

# Base de données électro-mécanique complète du monocristal $\text{KNbO}_3$

De nos jours, avec l'explosion des puissances de calcul des ordinateurs, le calcul par éléments finis est très utilisé pour simuler tout type de comportement (thermique, mécanique, magnétique, etc.) de structures complexes sous différentes conditions. Ces simulations permettent un travail d'optimisation sur les structures avant leur fabrication, ce qui permet de faire de grandes économies. Néanmoins, pour lancer ce calcul, le problème doit avoir des données d'entrée qui sont les caractéristiques des matériaux composant la structure.

Dans le cas des transducteurs ultrasonores, les simulations par éléments finis prennent en compte, en général, uniquement les domaines électrique et mécanique. Les performances d'un transducteur dépendant essentiellement du matériau piézoélectrique, nous nous intéresserons dans ce chapitre uniquement aux propriétés électro-mécaniques du matériau piézoélectrique. La caractérisation électro-mécanique pour accéder à ces propriétés n'est pas récente et son protocole est très cadré [25]. Néanmoins, toutes les caractéristiques électro-mécaniques définies dans la partie 1.1.2 ne sont pas directement mesurables par ce type de caractérisation. En effet, le lien direct entre une grandeur mesurable (électrique, mécanique ou autre) et un grand nombre de constantes du matériau n'est pas connu. Elles sont donc calculées à partir des relations de la Table 1.2.

Cette étape de calcul introduit des incohérences dans la base de données finale du matériau piézoélectrique qui sont appelées également des inconsistances [116]. Elles peuvent être la cause de différences observées sur des résultats d'un même calcul (simulation numérique, calcul analytique, etc.) utilisant pourtant le même matériau. Effectivement, en prenant deux modules de tenseurs d'une base de données inconsistante d'un même matériau, par exemple  $(c^E, e, \epsilon^S)$  et  $(s^E, d, \epsilon^T)$ , le même calcul effectué sur ces deux modules ne donnera pas le même résultat. Cela revient à effectuer le calcul sur deux matériaux différents. Une méthode pour quantifier l'inconsistance des bases de données est proposée dans ce chapitre ainsi qu'un outil pour les rendre plus consistantes. Ils sont mis en œuvre pour la caractérisation du monocristal  $\text{KNbO}_3$  qui, comme expliqué dans la paragraphe 3.1.2, est un des meilleurs candidats sans plomb pour la transduction ultrasonore.

## 5.1 Caractérisation piézoélectrique standard

Avant de commencer la caractérisation en tant que telle, la notation spécifique à la caractérisation piézoélectrique [25] du matériau considéré ( $\text{KNbO}_3$ ) est détaillée.

### 5.1.1 Notation IEEE et $\text{KNbO}_3$

**Notation IEEE [25]** L'échantillon utilisé (sous forme de plaque) pour la transduction et découpé à partir d'un monocristal KN peut avoir une orientation arbitraire par rapport aux axes cristallographiques du matériau X, Y et Z (préférentiellement notés  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  et  $\vec{c}$  par les cristallographes). Les notations utilisées par la norme IEEE viennent des trois orientations du repère d'un parallélépipède rectangle : l'épaisseur  $t$ , la largeur  $w$  et la longueur  $l$ . L'origine de ce repère est un sommet du solide. Il est important de les faire apparaître clairement comme le montre la Figure 5.1.

Lorsque le repère du solide est défini, son orientation par rapport au repère cristallographique peut être donnée par l'information de découpe. Cette dernière suit la convention d'écriture suivante : la première lettre (X, Y ou Z) indique la direction de l'épaisseur de la plaque, la seconde (X, Y ou Z) indique sa longueur et les lettres suivantes sont les axes de la plaque ( $w$ ,  $l$  et  $t$ ) pris successivement comme axe de rotation de cette dernière. Un exemple de symbole avec une rotation la plus générale a la forme  $(XYtlw)\Phi/\Theta/\Psi$ . Dans la Figure 5.1, deux exemples de découpe sont donnés pour une plaque et pour un barreau. Les électrodes, disposées de cette manière, exciteront le mode épaisseur  $k_t$  (5.1.a)) et le mode barreau  $k_{33}$  (5.1.b)). Cette notation est fonctionnelle pour le domaine des applications piézoélectriques mais il en existe d'autres, en particulier, en cristallographie où on parlera de coupe  $ac - 45^\circ$  qui peut correspondre à  $(XZl) - 45^\circ$ . Elle ne contient cependant pas autant d'informations que la notation IEEE sur les axes du parallélépipède. Il est néanmoins nécessaire de préciser le parallélépipède utilisé (plaque ou barreau, par exemple). En effet, la notation  $(YXt) - 45^\circ$  pour un barreau équivaut à  $(XYl) - 45^\circ$  pour une plaque.

**Évolution du  $\text{KNbO}_3$**  L'intérêt que suscite le monocristal de  $\text{KNbO}_3$  n'est pas nouveau comme le montrent des publications datant des années 1970 pour caractériser sa structure et ses propriétés optiques, mécaniques et diélectriques [117, 118, 119, 120].

Wiesendanger [119], en 1973, a été le premier à donner des caractéristiques électromécaniques. Puis, en 1993, Zgonik *et al.* [17] ont fourni des caractéristiques complémentaires pour constituer la première base de données aussi complète sur ce matériau. Il faut attendre les années 2000 pour que Nakamura *et al.* [16] publient une étude théorique sur les orientations de découpe de plaque dans le monocristal pour favoriser certains coefficients de couplage. En utilisant la base de données de Zgonik et la notation décrite dans le paragraphe précédent, ils prévoient les propriétés pour une découpe  $(XYl) - 49.5^\circ$  et obtiennent un  $k_t$  égal à 69%. Le  $k_{33}$  de 83% est donné, lui, pour la coupe  $(YXt) - 44.4^\circ$ . En prenant donc une coupe de ce monocristal à  $(YXt) - 45^\circ$  avec les notations du barreau, un compromis est fait pour l'obtention de bons  $k_{33}$  et  $k_t$ .

Quelques années plus tard, Nakamura lui-même vérifie expérimentalement quelques unes de ses prédictions [90], à l'exception du  $k_{33}$ , sur un matériau dont la provenance n'est pas spécifiée. Davis *et al.* [121] fabriquent leur propre monocristal pour atteindre des valeurs

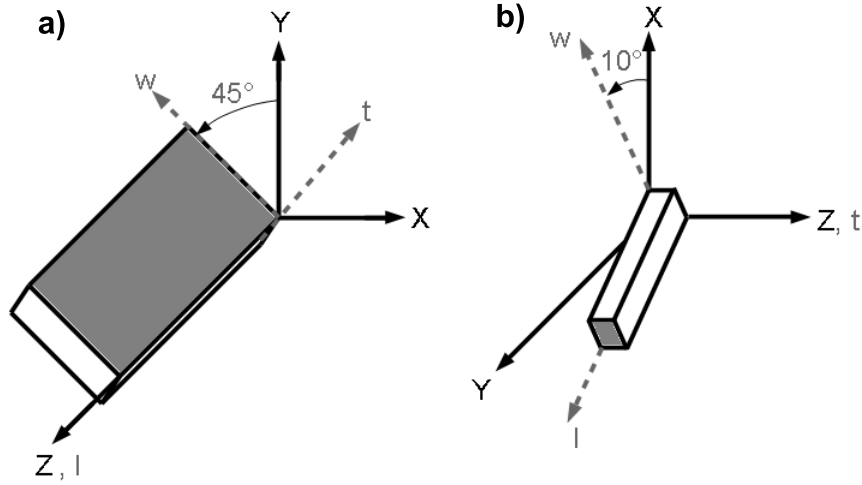


FIGURE 5.1 – Illustration d’une découpe de a) plaque à  $(XZl) - 45^\circ$  et b) barreau à  $(ZYt) - 10^\circ$ . Les surfaces grises représentent les électrodes.

comparables à ce qui a été prédit sur le  $k_t$  pour cette coupe spécifique. Les vérifications ont été faites mais il n’y a pas, à l’heure actuelle, de base de données intégrale du monocristal  $\text{KNbO}_3$  pour cette coupe. Or, elle est indispensable si des simulations numériques à base de ce matériau prétendent être faites.

Cette partie a pour but de fournir une base de données du monocristal  $\text{KNbO}_3$  pour la coupe  $(YXt) - 45^\circ$ . Une attention particulière est également portée sur un nouveau problème mis en avant pour ce genre de données : la consistance.

### 5.1.2 Préparation des échantillons

**Plaque d’origine** Le choix de fournisseur de  $\text{KNbO}_3$  s’est tourné vers la société FEE GmbH [122]. Une fois cet échantillon reçu de dimensions  $20 \times 20 \times 3 \text{ mm}^3$ , l’équipe du SPCTS (Science des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface) de l’université de Limoges a vérifié l’orientation de la plaque achetée par rapport aux axes cristallographiques du  $\text{KNbO}_3$  par la diffraction aux rayons X (sur une petite partie). Grâce à cette mesure, la classe de symétrie du cristal peut également être vérifiée (orthorhombique à température ambiante, groupe  $mm2$ ) et obtenir les paramètres de maille qui sont les normes des vecteurs  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  et  $\vec{c}$ . Leurs valeurs correspondent à celles déjà publiées dans la littérature [117] :  $\|\vec{a}\| = a = 5.697 \text{ \AA}$ ,  $\|\vec{b}\| = b = 3.971 \text{ \AA}$  et  $\|\vec{c}\| = c = 5.723 \text{ \AA}$ . La maille est représentée Figure 5.2.a) et son orientation par rapport à la plaque qui sera caractérisée, est dessinée Figure 5.2.b). Le repère de la plaque est nommé  $(XYZ)$  pour des facilités de compréhension pour la suite. Il correspond au repère  $(wlt)$  que donne la notation IEEE.

