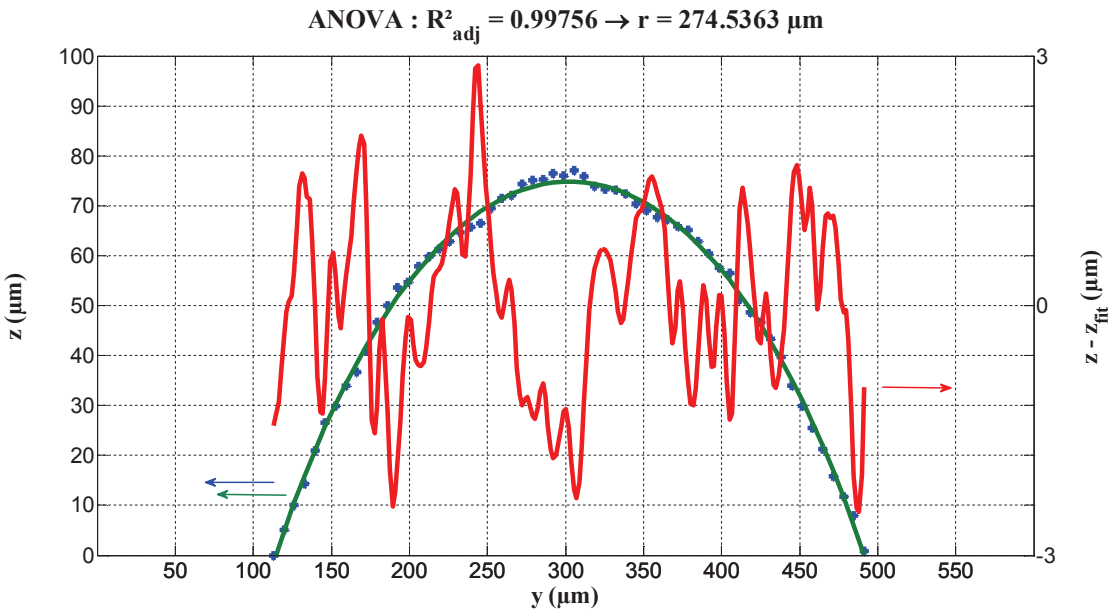


Figure 12. Profil 2D mesuré en microscopie confocale, courbe d'ajustement et erreur absolue pour la détermination du rayon.

I.10. Mesure des cycles d'hystérésis

I.10.1. Principe

Les cycles d'hystérésis sont mesurés à l'aide d'équipements de *Radiant Technology* : générateur haute tension de précision (0-100V et 0-4000V), système d'acquisition et logiciel *Vision*.

Le principe de la mesure est basé sur l'utilisation d'un circuit de type Sawyer-Tower illustré sur la Figure 13. En utilisant un échantillon isolant dont la géométrie présente deux surfaces parallèles conductrices et mis en série avec un condensateur de capacité parfaitement connue C_0 (généralement de capacité 100 à 1000 fois supérieure), l'évolution de la tension aux bornes du condensateur, image de la polarisation de l'échantillon, peut être suivie.

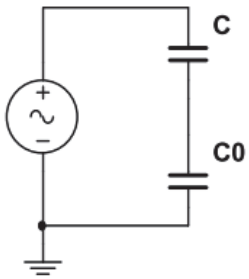


Figure 13. Schéma de principe du circuit de Sawyer-Tower.

En effet, en utilisant les relations ci-dessous, on peut remonter à la polarisation et visualiser le cycle d'hystérésis en suivant l'évolution de la tension aux bornes du condensateur en fonction de la tension appliquée :

$$P = \frac{Q}{S} \qquad \text{et} \qquad i(t) = \dot{Q} \qquad (8)$$

Il est important de noter que les cycles d'hystérésis ferroélectriques mesurés dépendent de la température et de la fréquence.

I.10.2. Mesures

I.10.2.1. Echantillons massifs

Les échantillons élaborés, d'épaisseurs de 0,5 à 1 mm, sont placés entre deux électrodes pour l'application des tensions. La Figure 14 présente un schéma du dispositif.

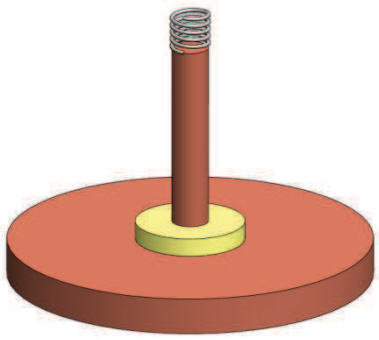


Figure 14. Schéma de principe des électrodes pour la mesure des cycles d'hystérésis sur massifs.

L'électrode supérieure, de faible diamètre, est mise en contact avec l'échantillon par l'intermédiaire d'un ressort qui applique donc une contrainte sur l'échantillon. Sur les échantillons peu densifiés ou très fin, ce système conduit souvent à la rupture des échantillons, notamment dans le cas des bandes PZT.

Le système est plongé dans de l'huile de silicone isolante. Pour la mesure des cycles d'hystérésis, les tensions sont appliquées sur plusieurs cycles avec plusieurs variables :

- l'amplitude de la tension sinusoïdale ;
- la fréquence de la tension sinusoïdale ;
- le délai entre deux cycles de mesure.

