

## O10 : Synthèse et caractérisation de nouvelles céramiques PZT-SFN

FARES KAHOU<sup>1</sup>, LOUANES HAMZIOUI<sup>2</sup>, AHMED BOUTARFAIA<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Département de chimie, laboratoire de chimie appliquée, Université de Biskra B. P. 145, RP-Biskra 07000, Algérie.

<sup>2</sup> Département de chimie, laboratoire de chimie appliquée, Université de Biskra B. P. 145, RP-Biskra 07000, Algérie. E-mail: [Hamzioui\\_louanes@yahoo.fr](mailto:Hamzioui_louanes@yahoo.fr)

<sup>3</sup> Département de chimie, laboratoire de chimie appliquée, Université de Biskra B. P. 145, RP-Biskra 07000, Algérie. E-mail: [aboutarfaia@yahoo.fr](mailto:aboutarfaia@yahoo.fr)  
[Fares\\_260@yahoo.fr](mailto:Fares_260@yahoo.fr)

**Mots clés :** Permittivité diélectrique, facteur de dissipation, résistivité électrique, conductibilité électrique.

### Résumé:

En vue d'étudier l'influence de la température du frittage, la concentration de Zirconium et de la fréquence sur les propriétés diélectriques telle que : la constante diélectrique, facteur de dissipation, la résistivité et la conductibilité électrique d'un nouveau matériau en céramique titanate zirconate de plomb (PZT) de structure pérovskite dans le système ternaire :  $(1-x)\text{Pb}(\text{Zr}_y\text{Ti}_{1-y})\text{O}_3-x\text{Sm}(\text{Fe}^{3+}_{0.5}, \text{Nb}^{5+}_{0.5})\text{O}_3$  où  $x = 2\%$  et  $41\% \leq y \leq 55\%$ . Les échantillons choisis pour cette étude ont été préparés par la méthode de synthèse à voie solide. L'étude des propriétés diélectriques de tous les échantillons a montré une forte permittivité diélectrique pour les deux échantillons où  $y=0.53$  ( $\epsilon_r=989$ ),  $y=0.55$  ( $\epsilon_r=1075$ ) et un faible facteur de dissipation 1,3% pour l'échantillon où  $y=0.53$ , 1,298% pour l'échantillon où  $y=0.55$ . La variation de la constante diélectrique et la tangente de perte avec la température et la fréquence de tous les échantillons ont été également étudiées et le comportement observé est expliqué qualitativement et quantitativement.

### I. INTRODUCTION

De nombreux travaux effectués ces dernières années sur les céramiques piézoélectriques  $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$  attestent de l'importance de ces matériaux au voisinage de la frontière morphotropique de phase où coexistent les deux phases et exhibent les valeurs les plus élevées de la constante diélectrique et du facteur de couplage.

Cette frontière sépare les deux phases ferroélectriques, l'une tétragonale et l'autre rhomboédrique [1].

Des substitutions dans le réseau cristallin appelées dopage sont souvent conduites dans la perspective d'améliorer les propriétés spécifiques des PZT ou parfois de les adapter à des applications bien spécifiques. Ces propriétés sont généralement améliorées par l'ajoute d'un ou plusieurs cations qui vont se substituer au  $\text{Pb}^{2+}$  en site A et/ou couple ( $\text{Zr}^{4+}/\text{Ti}^{4+}$ ) en site B de la structure pérovskite [2]. Dans le cadre de notre travail, nous nous sommes intéressés à la substitution de:  $\text{Pb}^{2+}$  avec le  $\text{Sm}^{3+}$ , couple ( $\text{Zr}^{4+}/\text{Ti}^{4+}$ ) avec le ( $\text{Fe}^{3+}, \text{Nb}^{5+}$ ) et voir l'effet sur les propriétés diélectriques de la solution solide: PZT-SFN,  $(1-x)\text{Pb}(\text{Zr}_y\text{Ti}_{1-y})\text{O}_3-x\text{Sm}(\text{Fe}^{3+}_{0.5}, \text{Nb}^{5+}_{0.5})\text{O}_3$ .

## II. METHODES EXPERIMENTALES

Les compositions étudiées sont résumées dans le tableau I. Ces compositions ont été synthétisées par réaction chimique à l'état solide. Des matières premières ont été mélangées et broyées pendant six heures. Après le broyage la poudre obtenue est compactée sous forme de pastilles à une pression de 300 kg/cm<sup>2</sup>. Puis une calcination préliminaire à 800°C est effectuée pendant 2h avec une vitesse de chauffage de 2°C/mn. Le mélange calciné et rebroyé pendant 4 heures puis pastillés sous 1000 kg/cm<sup>2</sup> est frittés à 1100, 1150, 1180°C pendant 2 h.

Les pastilles sont métallisées à l'aide d'une couche mince de la pâte d'argent sur les deux surfaces de la pastille. Après séchage, les pastilles métallisées ont subi une calcination à 750°C pendant trente minutes. Les composés frittés (1-x)Pb(Zr<sub>y</sub> Ti<sub>1-y</sub>)O<sub>3</sub>-xSm(Fe<sup>3+</sup><sub>0.5</sub>, Nb<sup>5+</sup><sub>0.5</sub>)O<sub>3</sub> sont soigneusement broyés, puis analysés par diffraction des rayons X (diffractomètre SIEMENS D500, λ<sub>Cu Kα1</sub> : 1.54056 Å) pour établir les phases cristallographiques: tétragonale, rhomboédrique et tétragonale-rhomboédrique (morphotropique).