Comme précisé dans la partie 1.1.1, les monocristaux de cette taille sont rarement monodomaines. Des mesures complémentaires ont alors été faites pour identifier et quantifier les différents domaines présents dans l’échantillon. En plus de l’orientation principale des domaines dans la plaque, représentée Figure 5.2.b), quelques domaines sont désorientés par une rotation de  $90^\circ$  autour de l’axe cristallographique  $c$ . Leur faible nombre permet

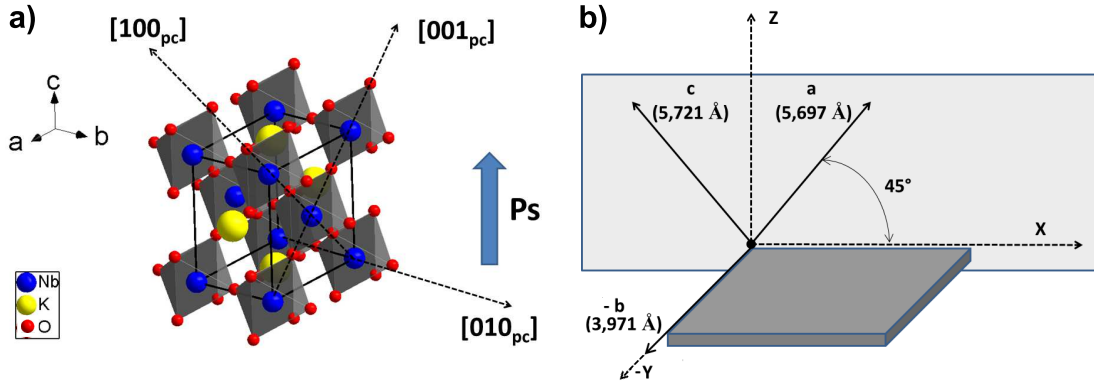


FIGURE 5.2 – Les caractéristiques du  $\text{KNbO}_3$  : a) de maille et de sa polarisation spontanée  $P_s$  et b) d'orientation par rapport au repère (XYZ) de la plaque achetée.

encore de considérer le matériau comme orthorhombique pour la caractérisation électromécanique. Dans le cas où il y aurait eu un nombre équivalent de ces deux types de domaine, il est permis de considérer la structure du matériau à caractériser comme tétragonale [123].

**Découpe** Pour obtenir une base de données complète du matériau, il faut tout d'abord mesurer le plus de constantes élastiques, piézoélectriques ou diélectriques possibles. Pour une structure orthorhombique, toutes les constantes indépendantes à déterminer sont représentées dans la Table 5.1 par type de variables indépendantes et dont le quart du tableau rassemble les tenseurs  $W$  de cette manière :

$$\begin{array}{c|c} W_{\text{élas}} & {}^tW_{\text{piézo}} \\ \hline W_{\text{piézo}} & W_{\text{diélec}} \end{array}$$

où l'exposant  $t$  est la transposée. Cette association est souvent utilisée pour avoir une matrice carrée et donc, plus facile à utiliser pour la programmation de calculs. Usuellement, les constantes du tenseur élastique peuvent être déterminées par mesure directe [124], c'est à dire en utilisant une onde ultrasonore par transmission dans le matériau et en mesurant son temps de vol. De cette manière, la vitesse est déterminée et la constante élastique effective  $c_{\text{eff}}$  peut être calculée. Ce type de mesure n'a pas pu être réalisée au laboratoire, les échantillons étant trop petits pour le matériel disponible. Néanmoins, le deuxième type de mesure qui peut être réalisé, la technique par résonance [25], permet de déterminer à la fois les constantes élastiques, piézoélectriques et diélectriques à l'exception d'une : la constante élastique  $c_{66}^E$  (et parallèlement,  $c_{66}^D$ ,  $s_{66}^E$  et  $s_{66}^D$ ) qui n'est pas couplée électriquement. Pour effectuer les mesures par la technique de résonance, différents échantillons doivent être découpés dans la plaque d'origine. Leurs dimensions permettront de favoriser certains modes de vibrations et de les identifier sur l'impédance électrique mesurée. La place des électrodes, elle, excitera un effet transverse ou longitudinal comme expliqué section 1.1.3. Par la suite, le nom du mode et son coefficient de couplage seront indifféremment utilisés.

## 5.1. CARACTÉRISATION PIÉZOÉLECTRIQUE STANDARD

TABLE 5.1 – Constantes élastiques, piézoélectriques et diélectriques d’une structure orthorhombique dont celles fixées par la suite (soulignées) et celles mesurées (étoilées). Le symbole  $\times$  représente les valeurs symétriques.

$c_{11}^D$	$c_{12}^D$	$c_{13}^D$	.	.	.	.	.	$\times$	$s_{11}^{E*}$	$s_{12}^{E*}$	$s_{13}^E$	.	.	.	.	.	$\times$
$\times$	$c_{22}^D$	$c_{23}^D$	.	.	.	.	.	$\times$	$\times$	$s_{22}^{E*}$	$s_{23}^E$	.	.	.	.	.	$\times$
$\times$	$\times$	$c_{33}^{D*}$	.	.	.	.	.	$\times$	$\times$	$\times$	$s_{33}^{E*}$	.	.	.	.	.	$\times$
.	.	.	$c_{44}^D$	.	.	.	.	$\times$	.	.	.	$s_{44}^E$	.	.	.	$\times$	.
.	.	.	.	$c_{55}^{D*}$	.	$\times$	.	.	.	.	.	$s_{55}^E$	.	$\times$	.	.	.
.	.	.	.	.	$c_{66}^D$	.	.	.	.	.	.	.	$s_{66}^E$	.	.	.	.
.	.	.	.	$h_{15}$	.	$\beta_{11}^S$	.	.	.	.	.	$d_{15}$	.	$\epsilon_{11}^{T*}$	.	.	.
.	.	.	$h_{24}$	.	.	.	$\beta_{22}^S$	.	.	.	.	$d_{24}$	.	.	.	$\epsilon_{22}^T$	.
$h_{31}$	$h_{32}$	$h_{33}$	.	.	.	.	.	$\beta_{33}^S$	$d_{31}^*$	$d_{32}^*$	$d_{33}^*$	.	.	.	.	.	$\epsilon_{33}^{T*}$
$s_{11}^D$	$s_{12}^D$	$s_{13}^D$	.	.	.	.	.	$\times$	$c_{11}^E$	$c_{12}^E$	$c_{13}^E$	.	.	.	.	.	$\times$
$\times$	$s_{22}^D$	$s_{23}^D$	.	.	.	.	.	$\times$	$\times$	$c_{22}^E$	$c_{23}^E$	.	.	.	.	.	$\times$
$\times$	$\times$	$s_{33}^{D*}$	.	.	.	.	.	$\times$	$\times$	$\times$	$c_{33}^{E*}$	.	.	.	.	.	$\times$
.	.	.	$s_{44}^D$	.	.	.	.	$\times$	.	.	.	$c_{44}^E$	.	.	.	$\times$	.
.	.	.	.	$s_{55}^D$	.	$\times$	.	.	.	.	.	$c_{55}^{E*}$	.	$\times$	.	.	.
.	.	.	.	.	$s_{66}^D$	.	.	.	.	.	.	.	$c_{66}^E$	.	.	.	.
.	.	.	.	$g_{15}$	.	$\beta_{11}^T$	.	.	.	.	.	$e_{15}^*$	.	$\epsilon_{11}^{S*}$	.	.	.
.	.	.	$g_{24}$	.	.	.	$\beta_{22}^T$	.	.	.	.	$e_{24}$	.	.	.	$\epsilon_{22}^{S*}$	.
$g_{31}$	$g_{32}$	$g_{33}$	.	.	.	.	.	$\beta_{33}^T$	$e_{31}$	$e_{32}$	$e_{33}^*$	.	.	.	.	.	$\epsilon_{33}^{S*}$

Pour cela, voici les correspondances avec le nom anglais qui est plus précis :

- Le coefficient de couplage du mode latéral (*transverse length-extensional*) s’écrit  $k_{31}$ .
- Celui du mode barreau (*longitudinal length-extensional*) est noté  $k_{33}$ .
- Le mode radial (*transverse radial*) correspond à  $k_p$ .
- Le mode de cisaillement (*longitudinal thickness-shear*) avec une excitation électrique perpendiculaire au vecteur d’onde est noté  $k_{15}$ .
- Enfin, le mode épaisseur (*longitudinal thickness-extensional*), le plus utilisé dans la transduction ultrasonore, est écrit  $k_t$ .

Il existe encore de nombreux modes qui peuvent être excités et sont répertoriés dans l’ouvrage d’Ikeda [1] mais nous utiliserons uniquement ceux nommés ici car, à eux seuls, ils permettent de déterminer une grande partie des tenseurs. L’énergie et les outils déployés pour fabriquer les autres échantillons seraient disproportionnés pour obtenir seulement quelques constantes en plus, voire impossibles vu les dimensions de départ de la plaque.

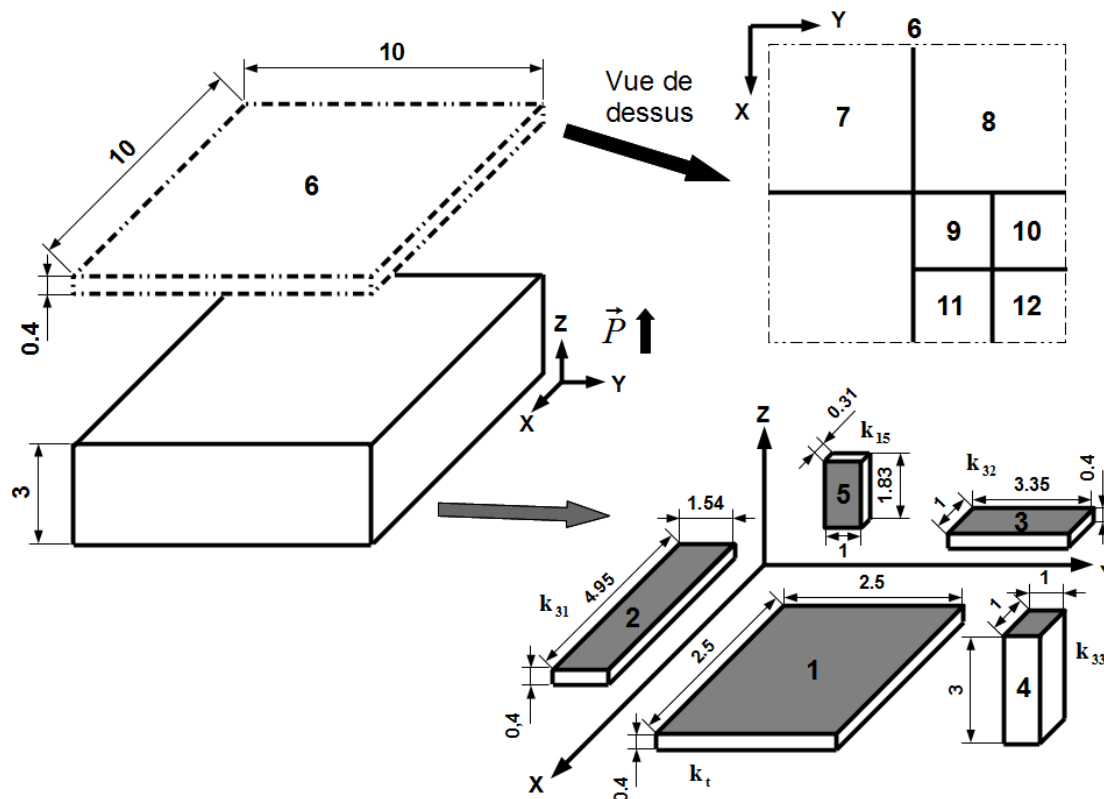


FIGURE 5.3 – Découpes effectuées sur la plaque d'origine. Toutes les dimensions sont données en millimètres et les électrodes sont en gris.