La fréquence de mesure est déterminante sur les résultats obtenus. Les basses fréquences favorisent des niveaux de polarisation élevés mais peuvent faire intervenir des phénomènes secondaires responsables de la modification de la forme et de la symétrie des cycles d'hystérésis. Par exemple, dans le cas des fibres (à cause de leur géométrie ou quand les épaisseurs sont faibles) ou des échantillons avec additifs (présence de phases non piézoélectriques), la fréquence de mesure a tendance à être augmentée (10~100 Hz) pour conserver des cycles d'hystérésis de formes carrées alors que des fréquences de 1 Hz sont suffisantes sur des échantillons massifs frittés dans des conditions standards.

Généralement, les tensions appliquées sont telles que les champs électriques appliqués maximaux sont de l'ordre de 4 kV/mm.

I.10.2.2. Fibres

Dans le cas des fibres, des fils sont reliés aux électrodes (fil de platine nu et dépôt métallisé à l'argent). Les fibres sont placées dans de l'huile de silicone isolante et une masse de quelques dizaines de grammes est appliquée sur la zone où le dépôt métallisé est relié au fil pour assurer le contact électrique.

Les fibres sont d'abord reliées au générateur basses tensions (0-100 V) avant de passer au générateur hautes tensions (0-4000 V). Autant que faire se peut, les mêmes paramètres de mesure sont utilisés pour les fibres et les massifs.

I.11. Caractérisations électriques

I.11.1. Méthode de la résonance

A la résonance, un élément piézoélectrique peut être modélisé par un circuit équivalent présentant deux branches (Figure 15), représentatives du modèle de Butterworth-Van Dyke [JORDAN 2001]. L'une d'entre elles représente la partie mécanique : elle se compose d'une inductance, d'une capacité et d'une résistance, images respectives de la masse, de la compliance élastique et de l'amortissement mécanique. L'autre branche représente la capacité en absence de déformation mécanique.

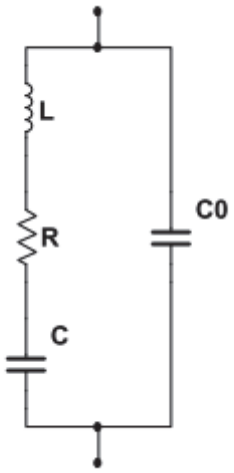


Figure 15. Schéma équivalent d'une céramique piézoélectrique proche de sa fréquence de résonance

En considérant les notations complexes, les impédances de ces deux branches s'expriment par :

$$Z_{(C_0)} = \frac{1}{j\omega C_0} \qquad (9)$$

$$Z_{(LRC)} = R + j\omega L + \frac{1}{j\omega C} \qquad (10)$$

Le calcul de l'impédance équivalente de ce montage mène alors à l'expression suivante :

$$Z = \frac{Z_{(C_0)} \times Z_{(LRC)}}{Z_{(C_0)} + Z_{(LRC)}} = \frac{1}{j\omega C_0} \times \frac{R + j\omega L\left(1 - \frac{1}{\omega^2 LC}\right)}{R + j\omega L\left(1 - \frac{C + C_0}{\omega^2 LCC_0}\right)} \qquad (11)$$

Deux fréquences caractéristiques apparaissent alors dans cette expression:

- la résonance en série : $\omega_s = \frac{1}{\sqrt{LC}} = 2\pi f_s$
- la résonance en parallèle : $\omega_p = \sqrt{\frac{C+C_0}{LCC_0}} = 2\pi f_p$

Il existe en réalité quatre autres fréquences caractéristiques :

- f_r et f_a, fréquences de résonance et d'antirésonance ;
- f_m et f_n, fréquences au maximum et minimum d'impédances.

Toutes ces fréquences sont identifiées dans l'IEEE Standard 177 qui établit l'hypothèse que dans de nombreux cas comme les céramiques piézoélectriques $f_r = f_s = f_m$ et $f_a = f_p = f_n$ dès que le coefficient de couplage électromécanique et le facteur de qualité sont suffisamment élevés.

Les dispositifs comme les analyseurs d'impédances permettent de suivre l'évolution de l'impédance d'un échantillon en fonction de la fréquence et ceci permet de mesurer les fréquences de résonance et d'antirésonance sur des courbes caractéristiques présentées sur la Figure 16.