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique qui permet d'estimer la distribution granulométrique, la taille moyenne des grains après le frittage et d'évaluer qualitativement la présence de porosité. Les micrographies sont réalisées à l'aide d'un microscope JMS 6400. Les variations de la constante diélectrique ε<sub>r</sub>, la résistivité ainsi que celle de l'angle des pertes ont été examinées en utilisant un pont de mesure de type RLC (pont de Schering) en fonction de la température, la concentration, la fréquence.

Tableau 1 : Différentes compositions préparées pour notre étude.

| N° d'échantillon | Matrice  |
|------------------|--|
| 1 (02/41)        | Pb <sub>0.98</sub> Sm <sub>0.02</sub> [(Zr <sub>0.41</sub> Ti <sub>0.59</sub> ) <sub>0.98</sub> - (Fe <sup>3+</sup> <sub>0.5</sub> , Nb <sup>5+</sup> <sub>0.5</sub> ) <sub>0.02</sub> ]O <sub>3</sub> |
| 2 (02/43)        | Pb <sub>0.98</sub> Sm <sub>0.02</sub> [(Zr <sub>0.43</sub> Ti <sub>0.57</sub> ) <sub>0.98</sub> - (Fe <sup>3+</sup> <sub>0.5</sub> , Nb <sup>5+</sup> <sub>0.5</sub> ) <sub>0.02</sub> ]O <sub>3</sub> |
| 3 (02/45)        | Pb <sub>0.98</sub> Sm <sub>0.02</sub> [(Zr <sub>0.45</sub> Ti <sub>0.55</sub> ) <sub>0.98</sub> - (Fe <sup>3+</sup> <sub>0.5</sub> , Nb <sup>5+</sup> <sub>0.5</sub> ) <sub>0.02</sub> ]O <sub>3</sub> |
| 4 (02/47)        | Pb <sub>0.98</sub> Sm <sub>0.02</sub> [(Zr <sub>0.47</sub> Ti <sub>0.53</sub> ) <sub>0.98</sub> - (Fe <sup>3+</sup> <sub>0.5</sub> , Nb <sup>5+</sup> <sub>0.5</sub> ) <sub>0.02</sub> ]O <sub>3</sub> |
| 5 (02/49)        | Pb <sub>0.98</sub> Sm <sub>0.02</sub> [(Zr <sub>0.49</sub> Ti <sub>0.51</sub> ) <sub>0.98</sub> - (Fe <sup>3+</sup> <sub>0.5</sub> , Nb <sup>5+</sup> <sub>0.5</sub> ) <sub>0.02</sub> ]O <sub>3</sub> |
| 6 (02/51)        | Pb <sub>0.98</sub> Sm <sub>0.02</sub> [(Zr <sub>0.51</sub> Ti <sub>0.49</sub> ) <sub>0.98</sub> - (Fe <sup>3+</sup> <sub>0.5</sub> , Nb <sup>5+</sup> <sub>0.5</sub> ) <sub>0.02</sub> ]O <sub>3</sub> |
| 7 (02/53)        | Pb <sub>0.98</sub> Sm <sub>0.02</sub> [(Zr <sub>0.53</sub> Ti <sub>0.47</sub> ) <sub>0.98</sub> - (Fe <sup>3+</sup> <sub>0.5</sub> , Nb <sup>5+</sup> <sub>0.5</sub> ) <sub>0.02</sub> ]O <sub>3</sub> |
| 8 (02/55)        | Pb <sub>0.98</sub> Sm <sub>0.02</sub> [(Zr <sub>0.55</sub> Ti <sub>0.45</sub> ) <sub>0.98</sub> - (Fe <sup>3+</sup> <sub>0.5</sub> , Nb <sup>5+</sup> <sub>0.5</sub> ) <sub>0.02</sub> ]O <sub>3</sub> |

## III. RÉSULTATS et DISCUSSION

### A. Analyses par diffraction des rayons X

Les résultats des rayons X concernant notre série de composition frittée à 1150 °C sont illustrés sur la figure 1 et par le tableau 2.

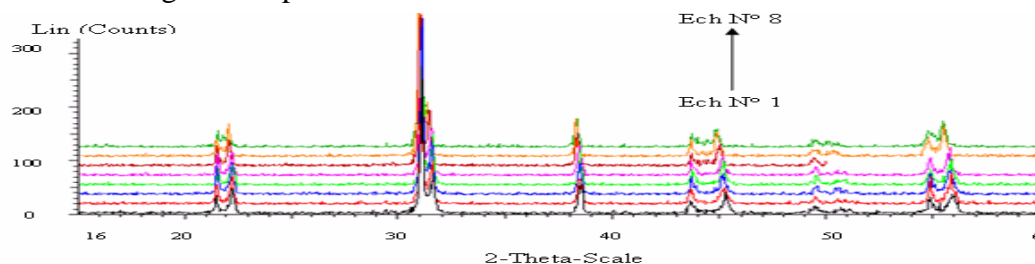


FIG.1- Diffractogrammes de rayons X des céramiques de PZT-SFN frittés à 1150 °C.

Tableau 2 : Nature des phases cristallographiques à 1180 °C.

