



**HAL**  
open science

## Caractérisation expérimentale des propriétés physiques et mécaniques de FGPM Ni/BaTiO<sub>3</sub>

Baraa Saidani, Julie Cedelle, Johann Petit, Damien Bregiroux, Jihed Zghal,  
Isabelle Bruant

### ► To cite this version:

Baraa Saidani, Julie Cedelle, Johann Petit, Damien Bregiroux, Jihed Zghal, et al.. Caractérisation expérimentale des propriétés physiques et mécaniques de FGPM Ni/BaTiO<sub>3</sub>. 25ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2022, Nantes, France. hal-03768978

**HAL Id: hal-03768978**

**<https://hal.science/hal-03768978>**

Submitted on 5 Sep 2022

**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.

# Caractérisation expérimentale des propriétés physiques et mécaniques de FGPM Ni/BaTiO<sub>3</sub>

**B. SAIDANI<sup>a</sup>, J. CEDELLE<sup>a</sup>, J. PETIT<sup>a</sup>,  
D. BREGIROUX<sup>b</sup>, J. ZGHAL<sup>a\*</sup>, I. BRUANT<sup>a\*</sup>.**

**a.** LEME Laboratoire Energétique Mécanique et Electromagnétisme, Université Paris Nanterre  
50 rue de Sèvres Ville d'Avray

**b.** LCMCP Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris, Sorbonne Université 4  
place Jussieu 75005 Paris

(\* auteurs correspondants : [jzghal@parisnanterre.fr](mailto:jzghal@parisnanterre.fr); [isabelle.bruant@parisnanterre.fr](mailto:isabelle.bruant@parisnanterre.fr) )

## Résumé :

Cette étude porte sur la caractérisation expérimentale des propriétés physiques et mécaniques de matériaux FGM<sup>1</sup>/FGPM<sup>2</sup>. Ces matériaux présentent une variation contrôlée des propriétés au niveau de l'épaisseur. Des échantillons Ni/BaTiO<sub>3</sub> ont ainsi été élaborés par la technique originale de frittage SPS. La variation de la conductivité thermique dans l'épaisseur a été déterminée à l'aide de la méthode de la source plane transitoire. Cependant, la petite taille des échantillons ne permet pas d'utiliser les techniques standard pour mesurer les constantes élastiques. Un protocole alternatif basé sur l'utilisation des ondes ultrasons est donc proposé pour palier à cette difficulté.

## Abstract:

This study focuses on the experimental characterization of the physical and mechanical properties of FGM/FGPM. These materials present a controlled variation of the properties at the thickness level. Ni/BaTiO<sub>3</sub> samples have been developed by the SPS sintering technique. The variation of thermal conductivity across the thickness was determined using the transient planar source method. However, the small size of the samples does not allow the use of standard techniques to measure the elastic constants. An alternative protocol based on the use of ultrasonic waves has been proposed to overcome this difficulty.

**Mots clefs : FGM, FGPM, caractérisation des propriétés thermique et mécaniques**

## 1 Introduction

Depuis quelques années, de nouveaux matériaux composites, appelés FGM (Functionally Graded materials) sont apparus, initialement pour traiter des problèmes thermiques. Leur particularité est d'avoir leurs propriétés qui varient continûment selon une ou plusieurs directions. Ils consistent en l'association de deux matériaux (souvent céramique et métallique) aux propriétés structurales et fonctionnelles différentes avec une transition idéalement continue de celles-ci [1]. Ils ont été étendus depuis peu aux matériaux piézoélectriques. Appelés FGPM (Functionally Graded Piezoelectric Materials), ils ont pour