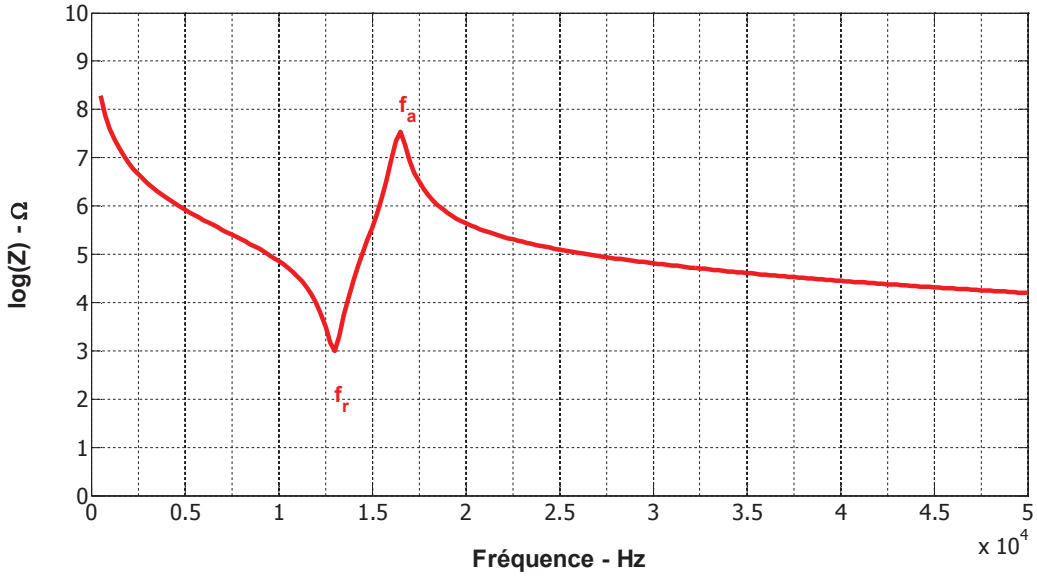


Figure 16. Evolution de l'impédance d'une céramique piézoélectrique proche de la résonance.

Pour des fréquences inférieures à f_r et supérieures à f_a, la céramique à un comportement capacitif alors que pour des fréquences comprises entre ces deux fréquences, le comportement est inductif [JAFFE 1971, JORDAN 2001].

Les géométries des échantillons sont relativement simples (disque, barreau, plaque) pour limiter la superposition de plusieurs modes de résonance. De plus, chaque géométrie permet de mesurer et de déduire certains paramètres relatifs à chaque mode de résonance étudié.

Ainsi, pour une pastille cylindrique de masse volumique ρ, de diamètre D et d'épaisseur e tels que $D/e > 10$, polarisée selon son épaisseur, il est possible d'effectuer (selon les appareils) la mesure directe de la capacité et des pertes diélectriques sous faibles voltages à une fréquence de 1 kHz [JAFFE 1961, JORDAN 2001]. Le relevé des fréquences de résonance et d'antirésonance ainsi que l'impédance à la résonance Z_m permet de calculer le facteur de qualité mécanique Q_M, les coefficients de couplage k_p et k_{31} et la compliance s_{11}^E [JAFFE 1961] en utilisant les formules suivantes :

$$\varepsilon_{33}^T = \frac{C^{1kHz} \times e}{\varepsilon_0 \times S} \qquad (12)$$

$$Q_M{}^{-1} = 2\pi f_r \times |Z_m| \times C^{1kHz} \times \left(1 - \frac{f_r{}^2}{f_a{}^2}\right) \qquad (13)$$

$$s_{11}^E = \left(\frac{\pi^2 D^2 f_r^2 \left(1 - \sigma^{E^2}\right) \times \rho}{\eta_1^2}\right)^{-1} \qquad (14)$$

$$k_{31}{}^2 = \left(\frac{1 - \sigma^E}{2}\right) \times k_p{}^2 \qquad (15)$$

$$\frac{k_p{}^2}{1 - k_p{}^2} = \frac{(1 - \sigma^E) J_1\left[\eta_1\left(1 + \frac{\Delta f}{f_a}\right)\right] - \eta_1\left(1 + \frac{\Delta f}{f_a}\right) J_0\left[\eta_1\left(1 + \frac{\Delta f}{f_a}\right)\right]}{(1 + \sigma^E) J_1\left[\eta_1\left(1 + \frac{\Delta f}{f_a}\right)\right]} \qquad (16)$$

avec
J_0 : fonction de Bessel de première espèce d'ordre 0 ;
J_1 : fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1 ;
η_1 : première racine positive de $(1 - \sigma^E) \times J_1(\eta) = \eta \times J_0(\eta)$ et
$\eta_1 \approx 1.861 + 0.624\sigma^E$

L'utilisation de cette dernière formule est relativement complexe car la résolution nécessite de résoudre une équation transcendante. Des éléments pour cette résolution et l'ajustement linéaire de la fonction $f(\sigma^E)$ sont donnés en Annexe II. Pour les matériaux qui vérifient $0{,}29 < \sigma^E < 0{,}33$, les valeurs de k_p peuvent être extraites de la courbe suivante (Figure 17) avec une précision de 1% [JAFFE 1971]. Le calcul montre par ailleurs que pour des valeurs de 0,20 à 0,40, l'erreur est toujours inférieure à 1% de la valeur à 0,30 (Figure 18).