T: tétragonale, R: rhomboédrique, T+R: morphotropique.

|                      |    |    |    |    |    |     |     |     |
|----------------------|----|----|----|----|----|-----|-----|-----|
| Concentration en Zr% | 41 | 43 | 45 | 47 | 49 | 51  | 53  | 55  |
| Nature des phases    | T  | T  | T  | T  | T  | T+R | T+R | T+R |

A partir de ces résultats, on constate qu'il y a une région où les deux phases T et R coexistent. Cette région est détectée pour les compositions : Zr = 51%, Zr = 53% et pour Zr = 55%. Par contre les compositions correspondent à Zr ≤ 49%, montrent sans ambiguïté que le matériau obtenu est de structure tétragonale.

### B. Etude morphologique des céramiques PZT-SFN

La microstructure des céramiques PZT-SFN avec 47% (a), 49% (b) et 53% (c) de la concentration de Zr est représentée sur la figure 2. Celle-ci a été obtenue pour une température de frittage à 1180 °C.

A première vue, les trois compositions semblent homogènes et il ne semble pas y avoir de grains de la phase pyrochlore qui sont identifiables par leur forme pyramidale [3]. Les ruptures aux joints de grains sont synonymes d'un bon frittage.

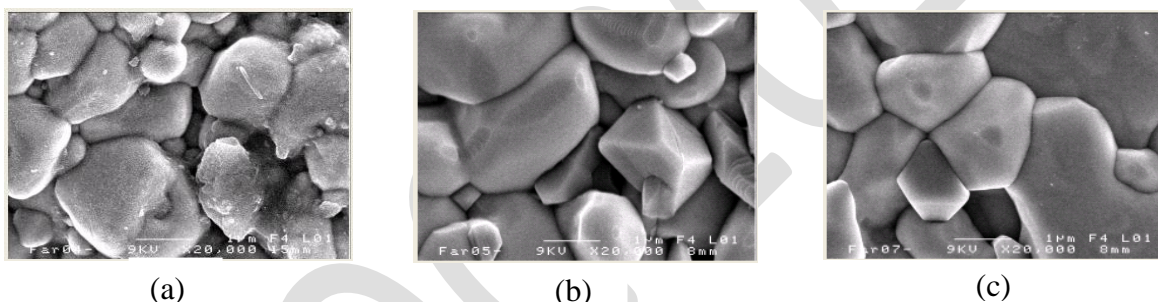


FIG.2- Les photographies prises par le microscope électronique à balayage pour les trois compositions frittées à 1180 °C: (a)-  $\text{Pb}_{0.98}\text{Sm}_{0.02}[(\text{Zr}_{0.47}\text{Ti}_{0.53})_{0.98} - (\text{Fe}^{3+}_{0.5}, \text{Nb}^{5+}_{0.5})_{0.02}]\text{O}_3$ , (b)-  $\text{Pb}_{0.98}\text{Sm}_{0.02}[(\text{Zr}_{0.49}\text{Ti}_{0.51})_{0.98} - (\text{Fe}^{3+}_{0.5}, \text{Nb}^{5+}_{0.5})_{0.02}]\text{O}_3$ , (c)-  $\text{Pb}_{0.98}\text{Sm}_{0.02}[(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})_{0.98} - (\text{Fe}^{3+}_{0.5}, \text{Nb}^{5+}_{0.5})_{0.02}]\text{O}_3$ .

On remarque que le diamètre moyen des grains augmente significativement avec l'augmentation du taux de Zr. La taille moyenne des grains est 1,718 µm pour l'échantillon (a) avec 47% de Zr. Par contre, pour l'échantillon (b) la taille moyenne des grains est plus grande (2,167 µm). Dans le cas de la céramique (c) avec 53% de Zr, la taille moyenne des grains est plus grande que celle de (a) et (b) (de l'ordre 2,605 µm) et la distribution granulométrique est plus large (figure 2). L'augmentation de la taille des grains peut avoir à l'origine de la diminution des lacunes d'oxygène dans le PZT [4].

### C. La densité

#### C-1. Evolution de la densité en fonction de la température de frittage

L'étude de la densité est nécessaire afin d'optimiser la température de frittage optimale.

La qualité du matériau augmente avec l'augmentation de la densité et celle-ci augmente avec l'augmentation de la température de frittage [5]. La température optimale de frittage est déterminée à partir du diagramme de la densité en fonction de la température de frittage  $d = f(T)$ .

La densité maximale correspond au produit de meilleure qualité électrique (faibles pertes diélectriques). La figure 3 rassemble Les courbes de la densité de tous les échantillons PZT-

SFN en fonction de la température de frittage.

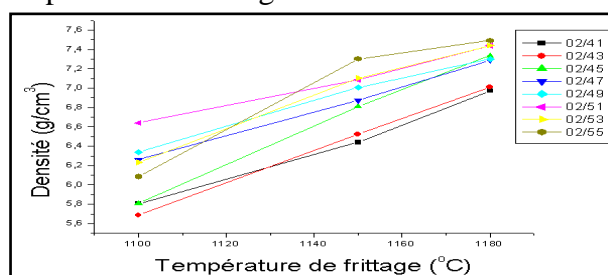


FIG.3- Evolution de la densité en fonction de la température de frittage.

On observe la même allure pour l'ensemble des courbes : la densité est minimale pour une température de frittage  $T_F = 1100^\circ\text{C}$ , elle commence à croître jusqu'à atteindre une valeur maximale à une température de frittage  $T_F = 1180^\circ\text{C}$ , ce qui signifie que la température optimale de frittage est  $1180^\circ\text{C}$ . L'augmentation de la densité implique une diminution du nombre et de dimension des pores, donc le volume de la maille diminue et par conséquent la structure devient plus compacte.