En plus de ces résonateurs, d'autres plaques sont découpées pour étudier le comportement des propriétés piézoélectriques en fréquence et vérifier l'homogénéité du matériau à plus grande échelle, c'est à dire voir s'il existe de grands domaines orientés différemment. La totalité de ces échantillons a été taillée par la société Vernon, et ils sont représentés sur la Figure 5.3. Le coefficient de couplage  $k_{32}$  apparaît. Il a exactement la même nature que le  $k_{31}$  mais dans la direction Y du repère de la plaque. Logiquement, l'échantillon permettant de mesurer le  $k_{24}$  aurait dû également apparaître mais, bien que mesuré, les valeurs restent inexploitable pour les mesures de fréquences de résonance et d'antirésonance des différents modes.

Pratiquement, les dimensions de toutes les découpes faites dans un quart de l'échantillon d'origine sont données sur la Figure 5.3. La plaque numérotée 6 est divisée par la suite en plusieurs fragments qui sont toujours des plaques, pour vérifier l'homogénéité comme précisé précédemment. Dans la norme IEEE [25], le rapport des dimensions pour découpler les modes radiaux du mode épaisseur vaut 8 mais pour les autres modes, un rapport de 3 suffit. À cause des dimensions très petites de la plaque d'origine, certains échantillons sont à la limite de ce critère. La Figure 5.4 est la mesure de l'impédance électrique de l'échantillon 2 pour caractériser le mode  $k_{31}$ . Cette mesure illustre le découplage des modes. Le mode  $k_{31}$  à caractériser se trouve autour de 650 kHz, loin de tous les autres qui sont aux alentours de 1.6 MHz (mode épaisseur, autre mode latéral, etc.).

## 5.1. CARACTÉRISATION PIÉZOÉLECTRIQUE STANDARD

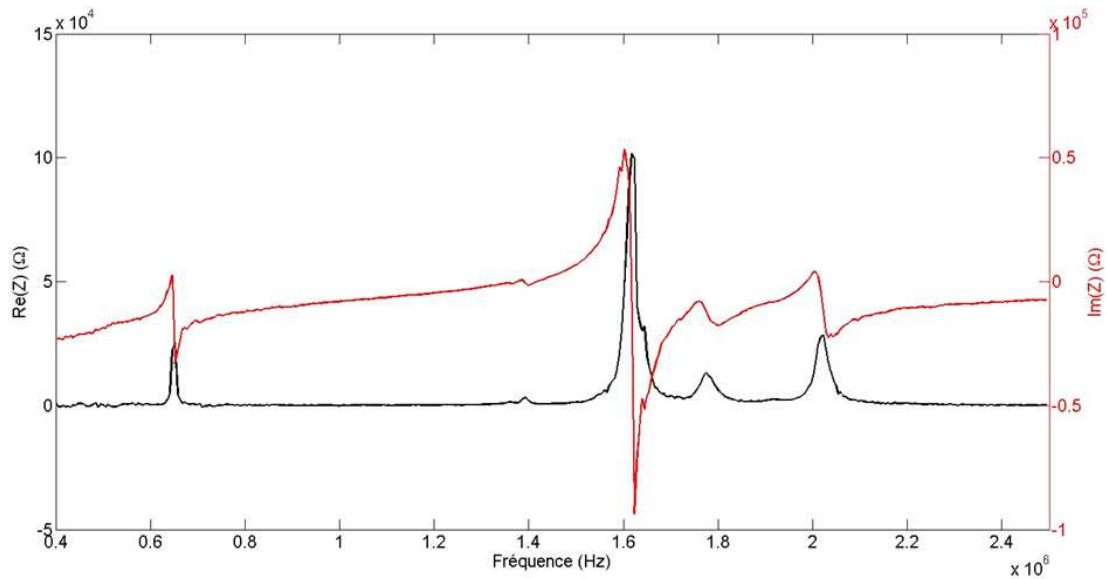


FIGURE 5.4 – Parties réelle et imaginaire de l'impédance électrique de l'échantillon 2 (mode latéral).

### 5.1.3 Mesures et détermination des constantes

Dans ce paragraphe, la distinction est faite entre les constantes mesurées et déduites. Les constantes mesurées sont calculées à partir de mesures directes de fréquences en utilisant les relations des coefficients de couplage de la Table 5.2 et de l'expression (1.24) reliant la constante effective  $c_{\text{eff}}$  à la vitesse de l'onde  $v$ . Les constantes déduites, quant à elles, sont calculées **uniquement** à partir des constantes mesurées et en utilisant les relations intercoefficients de la Table 1.2. La masse volumique du monocristal, mesurée par la méthode d'Archimède, est la première valeur à obtenir. Elle vaut  $4575\text{kg/m}^3$ .

**Constantes mesurées** À partir de la mesure de l'impédance électrique faite grâce à l'analyseur d'impédance HP4395A avec son kit spécifique d'impédance, les pics de résonances des modes qui nous intéressent sont repérés grâce aux dimensions des échantillons *via* la relation (1.14). Tout d'abord, il est nécessaire de clarifier la nature des modes observés selon les échantillons mesurés. Les correspondances sont données dans la Table 5.2 avec les expressions analytiques des coefficients de couplage et de la constante effective  $c_{\text{eff}}$ . Maintenant que les informations théoriques ont été données pour chaque échantillon, les mesures des fréquences de résonance et d'antirésonance vont servir à calculer la vitesse de l'onde, grâce à la relation (1.14), et le coefficient de couplage en choisissant une des deux expressions (1.28) ou (1.29) en fonction de l'effet longitudinal ou transversal du mode. Les résultats sont donnés dans la Table 5.3.

## 5.1. CARACTÉRISATION PIÉZOÉLECTRIQUE STANDARD

TABLE 5.2 – Nature des modes observés en fonction des échantillons mesurés et représentés sur la Figure 5.3. Les expressions des coefficients de couplage et de la constante élastique effective  $c_{\text{eff}}$  en fonction des paramètres du matériau sont également données.

Échantillon n°	Mode (effet)	Expression de $k^2$	$c_{\text{eff}}$
1	Épaisseur, $k_t$ (Longitudinal)	$\frac{h_{33}^2}{\beta_{33}^S c_{33}^D}, \frac{e_{33}^2}{\epsilon_{33}^S c_{33}^D}$	$c_{33}^D$
2	Latéral, $k_{31}$ (Transversal)	$\frac{d_{31}^2}{\epsilon_{33}^T s_{11}^E}$	$\frac{1}{s_{11}^E}$
3	Latéral, $k_{32}$ (Transversal)	$\frac{d_{32}^2}{\epsilon_{33}^T s_{22}^E}$	$\frac{1}{s_{22}^E}$
4	Barreau, $k_{33}$ (Longitudinal)	$\frac{d_{33}^2}{\epsilon_{33}^T s_{33}^E}$	$\frac{1}{s_{33}^D}$
5	Cisaillement, $k_{15}$ (Longitudinal)	$\frac{d_{15}^2}{\epsilon_{11}^T s_{55}^E}, \frac{e_{15}^2}{\epsilon_{11}^S c_{55}^D}$	$c_{55}^D$

TABLE 5.3 – Les mesures des fréquences de résonance  $f_r$  et d'antirésonance  $f_a$  pour chaque échantillon avec les calculs correspondants des vitesses  $v$  et des coefficients de couplage  $k$ . La fréquence écrite en gras est la fréquence utilisée pour le calcul de la vitesse selon les lois (1.25) et (1.26).

Échantillon n°	$f_r, f_a$	$v$ (en m/s)	$k$
1	8.355 MHz, <b>10.055 MHz</b>	8044	0.595
2	<b>647.46 kHz</b> , 660.47 kHz	6410	0.219
3	<b>673.64 kHz</b> , 718.01 kHz	4513	0.388
4	1.099 MHz, <b>1.241 MHz</b>	7446	0.502
5	1.432 MHz, <b>1.490 MHz</b>	5453	0.304



## 5.1. CARACTÉRISATION PIÉZOÉLECTRIQUE STANDARD

TABLE 5.4 – Détermination des constantes des tenseurs du matériau ou appelées aussi constantes mesurées.

mode	Constante élastique déterminée par $c_{\text{eff}}$	2 <sup>ème</sup> constante déduite (moyen de calcul)	Dernière constante déduite avec $k$
$k_t$	$c_{33}^D = 296.03 \text{ GPa}$	$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0 = 34.5$ (avec la courbe $1/jC_0\omega$ )	$e_{33} = 5.66 \text{ Cm}^{-2}$
$k_{33}$	$s_{33}^D = 3.94 \text{ pm}^2\text{N}^{-1}$	$d_{33} = 28.95 \text{ pCN}^{-1}$ (mesuré au $d_{33}$ -mètre)  $s_{33}^E = 5.27 \text{ pm}^2\text{N}^{-1}$ (grâce à $s_{33}^D = s_{33}^E(1 - k_{33}^2)$ )	$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0 = 71.3$
$k_{31}$	$s_{11}^E = 5.32 \text{ pm}^2\text{N}^{-1}$	$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0 = 71.3$ (valeur issue du $k_{33}$ )	$d_{31} = 12.69 \text{ pCN}^{-1}$
$k_{32}$	$s_{22}^E = 10.73 \text{ pm}^2\text{N}^{-1}$	$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0 = 71.3$ (valeur issue du $k_{33}$ )	$d_{32} = -31.93 \text{ pCN}^{-1}$
$k_{15}$	$c_{55}^D = 136.06 \text{ GPa}$	$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0 = 87$ (avec la courbe $1/jC_0\omega$ )	$e_{15} = 3.11 \text{ Cm}^{-2}$

À cette étape, grâce aux mesures, les caractéristiques du matériau vont pouvoir être calculées. Les résultats sont donnés dans la Table 5.4 en effectuant les calculs colonne par colonne (et de gauche à droite), dans l'ordre suivant :

1. La **constante élastique** effective est la première à être calculée grâce à la relation (1.24) soit  $c_{\text{eff}} = \rho v^2$ .
2. Une deuxième constante doit être calculée pour déterminer la 3<sup>ème</sup> et dernière constante de l'expression analytique du coefficient de couplage. Il s'agit généralement de la **constante diélectrique** à déformation constante  $\epsilon^S$  qui se calcule en approximant la mesure de la partie imaginaire de l'impédance électrique par  $1/(jC_0\omega)$  où  $C_0$  est la capacité bloquée du matériau. Elle est reliée à  $\epsilon^S$  par la relation :

$$\epsilon^S = \frac{C_0 d}{A} \quad (5.1)$$

où  $d$  est la distance inter-électrodes et  $A$  la surface de l'électrode. En effet, l'estimation de  $\epsilon^S$  se fait à des fréquences hautes où l'impédance n'est plus influencée par des modes de vibrations de la structure alors que  $\epsilon^T$  est donnée par une capacité de basse fréquence.