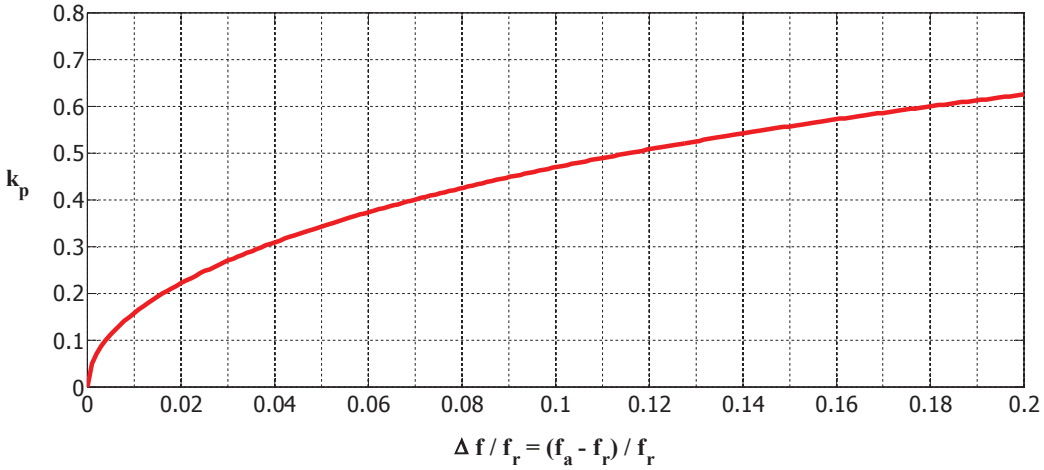


Figure 17. Coefficient de couplage plan pour un disque mince.

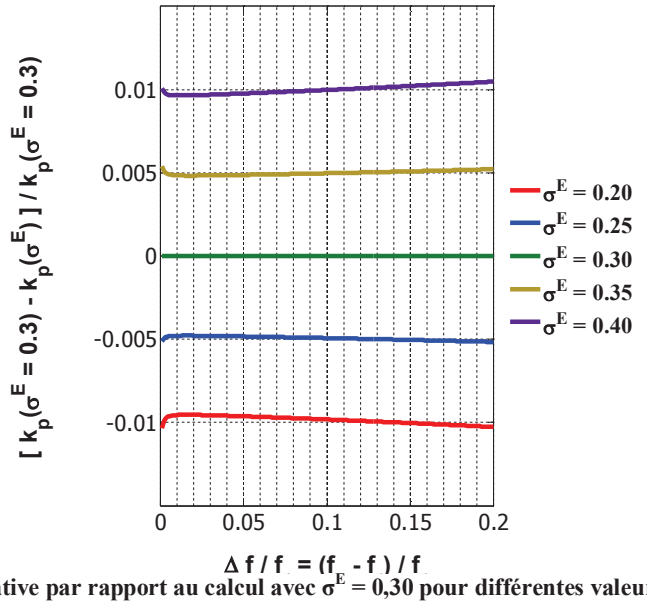


Figure 18. Erreur relative par rapport au calcul avec σ^E = 0,30 pour différentes valeurs de σ^E.

Du fait de l'erreur négligeable commise en fixant arbitrairement une valeur de σ^E, de nombreux modèles d'ajustement existent pour déterminer k_p en fonction des fréquences de résonance et d'antirésonance. Le Tableau 2 présente différents modèles existant avec l'incertitude associée pour de multiples cas de σ^E.

Tableau 2. Différentes expressions pour l'estimation du coefficient de couplage plan k_p.

Expression	Incertitude	Courbe
$k_p = \sqrt{1{,}2725 \times \frac{{f_a}^2 - {f_r}^2}{{f_a}^2}}$	±1.3%	—
$k_p = \sqrt{2{,}51 \times \frac{f_a - f_r}{f_a} - \left(\frac{f_a - f_r}{f_a}\right)^2}$	±1.2%	—
$k_p = \frac{1}{\sqrt{0{,}3951 \times \frac{f_r}{f_a - f_r} + 0{,}5828}}$	±1.0%	—

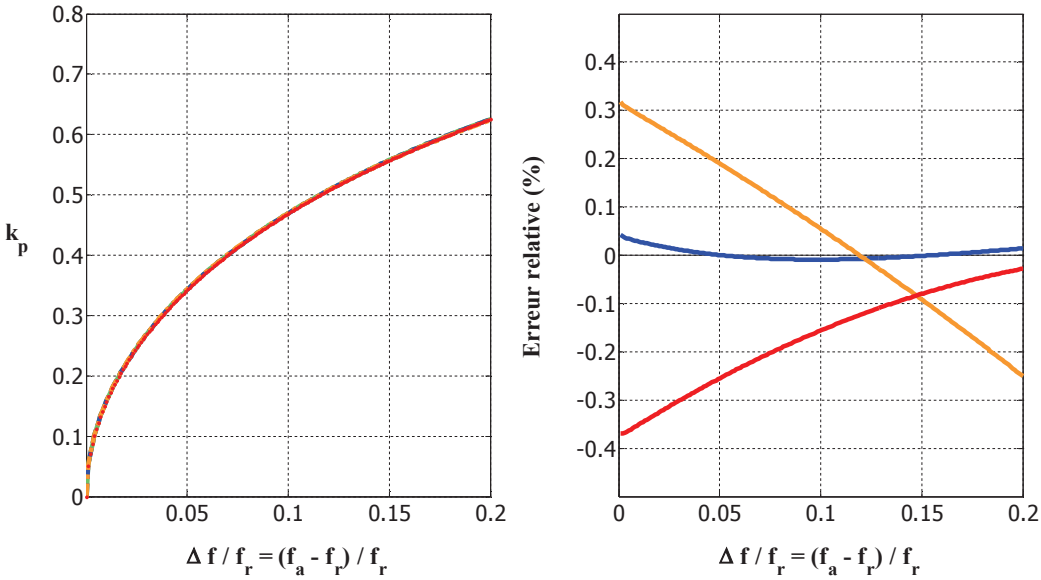


Figure 19. Courbes des différents modèles présentés pour la détermination de k_p et les erreurs associées par rapport à la résolution de l'équation complète (cas de $\sigma^E = 0{,}30$).