---

<sup>1</sup> FGM : Functionally Graded Material

<sup>2</sup> FGPM : Functionally Graded Piezoelectric Material

but d'améliorer les capacités de récupération d'énergie ou de contrôle actif des vibrations en remplaçant les structures à base de matériaux classiques munies de pastilles piézoélectriques par un seul matériau FGPM structural. Les inconvénients des structures intelligentes classiques (multicouches engendrant un possible délaminage, décollement des pastilles, ...) sont réduits, voire disparaissent. Les travaux récemment menés au Laboratoire Energétique Mécanique et Electromagnétisme (LEME) ont montré l'intérêt et la pertinence de l'utilisation de ces matériaux en contrôle actif de vibrations [2], [3]. Cependant, les travaux effectués sur l'utilisation des FGPM sont actuellement principalement numériques. Ils sont incomplets (imparfaits) ou ils manquent de données notamment sur deux points. Le premier est la modélisation de la variation des coefficients élastiques, thermiques et piézoélectriques du FGPM en fonction de la composition et de la microstructure : la bibliographie est, à notre connaissance, quasi inexistante sur ce sujet. La grande majorité des articles traite de modélisation numérique, en considérant une loi des mélanges du type puissance ou exponentielle (sans justification physique précise). Le second est la fabrication du FGPM : actuellement, très peu d'articles traitent de la fabrication de FGPM. Ceux-ci sont, en général fabriqués comme des multicouches de piézoélectriques. Depuis trois ans, une étude sur l'élaboration d'un FGPM formé de Ni/BaTiO<sub>3</sub> est menée au LEME [4], en collaboration avec le Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris. Des échantillons de matériaux avec gradient (multicouches), de forme cylindrique d'une douzaine de mm de diamètre, et 5 mm d'épaisseur ont ainsi été fabriqués, à l'aide de la technique originale de frittage SPS (Spark Plasma Sintering). Les premiers travaux ont permis de caractériser, pour plusieurs teneurs différentes, la conductivité thermique et de proposer une loi d'homogénéisation basée sur une loi puissance dépendant de la fraction volumique. Ces résultats sont très encourageants, et une étude similaire pour les propriétés mécaniques est en cours d'étude. Cependant, la caractérisation des propriétés mécaniques est plus difficile à réaliser en raison de la taille des échantillons et des irrégularités géométriques de leurs contours. Une approche intéressante consiste à utiliser un dispositif ultrasons pour déterminer les propriétés élastiques comme le coefficient de Poisson et le module de Young. Notons que la caractérisation des propriétés piézoélectriques sera faite ultérieurement (elle nécessite la polarisation des échantillons).

L'objet de l'article est ainsi de présenter les travaux effectués sur la fabrication et la caractérisation des FGM : la technique d'élaboration des échantillons FGM, la mise en place et la validation du protocole expérimental non destructif pour la mesure des propriétés thermique et mécaniques et les premiers résultats de caractérisation-

## 2 Elaboration des échantillons

Les pastilles FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub> ont été élaborées par la technique de SPS (*Spark Plasma Sintering*) à partir de mélanges de deux poudres. La poudre céramique utilisée est du BaTiO<sub>3</sub> nanométrique ( $\phi_{\text{grain}} \leq 100\text{nm}$ ). La poudre métallique est du Nickel micrométrique ( $\phi_{\text{grain}} \leq 1\mu\text{m}$ ).

Le procédé de frittage SPS s'appuie sur des temps de traitement thermique très brefs par l'application simultanée de décharges de courant continu pulsé (1500 A) et d'une pression uni-axiale externe (Figure 1). Cette combinaison permet d'augmenter significativement les cinétiques de frittage, rendant possible la fabrication de matériaux nanostructurés et la possibilité d'obtenir des pièces complètement denses à des températures relativement basses. Les échantillons obtenus ont la forme de petites pastilles denses, de diamètre 10 ou 15 mm et d'épaisseur pouvant varier de 2.5 à 5 mm.