La température de frittage optimale dépend de plusieurs facteurs tels que : l'addition des impuretés, la vitesse de frittage, le temps de maintien ainsi que la quantité de  $\text{PbZrO}_3$  ajoutée pour minimiser la volatilisation de  $\text{PbO}$ .

### C-2. Evolution de la densité en fonction de la composition

La figure 4 représente l'évolution de la densité, des différents échantillons de PZT-SFN frittés à 1100, 1150, 1180°C en fonction de la concentration de Zirconium.

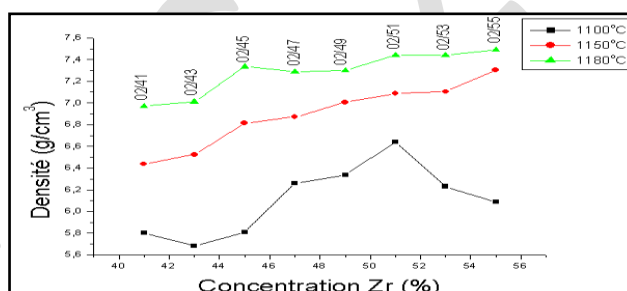


FIG.4- Evolution de la densité en fonction de la concentration de Zr (%).

La figure 4 montre que la densité augmente pour l'ensemble des échantillons frittés à différentes températures de frittage avec l'augmentation de la concentration de Zr, et prend des valeurs maximales à  $1180^\circ\text{C}$ , à cette température la densité atteint une valeur maximale de  $7.492\text{g/cm}^3$  (93.65% de la densité théorique) à  $\text{Zr} = 55\%$ .

### C-3. Etude des propriétés diélectriques

Lorsqu'on prend uniquement en considération les propriétés diélectriques on choisit de préférence un matériau non polaire, car cela permet d'obtenir une haute résistivité, une forte constante diélectrique et une faible perte diélectrique. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'un analyseur multifréquences LCR mètre combiné à un four programmable ( $0^\circ\text{C}$ - $1200^\circ\text{C}$ ) avec une vitesse de chauffage de  $2^\circ\text{C}/\text{min}$  et à une fréquence de 1kHz.

#### C-3-1. La constante diélectrique ( $\epsilon_r$ )

##### C-3-1-a. Evolution de la constante diélectrique en fonction de la température

Les mesures de la variation de la constante diélectrique en fonction de la température ont pour principal objectif de : déterminer et comparer la température de transition ferr-para électrique pour des échantillons dopés et non-dopés.

Les courbes de la figure 5 (a, b, c) donne l'évolution de la constante diélectrique en fonction de la température, les résultats sont donnés pour les températures de frittage 1100, 1150, 1180 °C. Les courbes ci-dessous montrent que les différents échantillons gardent pratiquement la même allure quelque soit la température de frittage.

La constante diélectrique  $\epsilon_r$  augmente avec la température dans le domaine de la ferroélectricité, elle passe par un maximum qui correspond à la température de Curie, puis décroît dans la zone où la céramique n'est plus ferroélectrique. Notons que l'échantillon N° 7 (02/45), présente une valeur de la constante diélectrique allant jusqu'à 13583,036 et l'échantillon N° 8 (02/55), sa constante diélectrique est de 13072,59 à la température de frittage 1180 °C.

Les deux échantillons N°1 (02/41) et N°2 (02/43) présentent une exception dans l'évolution de  $\epsilon_r$  (T).

En fait, la constante diélectrique augmente continûment en fonction de la température, donc ces échantillons ne possèdent pas un point de Curie pour une température comprise entre (0, 420 °C) [6, 7].

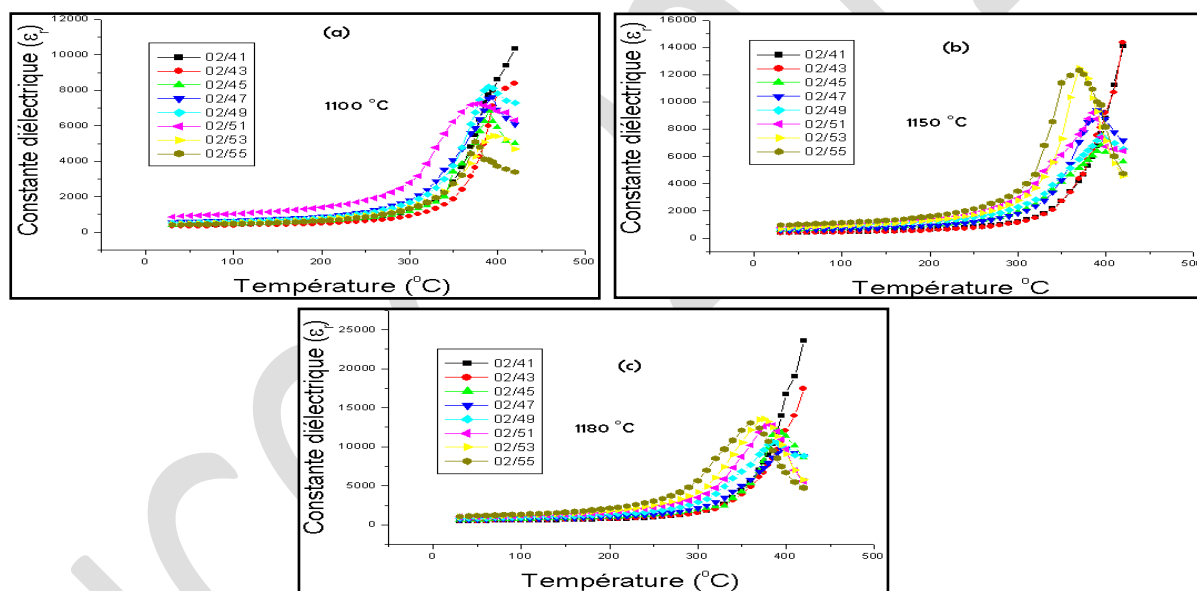


FIG.5- Evolution de la constante diélectrique en fonction de la température pour l'ensemble des échantillons : a) 1100 °C, b) 1150 °C, c) 1180 °C.