L'utilisation du dernier modèle d'ajustement permet ainsi d'obtenir des estimations très satisfaisantes du coefficient de couplage plan.

I.11.2. Méthode directe

Un appareil de type Berlincourt de *Piezotest*, modèle PM100, permet de mesurer directement le coefficient piézoélectrique d_{33} en appliquant une charge de 0,25 N à une fréquence de 110 Hz et en mesurant les charges créées par le matériau piézoélectrique. La Figure 20 présente un schéma du dispositif avec les mêmes électrodes pour appliquer la charge mécanique et mesurer les charges électriques. Cette configuration correspond au mode de fonctionnement 33. En modifiant le dispositif, il est possible d'appliquer la contrainte mécanique dans le plan perpendiculaire à la polarisation pour mesurer le coefficient piézoélectrique transverse (mode 31).

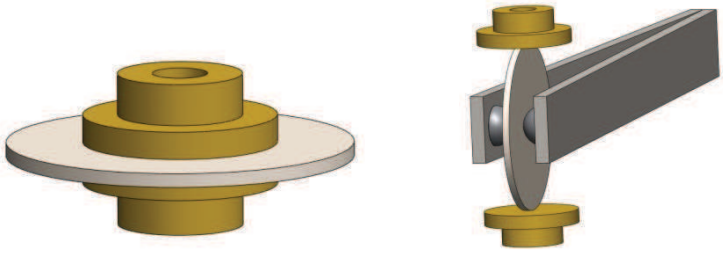


Figure 20. Schéma de principe de l'appareil de type Berlincourt pour la mesure directe des coefficients piézoélectriques d_{33} (à gauche) et d_{31} (à droite).

Annexe II RESOLUTION DE L'EQUATION TRANSCENDANTE POUR LA DETERMINATION DU COEFFICIENT DE COUPLAGE PLAN

Les équations transcendantes font intervenir des fonctions dites transcendantes, c'est-à-dire non algébrique. Leur résolution fait appel à des moyens graphiques ou numériques. Des éléments sont ainsi donnés pour la résolution de l'équation 17 qui intervient dans la résolution du coefficient de couplage plan k_p.

$$(1-\sigma^E)\times J_1(\eta)=\eta\times J_0(\eta) \qquad (17)$$

II.1. Méthode graphique

La méthode la plus intuitive consiste à considérer les deux membres de l'équation indépendamment. Soit deux fonctions $f(\eta)$ et $g(\eta)$ définies comme :

$$f(\eta)=\frac{(1-\sigma^E)}{\eta} \qquad g(\eta)=\frac{J_0(\eta)}{J_1(\eta)} \qquad (18)$$

La recherche de la première racine positive de l'équation 17 revient alors à déterminer la première intersection des fonctions f et g. Les courbes représentatives de ces deux fonctions sont présentées sur la Figure 21.

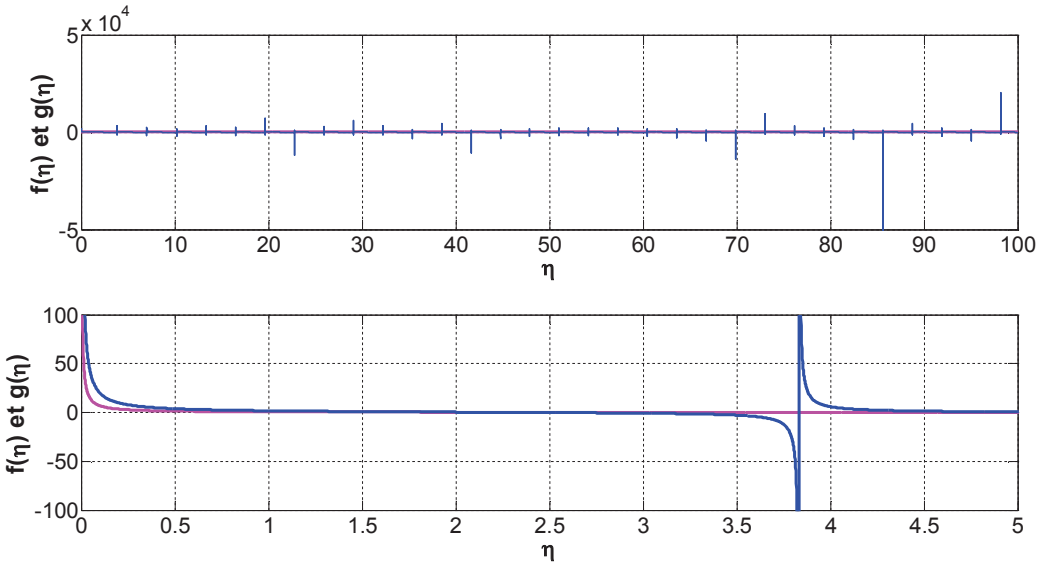


Figure 21. Résolution graphique de l'équation transcendante.