La Figure 2 représente un premier échantillon FGM d'une épaisseur de 3 mm fabriqué à partir de 5 couches de poudres superposées composées des mélanges suivants :

Couche 5		100% Ni
Couche 4	25% BaTiO <sub>3</sub>	– 75% Ni
Couche 3	50% BaTiO <sub>3</sub>	– 50% Ni
Couche 2	75% BaTiO <sub>3</sub>	– 25% Ni
Couche 1	100% BaTiO <sub>3</sub>	

Tableau 1 : Répartition des mélanges des poudres dans les 5 couches

L'observation au microscope (Figure 2) permet de voir qu'il est possible d'obtenir un matériau dense en des temps très courts et ainsi en limitant à la fois le grossissement des grains et l'inter-diffusion des différentes espèces chimiques. L'image obtenue par microscopie optique montre également qu'il n'y a pas de perte de cohésion aux interfaces ni de porosité (sauf pour la couche constituée par 100% BaTiO<sub>3</sub>). Pour évaluer l'évolution des propriétés physiques et mécaniques dans l'épaisseur, cinq échantillons avec des mélanges uniformes, correspondant aux différentes teneurs en Ni et BaTiO<sub>3</sub> précédemment décrites (Figure 3) ont été fabriqués par SPS [5]. Les poudres ont été ainsi frittées à 900°C pendant 1 min dans une matrice en graphite de diamètre 15 mm avec une pression appliquée constante de 17,7 kN. La vitesse de chauffage a été fixée à 50°C.min<sup>-1</sup>. Une vitesse de refroidissement de 90°C.min<sup>-1</sup>.

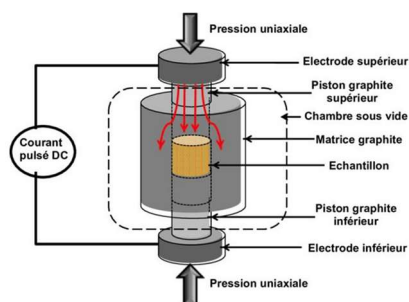


Figure 1 : Principe d'élaboration des échantillons par la technique SPS [5]

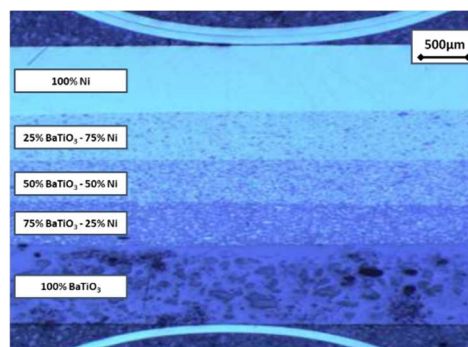


Figure 2 : Observation microscopie de la coupe transversale du FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub> [4]



Figure 3 : échantillons obtenus par SPS avec différentes proportions de mélange

### 3 Détermination de la conductivité thermique des FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub>

La détermination de la conductivité thermique a été effectuée selon les recommandations de la norme ISO 22007-2 :2015. Cette méthode est basée sur la méthode de la source plane transitoire développée par Gustafsson [6]. Pour ce faire une sonde Hot Disk TPS2500 est placée entre deux échantillons identiques. Pendant une durée de 10 s, la sonde fournit à la surface des échantillons une puissance électrique constante suffisamment élevée pour générer une augmentation de température de 0,5 K. Cette élévation de température de la surface est mesurée en fonction du temps. La sonde fonctionne comme un détecteur de température relié à une source de chaleur. La variation de température de la surface du capteur qui peut être déterminée par la mesure de la résistance, dépend fortement des propriétés de transport thermique du matériau. La conductivité thermique est obtenue ainsi à partir de l'analyse de la réponse en température de la surface des échantillons, pendant le chauffage. Afin de ne pas introduire une incertitude liée aux conditions aux limites radiatives et convectives à la surface de l'échantillon, le modèle et l'expérience se placent dans les conditions d'une géométrie semi-infinie. Cette hypothèse nécessite que des dimensions de l'échantillon doivent vérifier les contraintes de la norme. Dans notre cas les échantillons testés vérifient cette condition géométrique et sont donc considérés comme semi-infini. L'analyseur TPS 2500 commercialisé par la société Hot Disk a été utilisé. Les résultats préliminaires de la conductivité thermique  $k$ , mesurée pour chaque échantillon sont reportés dans le Tableau 2.