3. Enfin, ayant bloqué deux paramètres sur les trois qui servent à exprimer le coefficient de couplage électromécanique dont la valeur est connue, la constante piézoélectrique peut être déduite.

## 5.1. CARACTÉRISATION PIÉZOÉLECTRIQUE STANDARD

---

L'unique cas qui diffère de cette démarche est celui du mode  $k_{33}$ . En effet, la constante élastique effective ( $1/s_{33}^D$ ) ne participe pas à l'expression de son coefficient de couplage. Il est alors nécessaire d'en déduire la constante élastique qui y participe ( $s_{33}^E$ ) grâce à l'égalité  $s_{33}^D = s_{33}^E(1 - k_{33}^2)$  [26]. Avec ce même type de relation [26, 125], il est possible de déterminer 2 autres constantes élastiques et une constante diélectrique. En faisant l'application numérique sur les expressions :

$$\begin{aligned} - c_{33}^E &= c_{33}^D(1 - k_t^2), c_{33}^E = 191.23 \text{ GPa} \\ - c_{55}^E &= c_{55}^D(1 - k_{15}^2), c_{55}^E = 123.49 \text{ GPa} \\ - \epsilon_{11}^T &= \epsilon_{11}^S/(1 - k_{15}^2), \epsilon_{11}^T/\epsilon_0 = 95.9 \end{aligned}$$

En plus de ces 17 constantes mesurées, la valeur de  $\epsilon_{22}^S/\epsilon_0$  peut être ajoutée grâce à l'échantillon  $k_{24}$  qui devait permettre de mesurer les constantes  $c_{44}^D$  et  $e_{24}$ . En effet, la partie imaginaire a pu être correctement mesurée. Elle vaut 699.2. La relation utilisée pour trouver  $\epsilon_{22}^T$  ne peut pas être utilisée car la valeur du  $k_{24}$  n'est pas certaine à cause de fréquences de résonance et d'antirésonance perturbées. Enfin, grâce au mode  $k'_{31}$  qui est visible sur la courbe d'impédance de l'échantillon n°3 et dont l'expression analytique est donnée dans la Table 4.1, la valeur de  $s_{12}^E$  peut-être calculée et vaut  $-1.22 \text{ pm}^2\text{N}^{-1}$ .

Dans de nombreux articles ou livres, certaines relations peuvent être trouvées mais doivent être utilisées de façon avertie. En effet, il n'est pas exact d'écrire la parfaite égalité pour la relation :

$$\epsilon_{33}^S = \epsilon_{33}^T(1 - k_{33}^2). \quad (5.2)$$

La permittivité calculée de cette manière ne correspond pas exactement à la permittivité diélectrique à déformation constante comme cela est expliqué dans l'ouvrage d'Ikeda [1]. Néanmoins, la valeur est proche. Il est important de dissocier ces petites différences pour les adapter en fonction de la précision souhaitée sur les résultats finaux. Dans notre cas, l'utilisation d'un  $d_{33}$ -mètre nous permet d'éviter l'utilisation de cette relation mais, dans le cas contraire, cette approximation aurait été nécessaire pour continuer. En analysant les mesures, le  $k_t$  mesuré est plus grand que le  $k_{33}$  de 9%. Habituellement, l'inverse est attendu depuis l'approximation donnée par Bernard Jaffe dans son livre [126] (p.29) :

$$k_{33}^2 \simeq k_t^2 + k_p^2 - k_p^2 k_t^2 \quad (5.3)$$

où  $k_p$  est le coefficient de couplage électromécanique du mode radial. En plus de la répétabilité vérifiée de la mesure de l'échantillon 4 (barreau), le  $k_{33}$  a pu également être mesuré par le biais d'un composite 1-3 fabriqué avec ce même matériau [127]. En effet, en mesurant le  $k_t$  de ce composite, la valeur du  $k_{33}$  de la phase piézoélectrique est obtenue, comme expliqué dans la partie 2.2. Or le  $k_t$  vaut 47%, ce qui est très proche de notre  $k_{33}$  mesuré sur le barreau (50,2%). La valeur est donc confirmée. Dans la littérature [128, 2], quelques exemples de ce même cas peuvent être rencontrés. Le mode épaisseur ( $k_t$ ) et le mode barreau ( $k_{33}$ ) sont en fait de même nature. Seules les dimensions de l'échantillon les différencient. Il a été montré par Kim *et al.* [129] que le  $k_t$  et le  $k_{33}$  sont les cas extrêmes d'une seule et même fonction  $k$  qui varie en fonction d'un paramètre de forme  $G$  qui est le rapport de l'épaisseur de l'échantillon sur son rayon (il s'agit d'un disque). Lorsque  $G \rightarrow 0$ ,  $k = k_t$  et quand  $G \rightarrow \infty$ ,  $k = k_{33}$ . Pour les deux exemples donnés dans leur publication (PZT-5 et BaTiO<sub>3</sub>), cette fonction est strictement croissante sur  $G$  mais cela n'est pas démontré dans le cas général. N'ayant aucune raison assez fortement justifiée pour

## 5.1. CARACTÉRISATION PIÉZOÉLECTRIQUE STANDARD

---

TABLE 5.5 – Rappel des relations intercoefficients.

$\beta_{km}^S \epsilon_{ml}^S = \delta_{kl}$	(5.4)	$d_{kp} = \epsilon_{kl}^T g_{lp}$	(5.12)
$\beta_{km}^T \epsilon_{ml}^T = \delta_{kl}$	(5.5)	$e_{kp} = \epsilon_{kl}^S h_{lp}$	(5.13)
$\epsilon_{kl}^T - \epsilon_{kl}^S = d_{kn} e_{ln}$	(5.6)	$g_{kp} = \beta_{kl}^T d_{lp}$	(5.14)
$\beta_{kl}^S - \beta_{kl}^T = g_{kn} h_{ln}$	(5.7)	$h_{kp} = \beta_{kl}^S e_{lp}$	(5.15)
$c_{pn}^E s_{nq}^E = \delta_{pq}$	(5.8)	$d_{kq} = e_{kp} s_{pq}^E$	(5.16)
$c_{pn}^D s_{nq}^D = \delta_{pq}$	(5.9)	$e_{kq} = d_{kp} c_{pq}^E$	(5.17)
$c_{pq}^D - c_{pq}^E = e_{mp} h_{mq}$	(5.10)	$g_{kq} = h_{kp} s_{pq}^D$	(5.18)
$s_{pq}^E - s_{pq}^D = d_{mp} g_{mq}$	(5.11)	$h_{kq} = g_{kp} c_{pq}^D$	(5.19)

invalider les mesures de  $k_{33}$ , nous conserverons les constantes liées à cette valeur comme constantes mesurées. Parmi les 68 constantes indépendantes des tenseurs d'un matériau piézoélectrique à structure orthorhombique représentées dans la Table 5.1, 19 sont déjà déterminées par la mesure. Elles sont marquées par une étoile. Ces constantes mesurées sont maintenant fixées et feront partie de la base de données finale du matériau. Il reste cependant à déterminer toutes les autres. Pour ce faire, le seul moyen est de les calculer avec les expressions listées dans la Table 5.5.

**Constantes déduites** Pour déterminer le plus de constantes possibles, les expressions de la Table 1.2 sont développées analytiquement une par une et sont redonnées dans la Table 5.5 pour une meilleure lisibilité. À partir des constantes mesurées dans le paragraphe précédent, de nombreuses composantes des tenseurs peuvent être déduites grâce à ces relations. La démarche est résumée dans la Table 5.6.

Pour ces calculs, plusieurs relations peuvent être utilisées et sont mentionnées pour chaque cas. Les résultats, en prenant les différentes expressions possibles, sont comparés et de faibles variations sont à noter. Ces différences sur les résultats sont les conséquences d'une inconsistance déjà due aux mesures. Dans notre cas, elles sont très faibles mais elles pourraient être nettement plus prononcées si les mesures n'étaient pas faites proprement ou que le matériau avait de grandes variations locales de ses propriétés.

Cependant, il est possible de calculer d'autres constantes en prenant en compte plusieurs relations en même temps pour avoir autant d'équations que d'inconnues à déterminer. Tel est le cas pour le calcul de  $e_{31}$ ,  $e_{32}$ ,  $s_{13}^E$  et  $s_{23}^E$ . En sélectionnant 4 équations provenant des

## 5.1. CARACTÉRISATION PIÉZOÉLECTRIQUE STANDARD

---

relations (5.16) et (5.6), le système suivant est obtenu avec les inconnues en rouge :

$$\begin{cases} d_{31} &= e_{33}s_{13}^E + e_{32}s_{12}^E + e_{31}s_{11}^E \\ d_{32} &= e_{33}s_{23}^E + e_{32}s_{22}^E + e_{31}s_{12}^E \\ d_{33} &= e_{33}s_{33}^E + e_{32}s_{23}^E + e_{31}s_{13}^E \\ \epsilon_{33}^T - \epsilon_{33}^S &= d_{33}e_{33} + d_{32}e_{32} + d_{31}e_{31} \end{cases} \quad (5.20)$$