Le problème vient de l'intervalle de définition de ces deux fonctions : sur un intervalle large, il semble qu'il y ait de nombreuses valeurs possibles. Un intervalle restreint permet d'observer que la première racine positive est autour de 2,0 mais l'on constate que la recherche graphique est relativement arbitraire. Les méthodes numériques permettent d'affiner et d'automatiser la recherche des racines de ce type d'équation.

II.2. Méthode numérique

Les méthodes numériques sont utilisées ici pour déterminer les racines d'une fonction réelle, linéaire ou non, d'une variable réelle. L'équation 17 peut se mettre sous la forme :

$$h(\eta) = \eta \times \frac{J_0(\eta)}{J_1(\eta)} - (1 - \sigma^E) = 0 \qquad (19)$$

La méthode Newton-Raphson permet de définir une suite récurrente qui converge rapidement vers la solution $h(\eta) = 0$ [JEDRZEJEWSKI 2005] :

$$\eta_{n+1} = \eta_n - \frac{h'(\eta)}{h(\eta)} \qquad (20)$$

L'itération s'arrête lorsque la différence entre deux pas consécutifs est inférieure à la précision souhaitée, c'est-à-dire :

$$|\eta_{n+1} - \eta_n| < \varepsilon \qquad (21)$$

Cette méthode converge rapidement vers l'unique solution de l'équation 19 en définissant une valeur initiale η_0, proche de la racine recherchée. Des problèmes peuvent ainsi apparaître lorsque la valeur initiale est éloignée de la valeur recherchée ou lorsque la fonction n'est pas dérivable sur tout son ensemble de définition.

En appliquant cet algorithme avec comme valeur initiale celle approchée par la méthode graphique ($\eta_0 = 2$), on obtient les valeurs de la Figure 22.

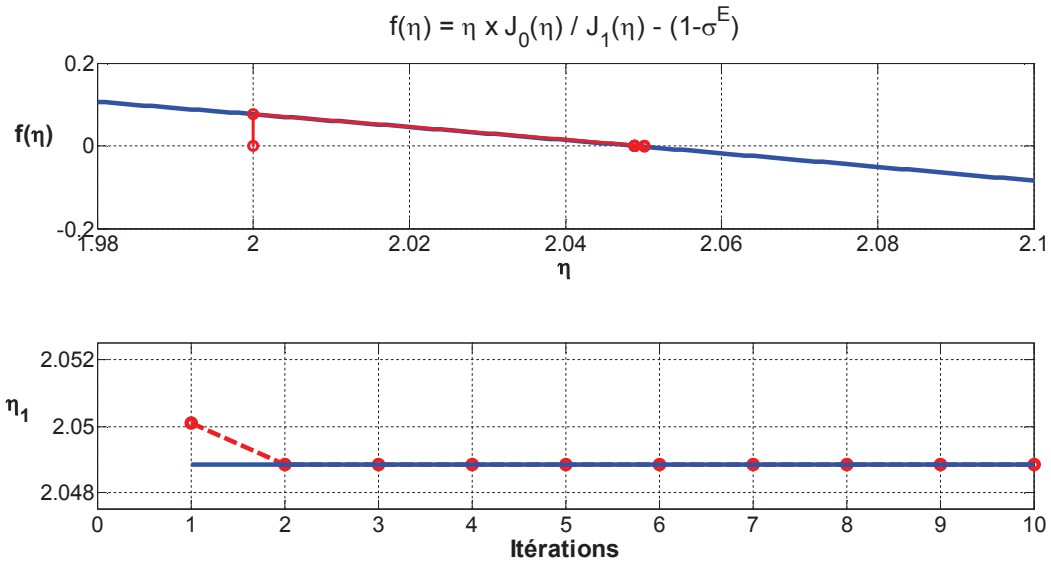


Figure 22. Application de la méthode de Newton-Raphson pour la détermination de la première racine positive de l'équation 19.

La suite converge en 5 itérations vers la valeur 2,048850203642126 pour un critère de convergence de 10^{-15}.

Pour illustrer le problème posé par la définition de la valeur initiale η_0 qui n'est pas connue *a priori*, l'algorithme est appliqué une nouvelle fois avec $\eta_0 = 4$, soit après la première discontinuité (Figure 21). Cette fois, la suite converge en 7 itérations vers la valeur

5,389364436894052 avec le même critère de convergence. Cette valeur ne correspond pas à la première racine de l'équation 19.