En dessous de la température de transition ( $T_c$ ), la distorsion de la structure pérovskite sous l'influence de la température est accompagnée d'un déplacement relatif des ions. Ceci engendre la majeure partie de la polarisation spontanée à l'échelle de la maille. Ainsi, les ions  $Ti^{4+}$ ,  $Zr^{4+}$  et  $Pb^{2+}$  n'occupent plus respectivement le centre et les sommets de la maille, ils sont décalés dans l'une des directions principales du réseau cristallin. Ceci donne lieu à une polarisation spontanée de plus en plus importante jusqu'à atteindre une valeur maximale à  $T_c$ . Ces évolutions de la polarisation avec  $T_c$  permettent d'expliquer la valeur de  $\epsilon_r$  à cette température. La température de transition  $T_c$  correspond à la valeur maximale du pic de la constante diélectrique.

### C-3-1-b. Etude de la constante diélectrique en fonction de la composition en Zr

Le rapport Zr/Ti joue un rôle important sur les propriétés diélectriques des céramiques de type PZT, car au voisinage de la frontière morphotropique de phase la constante diélectrique

devient de plus en plus élevée [8]. La figure 6 présente la variation de la constante diélectrique en fonction de la composition en Zr aux températures de frittage 1100 °C, 1150 °C, 1180 °C.

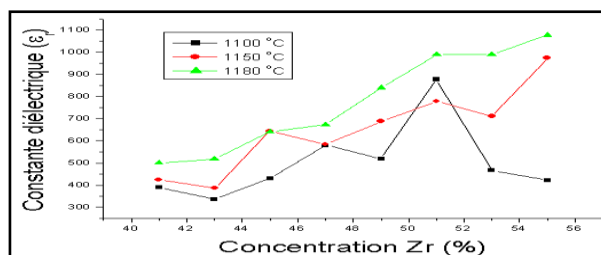


FIG.6-Evolution de la permittivité diélectrique en fonction de la composition en Zr aux différentes températures de frittage.

A la température de frittage 1100 °C, on observe que la constante diélectrique augmente avec la concentration de Zr jusqu'à atteindre l'échantillon N° 6 puis diminue pour les compositions N° 7 et 8.

Pour les températures de frittage 1150 °C et 1180 °C, la constante diélectrique augmente progressivement avec l'augmentation de la composition et prend un maximum de 1075,896 pour l'échantillon N° 8 (02/55) incluse dans la FMP à la température 1180 °C. Ce maximum d'activité diélectrique peut être expliqué par la présence de plusieurs directions de polarisation spontanée relative à l'existence des deux structures rhomboédrique et tétragonale [9].

### C-3-1-c. Evolution de la permittivité diélectrique en fonction de la fréquence

Les courbes de la figure 7 (a, b, c) montrent la variation de la constante diélectrique en fonction de la fréquence pour l'ensemble des échantillons frittés à différentes températures de frittage (1100, 1150 et 1180 °C). Sur les courbes  $\epsilon_r = f(F)$ , on constate que les différents échantillons gardent les mêmes allures à différentes températures de frittage, c'est-à-dire la constante diélectrique montre une diminution quand la fréquence augmente pour l'ensemble des échantillons.

Certains auteurs [10,11]. Expliquent la valeur maximale de la constante diélectrique à température ambiante et à des valeurs faibles de fréquence par l'existence des différents types de polarisations.

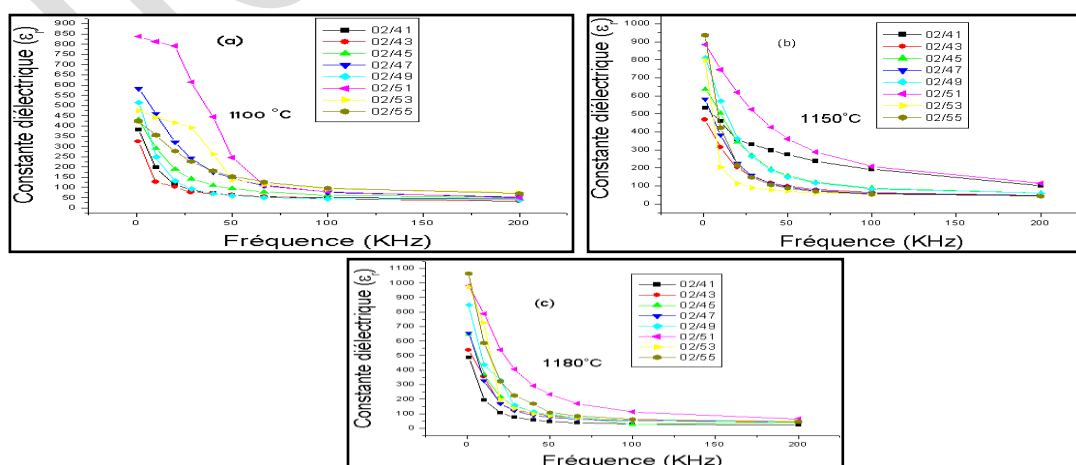


FIG.7- Variation de la constante diélectrique en fonction de la fréquence aux différentes températures de frittage : a)- 1100 °C, b)- 1150 °C, c)- 1180 °C.