Couche	$k^{exp}$ [W/mK]	$k^{théo.}$ [W/mK]	Ecart de mesure <sup>3</sup>
1 (100% BaTiO <sub>3</sub> )	2,79	2,85 [11]	-2.1 %
2	9,7	-	-
3	31.51	-	-
4	54.42	-	-
5 (100% Ni)	87,67	87,86 [9]	-0.2 %

Tableau 2 : Conductivité thermique k

On constate à travers ces résultats une différence au niveau de la conductivité thermique du BaTiO<sub>3</sub> de l'ordre de 2.1% par rapport à la valeur théorique. Ceci montre que le procédé SPS permet de garantir les propriétés thermiques des couches 100% Ni et 100% BaTiO<sub>3</sub>. Ainsi on peut conclure que ce procédé permet de garantir la transition de propriétés souhaitée pour le FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub>.

## 4 Caractérisation mécanique des FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub>

Les échantillons élaborés par SPS sont des petites pastilles (diamètre 10 mm et d'épaisseur 5 mm). Ces dimensions rendent la caractérisation avec les approches standard (voir par exemple les recommandations de la norme ISO6892) impossible. A cela se rajoute une seconde contrainte qui est la nécessité de pouvoir conserver les échantillons pour ensuite les polariser afin d'obtenir des FGPM. Ceci s'impose afin de pouvoir étudier l'évolution des propriétés avant et après polarisation. Nous avons donc mis en place un protocole alternatif basé sur l'utilisation des ondes ultrasons pour la détermination des constantes élastiques.

### 4.2 Protocole alternatif pour la mesure des constantes élastiques

La méthode de mesure par ultrasons est notamment utilisée dans les domaines dentaire et génie civil [4][8]. Elle est précise, rapide, non destructive et applicable à de petits échantillons. Elle nous permettra ainsi de mesurer les propriétés élastiques avant et après polarisation des échantillons. La mesure de la vitesse de propagation des ondes ultrasons longitudinales ( $V_L$ ), transversales ( $V_T$ ) et celle de la masse volumique ( $\rho$ ) de l'échantillon étudié fournissent l'estimation du module de Young E, le coefficient de Poisson  $\nu$  grâce aux relations suivantes :

$$E = \frac{V_L^2 \rho (1+\nu)(1-2\nu)}{1-\nu} \quad (1)$$

$$\nu = \frac{1-2\left(\frac{V_T}{V_L}\right)^2}{2-2\left(\frac{V_T}{V_L}\right)^2} \quad (2)$$

Pour pouvoir appliquer cette méthode nous détaillons dans la suite les protocoles de mesure de la masse volumique selon la recommandation de la norme ISO 3369 :2006 puis de la mesure des ondes ultrasons.

#### a) Protocole de mesure de la masse volumique

La détermination de la masse volumique des échantillons, est basée sur le principe de la poussée d'Archimède. Une première précaution est de s'assurer que chaque échantillon utilisé a une densité

<sup>3</sup> La valeur de référence est celle de la valeur théorique. L'écart de mesure ( $\varepsilon$ ) d'une grandeur X est calculé comme suit :

$$\varepsilon = \frac{X^{mesure} - X^{theorique}}{X^{theorique}} \times 100$$

supérieure à celle du liquide utilisé. Dans notre étude, l'utilisation de l'eau distillée est suffisante. Pour déterminer la masse volumique on procède selon les étapes suivantes :

1. Peser à sec les échantillons avec une balance de précision (sensibilité de  $10^{-4}$  g) pour obtenir la masse à sec qu'on notera :  $m_s$
2. Immerger dans l'eau distillée à une température de  $20^{\circ}\text{C}$  l'ensemble des échantillons et les mettre dans une chambre sous vide pendant 20 minutes afin de forcer le liquide à pénétrer dans les porosités ouvertes.
3. Peser à l'aide du dispositif de mesure la masse de l'échantillon immergé dans un liquide, qu'on notera  $m_a$ .
4. Peser l'échantillon humide hors du liquide, on notera cette masse  $m_h$ .