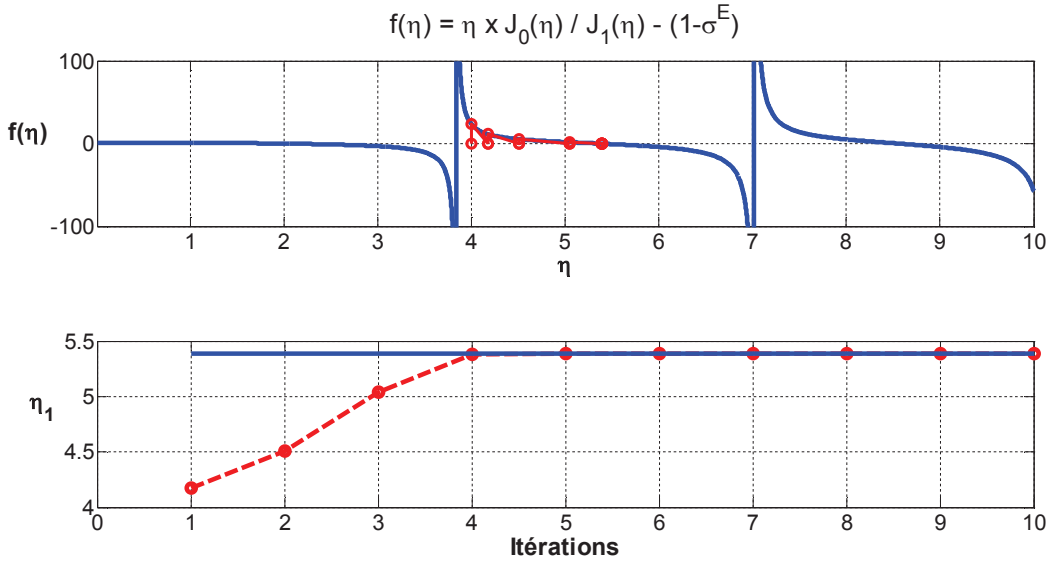


Figure 23. Résolution de l'équation 9 par la méthode de Newton-Raphson avec un "mauvais" paramétrage de la valeur initiale.

Cet algorithme étant fortement dépendant de l'initialisation de la suite, d'autres algorithmes peuvent être utilisé comme ceux basés sur les *trust-regions* ou encore l'algorithme de Levenberg-Marquardt.

L'équation 19 a ainsi été résolue avec ce type d'algorithme dans l'intervalle $\sigma^E \in [0{,}2\ ;0{,}4]$ et donne accès aux résultats de la Figure 24.

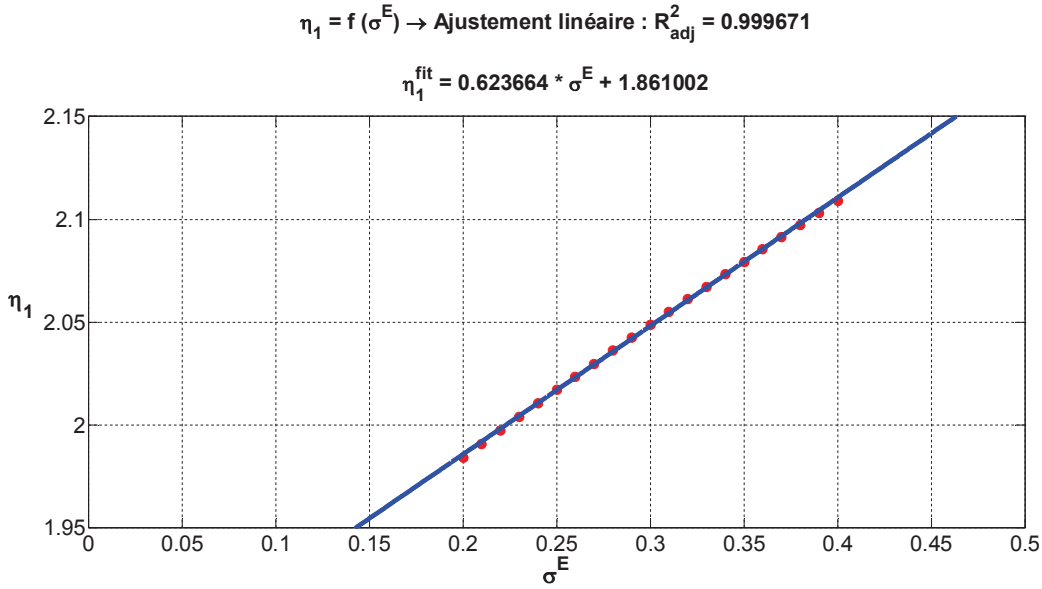


Figure 24. Résolution de l'équation pour des valeurs de σ^E comprise entre 0,2 et 0,4.

L'ajustement linéaire montre une bonne corrélation. Les valeurs des coefficients peuvent être plus précisément déterminées en augmentant la discrétisation de l'intervalle de σ^E. En multipliant par 1000 le nombre de valeurs dans cet intervalle, on obtient finalement :

$$\eta_1 \approx 1{,}861083 + 0{,}623620 \times \sigma^E \qquad R^2_{adj} = 0{,}999714$$

Bibliographie

Brunauer S. Emmet P.H. Teller E. (1938) *Adsorption of gases in multimolecular layers*. Journal of the American Chemical Society, **60** (2), 309‑319.

Jaffe B. Cook W.R. Jaffe H. (1971) *Piezoelectric ceramics*. Academic Press.

Jaffe H. Berlincourt D. Kinsley T. Lambert T.M. Schwartz D. (1961) *IRE Standards on Piezoelectric Crystals: Measurements of Piezoelectric Ceramics*. Proceedings of the IRE, **49** (7), 1161‑1169.

Jedrzejewski F. (2005) *Introduction aux méthodes numériques*. Springer, Paris; New York.

Jordan T.L. Ounaies Z. (2001) *Piezoelectric ceramics characterization*. Institute for Computer Applications in Science and Engineering (ICASE).