En exprimant chaque inconnue en fonction de l'inconnue  $e_{32}$ , le système a la forme :

$$\begin{cases} e_{31} &= A_1 - \frac{d_{32}e_{32}}{d_{31}} \\ s_{23}^E &= A_4 + A_2e_{32} \\ s_{13}^E &= A_5 + A_3e_{32} \\ 0 &= B_1e_{32}^2 + B_2e_{32} + B_3 \end{cases} \quad (5.21)$$

avec les grandeurs intermédiaires

$$\begin{cases} A_1 &= \frac{\epsilon_{33}^T - \epsilon_{33}^S - d_{33}e_{33}}{d_{31}} \\ A_2 &= \frac{1}{e_{33}} \left( \frac{d_{32}s_{12}^E}{d_{31}} - s_{22}^E \right) \\ A_3 &= \frac{1}{e_{33}} \left( \frac{d_{32}s_{11}^E}{d_{31}} - s_{12}^E \right) \\ A_4 &= \frac{d_{32} - s_{12}^E A_1}{e_{33}} \\ A_5 &= \frac{d_{32} - s_{11}^E A_1}{e_{33}} \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} B_1 &= A_2 - \frac{d_{32}A_3}{d_{31}} \\ B_2 &= A_4 + A_1A_3 - A_5 \\ B_3 &= e_{33}s_{33}^E + A_1A_5 - d_{33} \end{cases} \quad (5.22)$$

Dans la quatrième équation du système (5.21), il suffit de résoudre une équation du second degré pour avoir la valeur de  $e_{32}$ . Avec nos valeurs mesurées, son discriminant a une valeur négative, ce qui implique une valeur de  $e_{32}$  complexe alors que les composantes des tenseurs sont définies réelles. Cet exemple d'aberration a déjà été mis en évidence [116] et son origine est attribuée à l'impossibilité pour les valeurs utilisées de co-exister (inconsistance). Pour montrer que cela ne vient pas exclusivement de nos constantes mesurées, la détermination du  $e_{32}$  est faite de la même manière mais avec des bases de données complètes déjà publiées. Pour le cas d'une structure orthorhombique, la base de données d'un monocristal à base de plomb [130] amènera également à un discriminant négatif. Pour des structures tétragonales, une base de données de 2004 [131] aura la même conséquence. Enfin, ces mêmes auteurs font attention à la consistance de la base de données finale d'un monocristal tétragonal sans plomb [123] et cette dernière a, en effet, un discriminant positif. Le calcul de  $e_{32}$  (qui est égal au  $e_{31}$  dans ce cas) qui s'en suit donne exactement la même valeur que celle publiée. La preuve est alors faite que ces aberrations existent et peuvent être évitées en prenant soin de vérifier que les constantes qui sont calculées peuvent co-exister. La Table 5.1 récapitule les constantes mesurées et déduites déterminées jusqu'à présent.

## 5.1. CARACTÉRISATION PIÉZOÉLECTRIQUE STANDARD

TABLE 5.6 – Constantes déduites et ne présentant pas de grandes inhomogénéités.

Constantes déduites	Constantes mesurées	Relations utilisées	Valeurs respectives
$\beta_{11}^S, \beta_{22}^S, \beta_{33}^S$ (en $10^9 \text{ mF}^{-1}$ )	$\epsilon_{11}^S, \epsilon_{22}^S, \epsilon_{33}^S$	(5.4)	1.30, 0.16, 3.28
$\beta_{11}^T, \beta_{33}^T$ (en $10^9 \text{ mF}^{-1}$ )	$\epsilon_{11}^T, \epsilon_{33}^T$	(5.5)	1.18, 1.58
$d_{15}$ (en $10^{-12} \text{ CN}^{-1}$ )	$e_{15}, \epsilon_{11}^T, \epsilon_{11}^S$	(5.6)	25.33
	$e_{15}, c_{55}^E$	(5.17)	25.18
$h_{33}, h_{15}$ (en $10^9 \text{ Vm}^{-1}$ )	$(e_{33}, c_{33}^D, c_{33}^E), (e_{15}, c_{55}^D, c_{55}^E)$	(5.10)	18.52, 4.04
	$(e_{33}, \epsilon_{33}^S), (e_{15}, \epsilon_{11}^S)$	(5.13)	18.54, 4.04
$g_{33}$ (en $\text{VmN}^{-1}$ )	$d_{33}, s_{33}^E, s_{33}^D$	(5.11)	0.0459
	$d_{33}, \epsilon_{33}^T$	(5.12)	0.0459
$g_{31}, g_{32}$ (en $\text{VmN}^{-1}$ )	$(d_{31}, \epsilon_{33}^T), (d_{32}, \epsilon_{33}^T)$	(5.12)	0.0201, -0.0506
$s_{55}^E$ (en $10^{-12} \text{ m}^2\text{N}^{-1}$ )	$c_{55}^E$	(5.8)	8.10
$s_{55}^D$ (en $10^{-12} \text{ m}^2\text{N}^{-1}$ )	$c_{55}^D$	(5.9)	7.35

## 5.2 Consistance de la base de données

Comme il a été montré dans la section précédente, certaines valeurs de la base de données complète d'un matériau piézoélectrique ne peuvent pas co-exister car elles amènent à des aberrations. Une base de données menant à des aberrations est dite inconsistante. Dans notre cas, ce sont les valeurs mesurées qui ont conduit à une valeur de  $e_{32}$  impossible. À part modifier les valeurs mesurées, il est alors impossible, *a posteriori*, d'éviter ce type d'inconsistance liée aux mesures. Par contre, toutes les autres valeurs qui attendent d'être déterminées le seront en prenant soin d'éviter toute nouvelle aberration. Pour ce faire, un critère d'évaluation de la consistance d'une base de données complète est mis en place.

### 5.2.1 Critère de quantification de la consistance

Généralement, pour compléter les valeurs manquantes de la base de données complète, quelques relations parmi les 16 possibles de la Table 5.5 sont utilisées. Par exemple, pour déterminer le tenseur  $c^E$ , les relations (5.8), (5.10) et (5.17) peuvent être utilisées mais pratiquement, une est suffisante. Si une relation parmi ces trois est choisie, les paramètres correspondants seront favorisés au détriment des deux autres. Or, pour avoir une base de données parfaitement consistante, toutes les relations intercoefficients doivent être vérifiées exactement.

La première étape est la définition d'un objet d'évaluation du respect d'une égalité. Dans notre cas, chaque relation de la Table 5.5 est une égalité de deux matrices qui seront notées  $L$  pour le membre de gauche et  $R$  pour le membre de droite. Leurs dimensions sont différentes selon la relation utilisée ( $3 \times 3$ ,  $3 \times 6$  ou  $6 \times 6$ ). Pour illustrer les explications, la relation (5.10) est choisie et les matrices  $L$  et  $R$  correspondantes sont définies par :

$$L = c^D - c^E \quad \text{et} \quad R = {}^t e h.$$

Ensuite, une comparaison terme-à-terme est faite pour les deux matrices ( $L$  et  $R$ ) en effectuant une division pour s'affranchir des ordres de grandeurs présents dans les égalités. Il y a donc deux possibilités qui sont la division de  $L$  par  $R$  ou l'inverse. Finalement, une matrice  $C$ , ou matrice de comparaison, est construite pour chaque relation de la Table 5.5, numérotée  $r$ , et ses composantes vérifient :

$$C^r(i, j) = \begin{cases} \frac{L(i, j)}{R(i, j)} - 1, & \text{si } \frac{L(i, j)}{R(i, j)} > 1 \\ \frac{R(i, j)}{L(i, j)} - 1 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (5.23)$$

où  $i, j \in [1, N]$  et  $N$  dépend de la nature du tenseur. Pour notre exemple,  $r$  vaut 5.10 qui est le numéro de l'équation (5.10) et la composante de  $C$  à la seconde ligne ( $i = 2$ ) et 3<sup>ème</sup> colonne ( $j = 3$ ) est écrit :

$$C^{5.10}(2, 3) = \begin{cases} \frac{c^D(2, 3) - c^E(2, 3)}{e(3, 2)h(3, 3)} - 1, & \text{si } \frac{c^D(2, 3) - c^E(2, 3)}{e(3, 2)h(3, 3)} > 1 \\ \frac{e(3, 2)h(3, 3)}{c^D(2, 3) - c^E(2, 3)} - 1 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (5.24)$$

## 5.2. CONSISTANCE DE LA BASE DE DONNÉES

---

De cette manière, chaque composante de toutes les matrices  $C$  sont calculées et la valeur est considérée comme nulle si elle est strictement inférieure à  $1.10^{-4}$  qui est la précision numérique choisie. Plus la valeur est proche de 0, plus l'égalité terme-à-terme correspondante est vérifiée. Pour une base de données parfaitement consistante, toutes les matrices  $C$  qui sont au nombre de 16, sont égales à la matrice nulle.

Cependant, la valeur des composantes d'une matrice  $C$  dépend de la manière dont la relation est écrite. L'exemple s'écrit de 3 manières différentes :

$$c^D - c^E = {}^t e h \quad \text{ou} \quad c^D = {}^t e h + c^E \quad \text{ou} \quad c^E = c^D - {}^t e h.$$

Des matrices intermédiaires  $C'$ ,  $C''$  et  $C'''$  sont donc définies pour chacune de ces 3 relations possibles et la matrice  $C$  finale, définie en (5.23), prend les composantes maximales de chacune d'entre elles. Ici, 3 matrices intermédiaires sont faites :

$$C^{5.10}(i, j) = \max_{1 \leq i, j \leq N} \{C^{5.10'}(i, j), C^{5.10''}(i, j), C^{5.10'''}(i, j)\}$$

Enfin, la valeur  $p$  qui évalue l'inconsistance d'une base de données est définie par :

$$p = \max_{\substack{1 \leq i, j \leq N \\ 5.4 \leq r \leq 5.19}} \{C^r(i, j)\} \quad (5.25)$$

Lorsque  $p$  est nul, la base de données évaluée est consistante pour la précision numérique choisie.

La consistance d'une base de données est très importante pour la simulation numérique. En effet, pratiquement, un seul module électro-élastique (un tenseur élastique, un tenseur piézoélectrique et un tenseur diélectrique) est nécessaire au calcul de prédictions numériques. Si la consistance de la base de données n'est pas bonne, le résultat de deux simulations utilisant le même matériau mais deux modules différents pourra être différent. Prenons le cas de logiciels d'éléments finis qui utilisent 2 modules différents :  $(c^E, e, \epsilon^S)$  pour l'un et  $(s^E, d, \epsilon^T)$  pour l'autre. Si les matrices  $C$ , correspondantes aux expressions intercoefficients reliant ces deux modules, contiennent des composantes très élevées (voire la valeur  $p$ ), les résultats des simulations des deux logiciels seront très différents alors que le matériau est, à l'origine, le même. Une des solutions pour remédier à ce problème est de prendre un module comme référence, par exemple  $(c^E, e, \epsilon^S)$ , et de lui appliquer les relations intercoefficients pour arriver au second module qui sera utile  $(s^E, d, \epsilon^T)$ . Dans ce cas là, le nouveau module  $(s^E, d, \epsilon^T)$  n'a rien à voir avec celui fourni dans la base de données complète originale (si elle n'est pas consistante).