On refait ces pesées au minimum 5 fois de manière à s'assurer de la répétabilité des mesures pour chaque échantillon. Une fois la répétabilité confirmée, on applique la formule suivante (ISO 3369 :2006) :

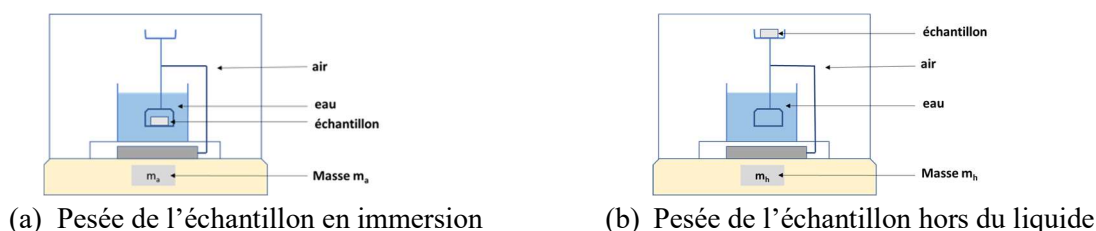


Figure 4 : Mesure de la densité par la méthode d'Archimède

$$\rho = \frac{m_s}{m_h - m_a} \times \rho_{\text{eau}} \quad (3)$$

### b) Protocole de mesure des ondes ultrasons

Les ondes ultrasons longitudinales et transversales sont mesurées à l'aide du mesureur par ultrasons Olympus 38DL Plus (Figure 5). Le principe usuel de cet appareil est de donner l'épaisseur d'un échantillon avec une précision au centième, en indiquant au préalable la vitesse de propagation de l'onde. Dans notre cas on ne connaît pas ces vitesses. On détourne ainsi son utilisation en renseignant l'épaisseur afin de récupérer les vitesses de propagation des ondes longitudinale et transversale.

Une fois les étapes des protocoles citée ci-dessous on applique les formules ( 1 ) et ( 2 ) pour obtenir les constantes élastiques.

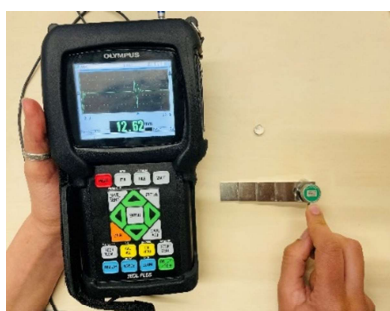


Figure 5 : Mesure des ondes ultrasons Longitudinale et Transversale par l'appareil Olympus 38DL Plus

### c) Validation du protocole

Afin de s'assurer de la fiabilité du protocole alternatif proposé, nous avons procédé à sa validation en comparant les résultats obtenus à ceux provenant d'une caractérisation standard pour un aluminium et un acier (selon la recommandation de la norme ISO6892). Des essais de traction sur une machine Instron instrumentée avec une cellule de charge de 50 kN (classe 0.5 selon la norme ISO 7500-1) ont été menés. La déformation est mesurée par un extensomètre avec une vitesse de déplacement imposée de 2 mm/min.

Sur ces mêmes éprouvettes on a mesuré le module de Young en utilisant le mesureur Olympus 38DL PLUS. Les premiers résultats obtenus sont reportés dans le Tableau 3.

Matériau \ Méthode de mesure	Module de Young [GPa]		
	ISO 6892	Ultrasons	Ecart de mesure
Aluminium	70	75	7,14%
Acier	212	218	2,83%

Tableau 3 : mesures du module de Young

Un écart de mesure a été calculé par la formule suivante

$$\varepsilon = \frac{E_{US} - E_{ISO}}{E_{ISO}} * 100$$

avec :  $E_{ISO}$  est le module de Young mesurée par le protocole standard

$E_{US}$  est le module de Young mesurée par le protocole Ultrasons

Les valeurs obtenues sont très proches. Elles permettent une première validation du protocole. Des essais complémentaires sur des céramiques sont en cours.

Parallèlement, des premières mesures de module de Young ont été faites sur les échantillons uniformes FGM de teneurs respectives 100% Ni et 100% BaTiO<sub>3</sub>. Ces mesures ont été reportées au Tableau 4.