Pickett G. (1945) *Modification of the Brunauer-Emmett-Teller theory of multimolecular adsorption*. Journal of the American Chemical Society, **67** (11), 1958‑1962.

Tanaka M. Girard G. Davis R. Peuto A. Bignell N. (2001) *Recommended table for the density of water between 0°C and 40°C based on recent experimental reports*. Metrologia, **38** (4), 301‑309.

Résumé : pour les applications aéronautiques, les fibres en céramique piézoélectrique à âme métallique permettent d'imaginer des solutions pour avoir des dispositifs actifs et des capteurs complétement intégrés dans des structures, telles que les composites renforcés par des fibres.

La démarche de cette étude est d'élaborer et de caractériser de telles fibres qui présentent de nombreux avantages : l'activation en mode radial permet d'utiliser de faibles tensions de commandes, l'utilisation d'un cœur et d'une matrice conducteurs permet de s'affranchir du dépôt d'électrodes et de garantir leur continuité, la présence d'un cœur métallique améliore la résistance mécanique de la fibre, l'utilisation sous forme de fibres fines et longues permet de l'intégrer à des profils de formes complexes sur de grandes longueurs.

Dans un premier temps, le procédé d'enduction est utilisé pour la réalisation de ces fibres en déposant des particules céramiques à base de titano-zirconate de plomb (PZT) sur des fils de platine. Le développement et l'optimisation d'un procédé multicouche permet de réaliser des fibres avec des épaisseurs parfaitement contrôlées pour obtenir les capacités de déformations optimales en alternant des cycles dépôt/traitement thermique avant une opération de frittage finale. La caractérisation d'échantillons massifs traités dans les mêmes conditions permet de s'assurer des propriétés piézoélectriques atteintes pendant les différents traitements thermiques. Les caractérisations électromécaniques réalisées sur les fibres permettent de vérifier le comportement en tant qu'actionneur et que capteur, bien qu'il s'avère difficile de remonter aux caractéristiques intrinsèques des fibres.

Dans un second temps, une réflexion est menée sur les moyens à mettre en œuvre pour envisager un développement à grande échelle de ce type de fibre. Dans ce sens, des expérimentations sur la mise en place du procédé continu de coextrusion avec un polymère chargé sont menées, de même que sur la réduction de la température de frittage à l'aide d'additifs pour substituer les fils en platine, mais aussi sur la réduction du temps de frittage à l'aide de techniques non conventionnelles comme le frittage laser et le frittage micro-ondes. Ces investigations ouvrent des pistes sérieuses pour imaginer une production continue de fibres piézoélectriques à âme métallique.

Enfin, des travaux de modélisation par éléments finis du comportement de ces fibres, intégrées ou non dans une structure, permettent de mettre en évidence l'influence du dimensionnement des fibres sur les déformations résultantes, en fonction notamment de l'épaisseur du matériau actif déposée et des propriétés élastiques des différents éléments. Différentes configurations sont imaginées pour utiliser ces fibres dans des structures en tant qu'actionneur et capteur.

Mots-clés : PZT, fibres, piézoélectricité, MEF, actionneur, capteur, enduction, multicouche, frittage, frittage laser, frittage micro-ondes, additifs de frittage.

Abstract: metal core piezoelectric fibres are suitable for active devices and sensors fully embedded in structures as fibres reinforced polymers for aeronautic applications.

The aim of this study is to develop and characterize such fibres that have many advantages: radial mode activation allows the use of low voltage control, the use of a core and a conductive matrix eliminates the deposition of electrodes and the necessity to maintain their continuity, the presence of a metal core improves the mechanical strength of the fibre, the use of thin and long fibres permits their integration in profiles with complex shapes over long distances.

In a first step, a dip-coating process is used to realize such fibres by depositing ceramic particles based on lead zirconium titanate (PZT) on platinum wire. The development and optimization of a multilayer process, by alternating deposition cycles / heat treatment prior to the final sintering step, lead to the production of fibres with perfectly controlled thickness in order to obtain optimal strain capability. Characterization of bulk samples under the same thermal conditions allows to measure equivalent piezoelectric properties as fibres submitted to the same heat treatments. Electromechanical characterizations performed on the fibres confirm their behaviour as actuator and sensor, although it is still difficult to determine the effective piezoelectric properties of the fibres.

In a second step, the possibility to develop a large-scale production of this type of fibre is investigated. In this regard, experiments are carried on coextrusion process with a PZT loaded polymer, as well as the reduction of the sintering temperature by using additives to replace the platinum core. In addition, reducing the sintering time using unconventional techniques such as laser sintering and microwave sintering are investigated. It is then open serious leads to imagine a continuous production of metal core piezoelectric fibres.

Finally, a finite element modelling approach of the behaviour of these fibres, integrated or not in a structure, allows to highlight the influence of fibre sizing on the resulting strains, in particular according to the thickness of the active deposited material and elastic properties of the individual elements (metal core, matrix). Different configurations are analysed to use these fibres in structures as actuator and sensor.

Key-words: PZT, fibres, piezoelectricity, FEM, actuator, sensor, dip-coating, multilayer, sintering, laser sintering, microwaves sintering, sintering aids.