L'intérêt d'une base de données complète et inconsistante peut donc se poser. Malgré le défaut présenté ci-dessus, elle reste plus riche qu'un simple module. En effet, les composantes mesurées des tenseurs sont les plus importantes puisqu'il s'agit, si elles sont bien mesurées, de la réalité physique. Cependant, comme le montre la Table 5.1, elles se trouvent dans des modules différents. En donnant une base de données complète, de l'information réelle est apportée et peut se répercuter sur la détermination des paramètres inconnus des tenseurs si les relations intercoefficients sont respectées et donc, si la base de données finale est consistante.

### 5.2.2 Application aux mesures de $\text{KNbO}_3$

Maintenant qu'un outil de quantification de la consistance d'une base de données a été défini, il est utilisé pour la détermination des inconnues des tenseurs pour le monocristal  $\text{KNbO}_3$  afin de compléter les mesures faites du début du chapitre. Pour cela, l'algorithme d'optimisation est détaillé, dans un premier temps, pour aboutir enfin à la base de données finale du matériau.

**Algorithme d'optimisation** Pour résumer la situation, la base de données complète d'un matériau à structure orthorhombique possède 68 constantes dont 32 sont déjà mesurées ou déduites. Cette partie est donc consacrée à la détermination des 36 inconnues restantes.

Comme pour l'outil de caractérisation multimodale du chapitre 4, un algorithme d'optimisation et une Fonction Objectif (**FO**) doivent être choisis. Voyant le nombre de paramètres à déterminer, le choix de l'Algorithme Génétique (**GA**) est le plus judicieux et confirmé, *a posteriori*, par la comparaison avec la méthode de Nelder-Mead. Comme préconisé [107], le nombre d'individus est fixé à 400 (10 fois le nombre de paramètres) et ils évolueront sur 200'000 générations. Pour restreindre l'espace de recherche, les valeurs de Zgonik *et al.* [17] sont prises comme référence et le **GA** pourra proposer des valeurs jusqu'à 200% de ces dernières. Enfin, l'utilisation de la méthode de Nelder-Mead en partant de la solution proposée par le **GA** permettra d'améliorer le résultat en affinant la solution. La **FO**, quant à elle, suit la définition du critère de quantification (5.25) et donnera le paramètre  $p$  à minimiser.

Un détail important dans la détermination des inconnues est la valeur fixée de  $c_{66}^E$ . N'étant pas couplée électriquement et indépendante de toutes les autres constantes à l'exception de  $s_{66}^E$ ,  $c_{66}^D$  et  $s_{66}^D$ , il est impossible de trouver sa valeur par des mesures électriques. La valeur de Zgonik *et al.* lui sera donc assignée ( $95,5 \cdot 10^9 \text{ Nm}^{-2}$ ). Elle a le statut de valeur mesurée et les autres, de valeurs déduites. Elles seront fixées dans l'algorithme d'optimisation, réduisant le nombre d'inconnues à 32. Cela n'a aucun impact sur la consistance de la base de données car ces 4 valeurs sont reliées uniquement entre elles et les expressions les reliant sont alors exactement vérifiées.

Enfin, comme dans le chapitre précédent, les filtres qui calculent tous les coefficients de couplage possibles (Table 4.1) et qui vérifient les conditions de stabilité thermodynamique [113] sont utilisés.

**Base de données finale** Un matériau n'est pas obligatoirement parfaitement homogène dans sa totalité. En effet, les caractéristiques piézoélectriques (par exemple) locales peuvent varier d'une région du matériau à une autre. Il est alors facile de comprendre que la méthode de caractérisation piézoélectrique « standard IEEE », en découpant différents échantillons, peut amener à la caractérisation de matériaux dont les propriétés peuvent être légèrement différentes. Cela dépend, entre autres, de la taille des échantillons. Bien que de faibles dimensions, nos échantillons ont déjà montré qu'ils n'avaient pas tous les mêmes propriétés et cela avait pour conséquence une valeur aberrante du  $e_{32}$  dans la partie 5.1.3. Les domaines introduisent donc une inconsistance dite « de mesure » et qu'il sera impossible de faire disparaître. Pour minimiser au mieux ce type d'inconsistance, de nouvelles techniques de



mesures existent [132, 133, 134, 58] et toutes les constantes sont déterminées sur un seul échantillon grâce à une disposition spéciale des électrodes.

Malgré cette inconsistance due aux mesures, la base de données finale de la Table 5.7 est obtenue. En suivant la définition du critère de quantification (5.25), cette base de données est consistante pour une valeur de  $p$  égale à  $31,26 \cdot 10^{-2}$ . Cette valeur est obtenue dans la matrice  $C^{5.18}(3, 2)$ . Elle correspond à l'égalité (5.18) de la Table 5.5 écrite de cette manière :

$$h_{32} = M(3, 2) \quad (5.26)$$

où la matrice  $M$  est égale à  $g \cdot (s^D)^{-1}$  pour simplifier l'écriture de l'égalité (5.26). Effectivement,  $h_{32}$  est égal à  $-5,340 \cdot 10^9$  alors que la composante de la 3<sup>ème</sup> ligne et 2<sup>ème</sup> colonne de la matrice  $M$ , soit  $M(3, 2)$ , vaut  $-4,068 \cdot 10^9$ . La différence relative entre ces deux valeurs est alors de 27,04%. Elle sera appelée  $\Delta_{\max}$ . La valeur  $p$  est directement reliée à  $\Delta_{\max}$  par l'expression :

$$\Delta_{\max} = \frac{2p}{p + 2} \quad (5.27)$$

Pour situer cette nouvelle base de données par rapport à ce qui a pu être fait dans la littérature, le critère de quantification est calculé pour une base de données réalisée sans attention particulière vis à vis de la consistance et une autre dont les auteurs ont particulièrement fait attention :

- Li *et al.* [135] propose, en 2010, une base de données complète pour le monocristal PIN-PMN-PT tétragonal. La valeur de  $p$  est obtenue pour l'égalité (5.9) de la Table 5.5 et vaut 119,83% pour la valeur de  $C^{5.9}(1, 3)$ . Plus précisément, ils nous donnent une valeur de  $c_{13}^D$  égale à  $109 \cdot 10^9$  Pa alors que si la matrice  $s^D$  est inversée, le  $(s^D)_{13}^{-1}$  vaut  $49,58 \cdot 10^9$  Pa. Cela équivaut à un  $\Delta_{\max}$  de 74,93%.
- Zheng *et al.* [123], en 2013, expliquent l'attention particulière qu'ils ont porté à la consistance de leur base de données d'un monocristal KNN tétragonal. Dans ce cas,  $\Delta_{\max}$  vaut 8,14% pour la composante  $C^{5.11}(1, 3)$ . En effet, si  $M = s^E - {}^t dg$ ,  $M(1, 3)$  donne  $-0,3255 \cdot 10^{-12}$  alors qu'ils nous donnent un  $s^D(1, 3)$  de  $-0,3 \cdot 10^{-12}$ . Cette base de données est un exemple de consistance.

Néanmoins, les deux exemples pris ont des structures tétraogonales qui ont donc moins de paramètres que notre structure orthorhombique. Une faible consistance est donc plus facilement atteignable. Si l'exemple du monocristal PMN-PT orthorhombique est pris [130], la valeur  $c_{33}^D - c_{33}^E$  ( $27,2 \cdot 10^9$  Pa) diffère de 100,03% ( $\Delta_{\max}$ ) de celle de  $({}^t eh)_{33}$  ( $9,063 \cdot 10^9$  Pa) alors qu'elles sont censées être égales par l'expression (5.10). Cette valeur très importante de  $\Delta_{\max}$  signifie clairement que plus de paramètres sont à déterminer, plus l'inconsistance peut devenir importante.

Pour conclure sur la consistance de la base de données du monocristal KNbO<sub>3</sub> de coupe  $(XZl) - 45^\circ$ , elle a été faite en portant une extrême attention à ne pas introduire d'inconsistance supplémentaire lors de la détermination des nouvelles constantes. Cela peut s'observer concrètement avec la valeur de critère de quantification  $p$  par rapport à d'autres bases de données déjà publiées. Le choix du critère  $p$  à minimiser au détriment de la valeur  $\Delta_{\max}$  qui a plus de signification puisqu'il s'agit d'une variation relative, se justifie par une plus grande sensibilité de ce dernier sur de petites variations des paramètres à déterminer.

## 5.2. CONSISTANCE DE LA BASE DE DONNÉES

TABLE 5.7 – Base de données complète de la coupe (YXt)-45° pour le monocristal KNbO<sub>3</sub> en fonction du choix des variables indépendantes des relations fondamentales de la piézoélectricité. Les étoiles indiquent les valeurs mesurées.