### C-3-2. Facteur de dissipation (pertes diélectriques $\text{tg}\delta$ )

Lorsqu'un matériau ferroélectrique est sollicité électriquement ou mécaniquement, il apparaît au cours de la conversion de l'énergie des pertes diélectrique et mécanique.

#### C-3-2-a. Evolution de $\text{tg}\delta$ en fonction de la température

Ce facteur qui varie selon la température et la fréquence, joue un rôle important particulièrement dans les circuits à hautes fréquences. Les courbes de la figure 8 (a, b, c) présentent la variation du facteur de dissipation en fonction de la température pour tous les échantillons frittés aux différentes températures (1100, 1150, 1180 °C).

Les courbes donnant les variations de  $\text{tg}\delta=f(T)$  gardent la même forme (allure) quand on fait varier la température de frittage. L'existence d'une transition de phase F-P se traduit sur ces courbes par une variation plus ou moins brutale des pertes diélectriques.

L'angle des pertes croît avec l'augmentation de la température jusqu'à atteindre une valeur maximale à la température de transition, qui traduit un maximum des pertes diélectriques du mélange, puis il diminue. Cette diminution causée par l'augmentation de la température entraîne une détérioration des propriétés du matériau qui sont liées au mouvement des murs de domaines [12,13].

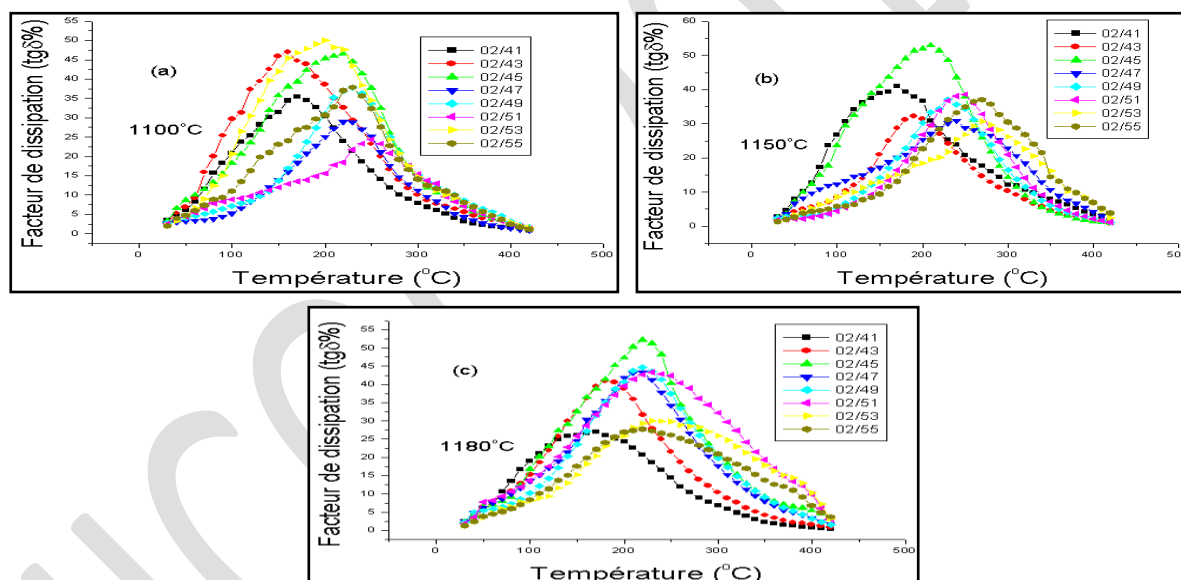


FIG.8- Variation du facteur de dissipation en fonction de la température pour l'ensemble des échantillons frittés à : a) 1100 °C, b) 1150 °C, c) 1180 °C.

#### C-3-2-b. Etude du facteur de dissipation en fonction de la composition en Zr

La figure 9 montre l'évolution des pertes diélectriques en fonction du taux de Zr pour l'ensemble des échantillons frittés aux différentes températures (1100, 1150, 1180 °C).

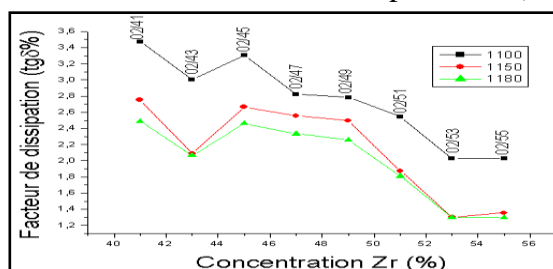


FIG. 9- Variation du facteur de dissipation en fonction de la composition Zr (%).

On remarque qu'il y a sur la figure III.17 une diminution des pertes diélectriques avec l'augmentation de la composition, de l'échantillon N° 1 à l'échantillon N°2, puis une augmentation des pertes diélectriques de l'échantillon N° 2 à l'échantillon N°3, à partir de la composition 02/45 (échantillon N°3) on note une diminution de ces pertes jusqu'à atteindre des valeurs minimales au voisinage de la frontière morphotropique de phase (la composition N°7 et N°8). Cette constatation a été observée pour l'ensemble des échantillons frittés aux différentes températures.