	$E_{US}$ (GPa)	$E_{théo}$ (GPa)	Ecart de mesure
100% BaTiO <sub>3</sub>	82	87	-5.74%
100% Ni	207	214	-3.27%

Tableau 4 : mesures du module de Young

On constate que ces résultats sont proches des valeurs théoriques du module de Young ce qui prouve la robustesse de notre protocole. L'écart de mesure peut être dû au procédé de fabrication ou/et du fait que la mesure par ultrasons est une mesure dynamique ce qui peut mettre en évidence une légère sensibilité aux vitesses de déformation (hypothèse qui sera confirmée ou non avec les travaux futurs qui seront menés).

## 5 Conclusion et perspectives

A travers ce travail, nous nous proposons de caractériser les propriétés thermique et mécanique des matériaux FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub>. Ces FGM ont été élaborés par la technique de frittage SPS. L'observation au microscope de cet échantillon a permis de mettre en évidence la bonne cohésion des couches malgré la faible épaisseur de l'échantillon (3 mm). Par la suite différents échantillons avec différentes teneurs de Ni et BaTiO<sub>3</sub> ont été élaborés. A travers ces échantillons nous avons pu mettre en place le protocole de caractérisation thermique en accord avec la norme ISO 22007-2 :2015. Les premiers résultats de conductivité thermique semblent montrer une variation des propriétés au niveau de l'épaisseur.

En parallèle, un protocole non destructif de caractérisation mécanique a été mis en place. Il permet de pallier aux deux contraintes existantes : la taille des échantillons et la volonté de les conserver en vue d'une polarisation. Ce protocole est basé sur l'utilisation des ondes ultrasons permettant de mesurer les constantes élastiques du FGM étudié. Les premiers résultats semblent prometteurs, des campagnes de validation de ce protocole seront menées pour s'assurer de sa fiabilité.

Par ailleurs, ces protocoles de caractérisation pourront être appliqués après polarisation des pastilles afin de déterminer l'effet éventuel de la polarisation sur les propriétés [10].

## Remerciement :

L'équipe du projet tient à remercier Gaël Chevallier, du FEMTO-ST pour son soutien et sa participation au projet.

## Références

- [1] I. Elishakoff D. Pentaras C. Gentilini « Mechanics of functionally graded material structures » ,World scientific, 2016.
- [2] J. Maruani, « modélisation et optimisation des matériaux piézoélectriques à gradient de propriétés (FGPM), application au contrôle actif de structures planes », Thèse de doctorat de Université Paris-Nanterre, 2019.
- [3] J. Maruani, I. Bruant, F. Pablo, L. Gallimard « Active vibration control of a smart FGPM plate using an adaptive fuzzy controller strategy», Journal of Intelligent Materials Systems and Structures, Vol. 30, Issue 14, 2019.
- [4] J. Cédelle, D. Brégeroux, J. Petit, I. Bruant, L. Davenne, « Elaboration and characterization of Ni/BaTiO<sub>3</sub> Functionally Graded Piezoelectric Material for active vibration control applications», 24ème international conference on Advanced Materials and Nanotechnology, 21-22 octobre 2019, Rome.
- [5] B. Mouawad, « Assemblages innovants en électronique de puissance utilisant la technique de « Spark Plasma Sintering », Thèse de École doctorale Electronique, Electrotechnique, Automatique de Lyon, 2013.
- [6] S.E. Gustafsson, Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials, Rev. Sci. Instrum. 62 (3), March 1991 pp797-804
- [8] S. Bnaboud, F. Allou, M. Takarli, F. Dubois, A. Nicolai, A. Beghin, « Vers une détermination non destructive par ultrasonss des propriétés mécaniques résiduelles des structures de chaussées. », 24ème congrès français de mecanique , 26-30 Août 2019, Brest.
- [9] <https://www.thermoconcept-sarl.com/base-de-donnees-conductivite-thermique/>
- [10] S. Rattanachan, Y. Miyashita, Y. Mutoh, « Effect of polarization on fracture toughness of BaTiO<sub>3</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composites », Journal of the European Ceramic Society 24 (2004) 775-783.