Relation (S,E) : $c_{ij}^E$ (10 <sup>9</sup> Pa), $e_{ij}$ (Cm <sup>-2</sup> ), $\epsilon_{ij}^S/\epsilon_0$								
$c_{11}^E$	$c_{12}^E$	$c_{13}^E$	$c_{22}^E$	$c_{23}^E$	$c_{33}^{E*}$	$c_{44}^E$	$c_{55}^{E*}$	$c_{66}^E$
212.98	36.01	67.04	105.49	47.00	191.23	74.30	123.49	95.50
$e_{31}$	$e_{32}$	$e_{33}^*$	$e_{24}$	$e_{15}^*$		$\epsilon_{11}^S$	$\epsilon_{22}^S$	$\epsilon_{33}^S$
3.50	-1.65	5.66	5.88	3.11		87.0	699.2	34.5
Relation (S,D) : $c_{ij}^D$ (10 <sup>9</sup> Pa), $h_{ij}$ (10 <sup>9</sup> Vm <sup>-1</sup> ), $\beta_{ij}^S$ (10 <sup>9</sup> mF <sup>-1</sup> )								
$c_{11}^D$	$c_{12}^D$	$c_{13}^D$	$c_{22}^D$	$c_{23}^D$	$c_{33}^{D*}$	$c_{44}^D$	$c_{55}^{D*}$	$c_{66}^D$
253.07	18.23	131.74	113.38	18.32	296.03	79.90	136.06	95.50
$h_{31}$	$h_{32}$	$h_{33}$	$h_{24}$	$h_{15}$		$\beta_{11}^S$	$\beta_{22}^S$	$\beta_{33}^S$
11.57	-5.34	18.53	0.95	4.04		1.30	0.16	3.27
Relation (T,E) : $s_{ij}^E$ (10 <sup>-12</sup> m <sup>2</sup> N <sup>-1</sup> ), $d_{ij}$ (10 <sup>-12</sup> CN <sup>-1</sup> ), $\epsilon_{ij}^T/\epsilon_0$								
$s_{11}^{E*}$	$s_{12}^{E*}$	$s_{13}^E$	$s_{22}^{E*}$	$s_{23}^E$	$s_{33}^{E*}$	$s_{44}^E$	$s_{55}^E$	$s_{66}^E$
5.32	-1.22	-1.33	10.73	-1.88	5.27	13.46	8.10	10.47
$d_{31}^*$	$d_{32}^*$	$d_{33}^*$	$d_{24}$	$d_{15}$		$\epsilon_{11}^T$	$\epsilon_{22}^T$	$\epsilon_{33}^T$
12.69	-31.93	28.95	79.19	25.34		95.9	751.8	71.3
Relation (T,D) : $s_{ij}^D$ (10 <sup>-12</sup> m <sup>2</sup> N <sup>-1</sup> ), $g_{ij}$ (VmN <sup>-1</sup> ), $\beta_{ij}^T$ (10 <sup>9</sup> mF <sup>-1</sup> )								
$s_{11}^D$	$s_{12}^D$	$s_{13}^D$	$s_{22}^D$	$s_{23}^D$	$s_{33}^{D*}$	$s_{44}^D$	$s_{55}^D$	$s_{66}^D$
5.00	-0.58	-1.91	9.12	-0.44	3.94	12.52	7.35	10.47
$g_{31}$	$g_{32}$	$g_{33}$	$g_{24}$	$g_{15}$		$\beta_{11}^T$	$\beta_{22}^T$	$\beta_{33}^T$
0.0196	-0.0493	0.0447	0.0119	0.0295		1.18	0.15	1.55
Coefficients de couplage $k$ (%)					Masse volumique (kg/m <sup>3</sup> )			
$k_t^*$	$k_{33}^*$	$k_{31}^*$	$k_{32}^*$	$k_{15}^*$		$\rho^*$		
59.5	50.2	21.9	38.8	30.4		4575		

### 5.2.3 Caractéristiques fonctionnelles

Avec la détermination de la base de données complète de ce monocristal, il est possible de calculer les différentes vitesses de propagation des ondes acoustiques dans le solide en fonction des directions de propagation mais aussi les coefficients de couplage électromécaniques selon les coupes du cristal comme déjà fait pour le monocristal PMN-PT [131]. Nos mesures pourront être ainsi comparées avec les courbes théoriques obtenues par Nakamura *et al.* [16].

**Vitesses** Calculer les vitesses de propagation dans toutes les directions des plans de coordonnées ( $x = 0$ ,  $y = 0$  et  $z = 0$ ) revient à exprimer le tenseur de Christoffel  $\Gamma_{il}$  dans ces nouvelles directions de propagation. Le vecteur de propagation a subi une rotation  $\theta$

autour de l'axe perpendiculaire au plan de coordonnées choisi. Ses coordonnées dans le repère d'origine sont donc  $(\cos \theta, \sin \theta)$ . Enfin, avec cette nouvelle direction de propagation, l'équation aux valeurs propres (1.11) peut être résolue. Les trois valeurs propres ainsi trouvées sont les vitesses longitudinale et transversales pour cette direction de propagation. Pour les calculs, le module  $(c^E, e, \epsilon^S)$  est choisi.

Premièrement, il est nécessaire de prendre en compte les effets piézoélectriques dans la tenseur de Christoffel qui, à l'origine, ne contenait que les constantes élastiques (relation (1.12)).

Le tenseur  $\bar{\Gamma}_{il}$  s'exprime alors par [136] :

$$\bar{\Gamma}_{il} = \Gamma_{il} + \frac{\gamma_i \gamma_l}{\epsilon} \quad (5.28)$$

où  $\Gamma_{il} = c_{ijkl}^E n_j n_k$ ,  $\gamma_i = e_{kij} n_k n_j$  et  $\epsilon = \epsilon_{jk}^S n_j n_k$  et  $n$  sont les vecteurs du repère d'origine. Lorsque les expressions sont développées et que le cas particulier d'un matériau piézoélectrique orthorhombique est appliqué dans un espace à trois dimensions, les tenseurs  $\Gamma_{il}$ ,  $\gamma_i$  et  $\epsilon$  valent :

$$\Gamma_{il} = \begin{bmatrix} c_{11}^E n_1^2 + c_{66}^E n_2^2 + c_{55}^E n_3^2 & (c_{12}^E + c_{66}^E) n_1 n_2 & (c_{13}^E + c_{55}^E) n_1 n_3 \\ \times & c_{66}^E n_1^2 + c_{22}^E n_2^2 + c_{44}^E n_3^2 & (c_{23}^E + c_{44}^E) n_2 n_3 \\ \times & \times & c_{55}^E n_1^2 + c_{44}^E n_2^2 + c_{33}^E n_3^2 \end{bmatrix} \quad (5.29)$$

$$\gamma_i = \begin{bmatrix} (e_{31} + e_{15}) n_1 n_3 & (e_{32} + e_{24}) n_2 n_3 & e_{15} n_1^2 + e_{24} n_2^2 + e_{33} n_3^2 \end{bmatrix} \quad (5.30)$$

$$\epsilon = \begin{bmatrix} \epsilon_{11}^S n_1^2 + \epsilon_{22}^S n_2^2 + \epsilon_{33}^S n_3^2 \end{bmatrix} \quad (5.31)$$

La valeur des vecteurs  $\vec{n}$  se calcule en fonction de la direction de propagation choisie. Par exemple, pour une direction de propagation dans le plan orthogonal à l'axe  $n_3$  ( $0\vec{n}_1\vec{n}_2$ ), les vecteurs vérifieront :

$$n_1 = \cos \theta, n_2 = \sin \theta \text{ et } n_3 = 0 \quad (5.32)$$

Le repère  $(n_1 n_2 n_3)$  est bien entendu équivalent au repère (XYZ) utilisé pour les tenseurs du matériau. Le tenseur  $\bar{\Gamma}_{il}$  étant maintenant connu, l'équation aux valeurs propres peut être résolue. Les résultats pour le monocristal KNbO<sub>3</sub> sont présentés sur la Figure 5.5. Les vitesses longitudinales calculées dans le plan XZ (Figure 5.5.b)) passent par une valeur maximale de 8392 m/s pour les angles écartés de 30° autour de la direction Z. De plus, dans le plan XY (Figure 5.5.a)), les valeurs de vitesses longitudinales dans la direction X (6868 m/s) et dans la direction Y (4834 m/s) sont très différentes à cause de la grande différence entre les paramètres de maille 'a' et 'b' du cristal. À l'inverse, les faibles variations de la vitesse longitudinale dans le plan XZ confirme la faible différence entre les deux paramètres de maille mesurés dans les directions X et Y. Enfin, dans les 3 plans de coordonnées, une des vitesses transversales ( $v_{s1}$ ) ne varie pratiquement pas.

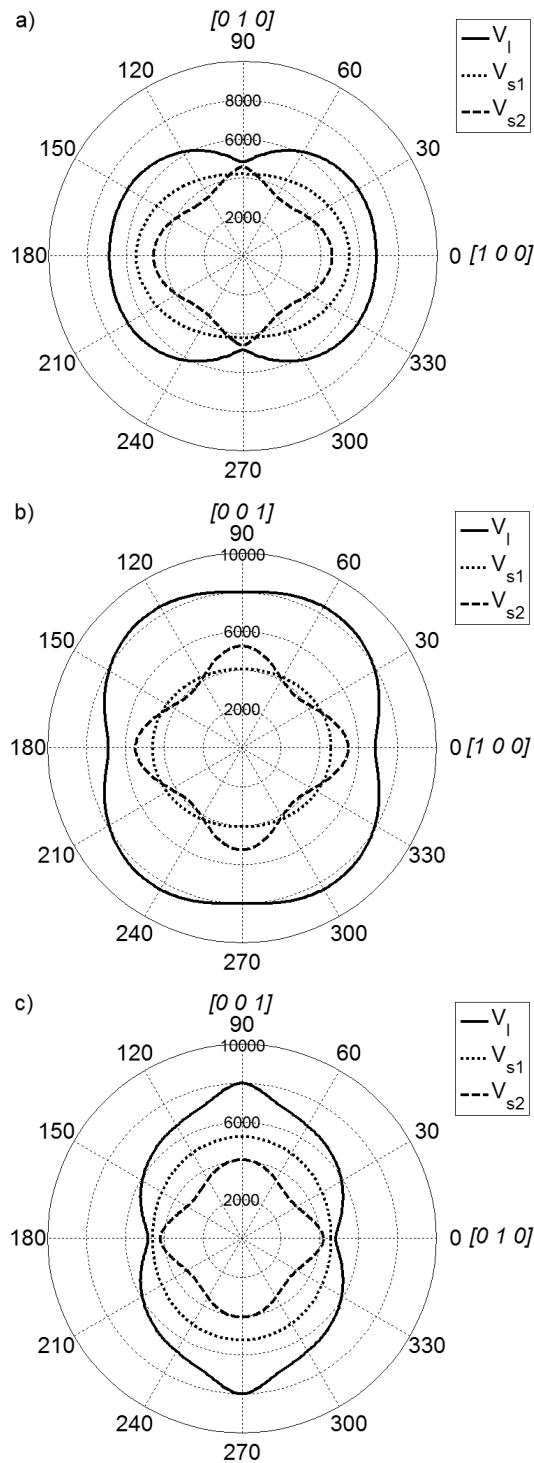


FIGURE 5.5 – Représentation polaire des vitesses longitudinale  $v_l$  et transversales  $v_{s1}$  et  $v_{s2}$  en m/s dans les plans a)XY, b)XZ et c)YZ. L'angle  $0^\circ$  est l'orientation  $(XZl)-0^\circ$ .