### C-3-2-c. Etude du facteur de dissipation en fonction de la fréquence

La variation du facteur de dissipation de l'ensemble des échantillons en fonction de la fréquence aux différentes températures est illustrée par les courbes de la figure10 (a), (b) et (c). Sur ces figures, on peut observer très clairement que les valeurs du facteur de dissipation diminuent au fur et à mesure que la fréquence augmente, ceci caractérise un comportement normal pour les ferroélectriques en général [14,15].

Le résultat tiré à partir de ces courbes est : aux basses fréquences (1 à 25 kHz) les pertes diélectriques sont très importantes qu'aux hautes fréquences, elles deviennent presque négligeables à 200 kHz.

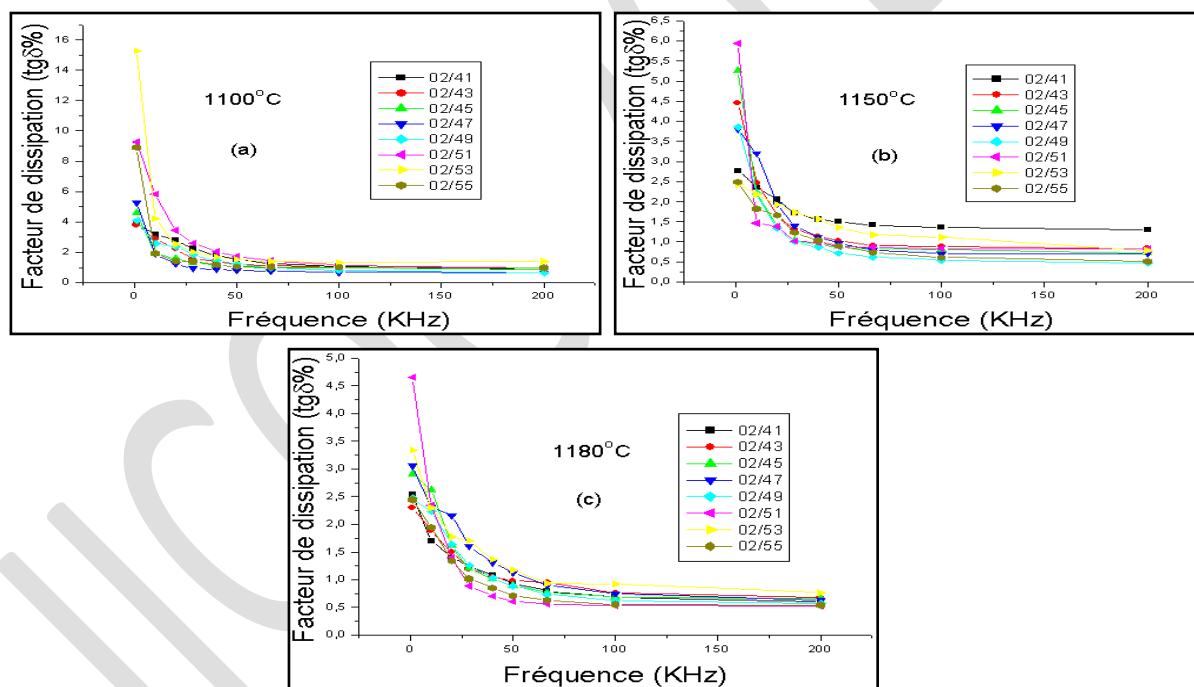


FIG.10-Evolution de l'angle des pertes diélectriques en fonction de la fréquence pour tous les échantillons.

### C-3-3. la résistivité ( $\rho$ )

#### C-3-3-a. Etude de la résistivité en fonction de la température

L'étude de la variation de la résistivité en fonction de la température pour l'ensemble des échantillons frittés à différentes températures (1100, 1150, 1180 °C) est représentée sur la figure 11.



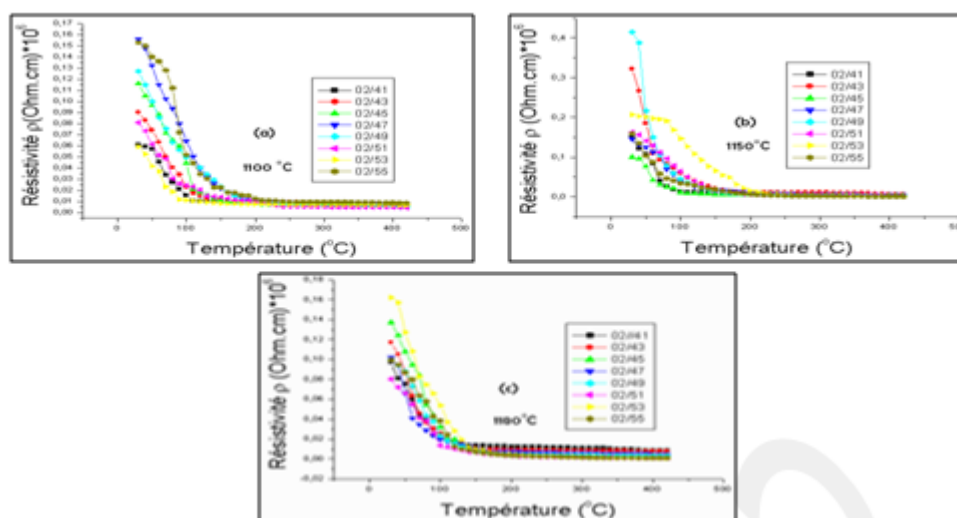


FIG.11- Variation de la résistivité en fonction de la température : a) 1100 °C, b) 1150 °C, c) 1180 °C.

Sur les courbes  $\rho = f(T)$ , on constate que la résistivité des matériaux de type PZT diminue avec l'augmentation de la température, car à haute température l'énergie thermique peut être suffisante pour rompre quelques liaisons ioniques ou covalentes et entraîne une certaine mobilité des ions.

Par exemple, la résistivité décroît de plus en plus pour l'échantillon N° 8 (02/55) à la température de frittage 1180 °C (à 30 °C,  $\rho = 0,0995 * 10^6 \Omega.cm$ , à 420 °C,  $\rho = 0,00126 * 10^6 \Omega.cm$ ).

La présence des dopants ( $Fe_2O_3$ ,  $Nb_2O_5$ ,  $Sm_2O_3$ ) entraîne des effets sur la diminution de la résistivité du matériau et par conséquent augmente sa conductibilité. Ceci est dû à la non stoechiométrie du matériau après le dopage qui engendre l'apparition des sites vacants (en Pb ou en O). Ces sites vacants augmentent le nombre de charges dans le matériau ce qui décroît la résistivité du matériau.

#### IV-CONCLUSION

-Du point de vue morphologique et structural:

A partir de l'analyse des spectres des RX, la frontière morphotropique de phase où coexistent les deux phases (T+R) se trouve approximativement à  $y = 51- 55\%$  de Zr à la température de frittage 1150 °C, la ligne de transition a tendu vers les régions riches en Zirconium.

L'effet de la température de frittage sur la densité et la porosité a été étudié afin d'atteindre la température de frittage optimale. Cette température (1180 °C) correspond à la valeur maximale de la densité, donc la valeur minimale de la porosité et correspond aussi au produit de meilleure qualité.

-Du point de vue physique:

Les propriétés diélectriques à été étudiées en fonction de plusieurs facteurs: le taux de Zr, la température et la fréquence. Les meilleures propriétés diélectriques des PZT-SFN près de la FMP est optimale pour le taux Zr = 55% (échantillon 8) frittés à 1180 °C. Les résultats fiables obtenus pour cette composition à 25 °C et à la fréquence de mesure 1kHz sont: faible pertes diélectriques  $1,298.10^{-2}$ , forte permittivité diélectrique ( $\epsilon_r$ ) 13072,59, forte résistivité  $10^{+5}$  ( $\Omega.cm$ ), faible conductibilité  $10^{-5}$  ( $\Omega.cm$ )<sup>-1</sup>.

**REFERENCES:**

- [1] B. V. HIREMATH, A. I. KINGON, J. V. BIGGERS, J. Am. Ceram, Soc. 66, p 790-793, (1983).
- [2] S. S. CHANDRATREYA, R. M. FULTRATH AND J. A. PASK, J. Am. Ceram, Soc. 64, p 422-425, (1981).
- [3] Z. KIGHELMAN, Films minces relaxeur-ferroélectriques à base de  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  : élaboration, propriétés diélectriques et électromécaniques, Thèse de doctorat école polytechnique de Lausanne, P 156, (2001).
- [4] O. OHTAKA, R. VON DER MUHL, J. RAVEZ, Journal of the American Ceramic Society, vol 78, N°3, p 805-808, (1995).
- [5] K. ELLY, M. LEONARD, C. TANTIGATE AND A. SAFARI, J. Am. Ceram, Soc, Vol 80 N°4, P 957, (1997).
- [6] H. R. RUKMINI, R. N. P. CHOUDHARY, D. L. PRABHAKARA, J. Phys. Chemis. Soli, 61 (2000).
- [7] W. CHAISAN, R. YIMNIRUN, S. ANANTA, D. P. CANN, Phase development and dielectric properties of  $(1-x)\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}, \text{Ti}_{0.48})\text{O}_3 - x\text{BaTiO}_3$  ceramics, Materials Science and Engineering B 132, P 300-306. (2006).
- [8] T. TAKAASHI, H. YAMAMURA AND S. SHIRASAKI, Solid state communication, 24, P 771, (1977).
- [9] A. TAWFIK, M. BARKET, Counter current compensation of double doped  $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}, \text{Ti}_x)\text{O}_3$  piezoelectric ceramics, Interceram, Vol. 40 N° 4, p 231, (1991).
- [10] Z. HE, J. MA, R. Z. T. LI, J. Eur. Ceram, Soc. 23, p 1943-1947, (2003).
- [11] Y. XU, Ferroelectric materials and their applications, North-Holland, Amsterdam, (1991).
- [12] A. NORWICK, B. BERRY, anelastic relaxations in crystalline solids, New York, academic press, p1-3, (1972).
- [13] D. DAMJANOVIC, Ferroelectric dielectric and piezoelectric properties of ferroelectric thin films and ceramics, Rep. Prog. Phys, vol 61, p 1267-1324, (1998).
- [14] Z. HE, J. M. R. ZHANG, T. LI, Fabrication and characterization of bilayered  $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  based ceramics, materials Letters 56, (2002).
- [15] Z. HE, J. MA, R. ZHANG, Investigation on the microstructure and ferroelectric properties of porous PZT ceramics, Ceram. Int. 30, p 1353-1356, (2004).