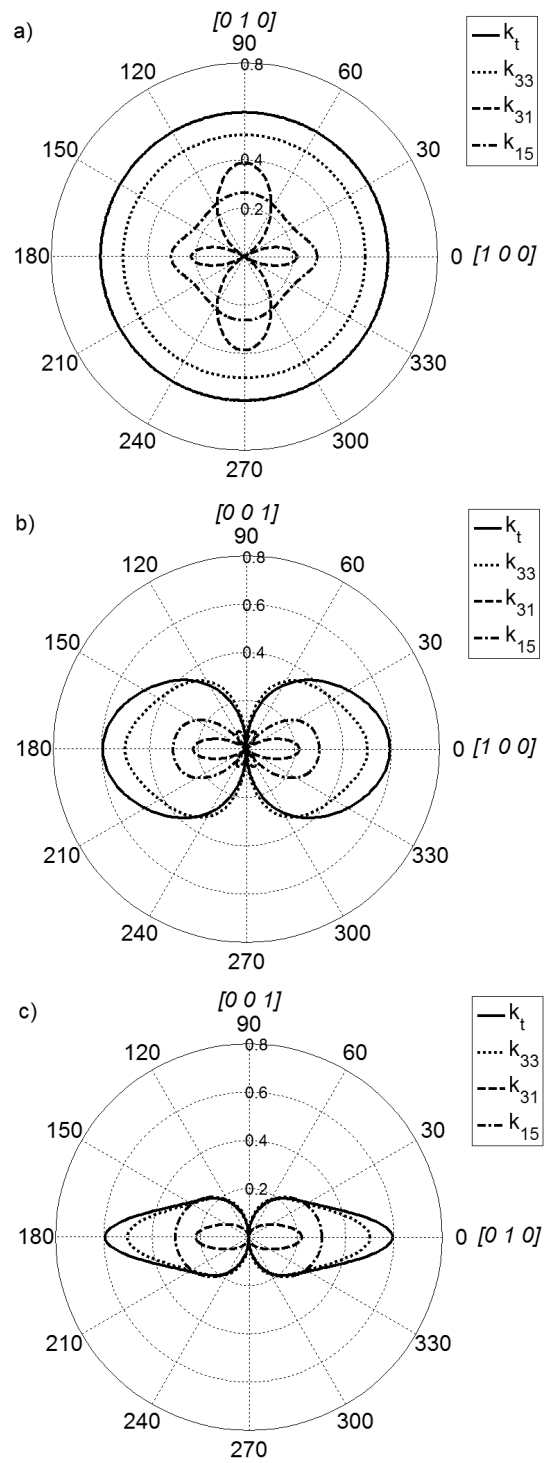


FIGURE 5.6 – Représentation polaire des coefficients de couplage dans les plans a)XY, b)XZ et c)YZ. L'angle  $0^\circ$  est l'orientation  $(XZl)-0^\circ$ .

**Coefficients de couplage** Une autre information intéressante est la valeur des coefficients de couplage selon l'orientation de la coupe du monocristal. La confirmation que les valeurs de  $k_{33}$  et de  $k_t$  sont les plus hautes dans notre coupe choisie pourra ainsi être faite. Les tenseurs élastique, piézoélectrique et diélectrique du même module que précédemment doivent être recalculés dans un nouveau repère. Il s'agit de la même opération mais appliquée directement sur les tenseurs des propriétés du matériau et non pas sur le tenseur de Christoffel.

Premièrement, la matrice de rotation  $R$  doit être définie en fonction de la rotation choisie. Voici les 3 matrices de rotation de base :

$$R_x = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \theta & \sin \theta \\ 0 & -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix}, \quad R_y = \begin{pmatrix} \cos \theta & 0 & \sin \theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \theta & 0 & \cos \theta \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad R_z = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta & 0 \\ -\sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Les formules de rotation [24] pour obtenir les nouveaux tenseurs  $\bar{c}^E$ ,  $\bar{e}$  et  $\bar{\epsilon}^S$ , par exemple, sont les suivantes :

- pour les tenseurs élastiques,  $\bar{c}_{ijkl}^E = \sum_{m=1}^3 \sum_{n=1}^3 \sum_{o=1}^3 \sum_{p=1}^3 R_{im} R_{jn} R_{ko} R_{lp} c_{mnop}^E$
- pour les tenseurs piézoélectriques,  $\bar{e}_{ijk} = \sum_{m=1}^3 \sum_{n=1}^3 \sum_{o=1}^3 R_{im} R_{jn} R_{ko} e_{mno}$
- pour les tenseurs diélectriques,  $\bar{\epsilon}_{ij}^S = \sum_{m=1}^3 \sum_{n=1}^3 R_{im} R_{jn} \epsilon_{mn}^S$

Pour chaque rotation de  $\theta$ , de nouveaux tenseurs sont calculés et les nouveaux coefficients de couplage peuvent être calculés avec les formules déjà connues [26]. Pour profiter du travail précédent, qui a été fait sur la consistance de la base de données, il est préférable d'appliquer la rotation à tous les tenseurs et non pas seulement à un module, puis recalculer les autres tenseurs *via* les relations intercoefficients (Table 5.5). Les variations des valeurs des principaux coefficients de couplage dans les 3 plans de coordonnées sont représentés sur la Figure 5.6. En traçant les diagrammes polaires des coefficients de couplage, la coupe choisie semble optimale, comme prévue. En effet, dans toutes les directions des 3 plans de coordonnées, nous avons la valeur maximale du  $k_{33}$  et du  $k_t$  pour un angle  $\theta = 0^\circ$ .

**Discussion** Il est alors intéressant de comparer nos résultats par rapport au monocristal  $\text{KNbO}_3$  monodomaine caractérisé par Zgonik *et al.* [17] même si le monocristal caractérisé ici est polydomaine. Pour cette comparaison, il serait alors possible de se baser sur le travail de Nakamura *et al.* [16] qui ont calculé, de la même manière, les coefficients de couplage dans toutes les directions en se basant sur la base de données fournie par Zgonik. Cependant, leurs courbes peuvent avoir des formes différentes en fonction de la manière dont sont recalculés les tenseurs. En effet :

1. Zgonik *et al.* donnent les tenseurs  $c^E$ ,  $c^D$ ,  $e$ ,  $d$ ,  $\epsilon^S$  et  $\epsilon^T$ . Pour calculer le coefficient de couplage  $k_{33}$ , il est alors nécessaire de déterminer le tenseur  $s^E$  comme son expression le montre dans la Table 5.2.

## 5.2. CONSISTANCE DE LA BASE DE DONNÉES

2. Si les courbes des coefficients de couplage sont calculés en prenant les données brutes de Zgonik et en rajoutant le tenseur  $s^E$  calculé *via* la relation  $s^E = (c^E)^{-1}$ , nous obtenons les variations des coefficients de couplage  $k_t$  et  $k_{33}$  représentées par les courbes rouges sur la Figure 5.7.
3. Maintenant, si uniquement les tenseurs  $c^E$ ,  $e$  et  $\epsilon^S$  de Zgonik sont gardés et que les tenseurs  $\epsilon^T$ ,  $d$ , et  $s^E$  sont recalculés *via* les relations  $s^E = (c^E)^{-1}$ ,  $d = e \times s^E$  et  $\epsilon^T = d \times {}^t e + \epsilon^S$ , de nouvelles courbes de coefficients de couplage sont obtenues (en noires sur la Figure 5.7) et sont très proches des courbes présentées par Nakamura *et al.* [16] dans leur article et intégrées dans la Figure 5.8.

Pour les variations de  $k_t$ , les courbes noires et rouges se superposent car seuls les tenseurs  $c^E$ ,  $e$  et  $\epsilon^S$  sont utilisés et ils sont strictement égaux dans les deux cas. Pour le  $k_{33}$  par contre, une énorme différence qui atteint son maximum pour  $\theta = 45^\circ$ , apparaît. Cette différence vient des tenseurs  $s^E$ ,  $d$  et  $\epsilon^T$  utilisés. Pour la courbe rouge, il s'agit des tenseurs fournis par Zgonik *et al.* alors que pour la courbe noire, ces tenseurs ont été recalculés et diffèrent donc de ce qui a été donné par Zgonik. Nous avons ici un exemple typique de base de données inconsistante. De plus, ce maximum de différence à  $\theta = 45^\circ$  est justement l'angle de coupe qui a été choisi pour les conclusions tirées par Nakamura *et al.*

En se basant donc directement sur les données brutes de Zgonik *et al.*, pour une coupe  $(XZ) - 45^\circ$ , des valeurs de  $k_t$  de 66,7% et de  $k_{33}$  de 45,4% étaient attendues. Nos valeurs mesurées qui valent  $k_{33} = 50,2\%$  et  $k_t = 59,5\%$  diffèrent mais la comparaison du  $k_t$  et du  $k_{33}$  attendus est similaire à nos mesures :  $k_{33} < k_t$ .

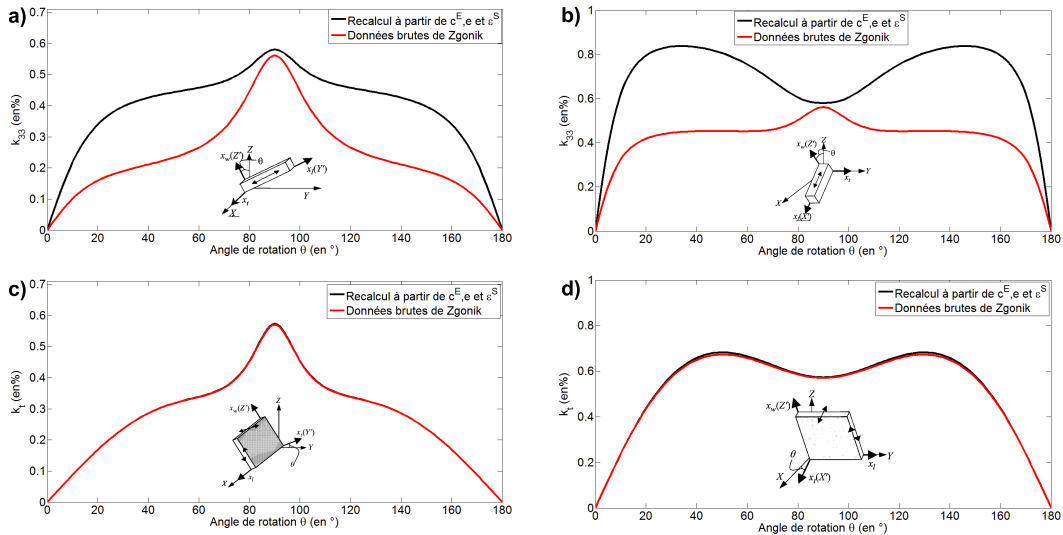


FIGURE 5.7 – Courbes des variations du coefficient de couplage  $k_{33}$  dans le plan a)YZ et b)XZ et du coefficient de couplage  $k_t$  dans le plan c)YZ et d)XZ. Les courbes en noires sont proches de celles de Nakamura *et al.* [16] et les courbes rouges sont tracées avec les données de Zgonik *et al.* [17].

### 5.3. ÉTUDE FRÉQUENTIELLE DES CARACTÉRISTIQUES EN ÉPAISSEUR

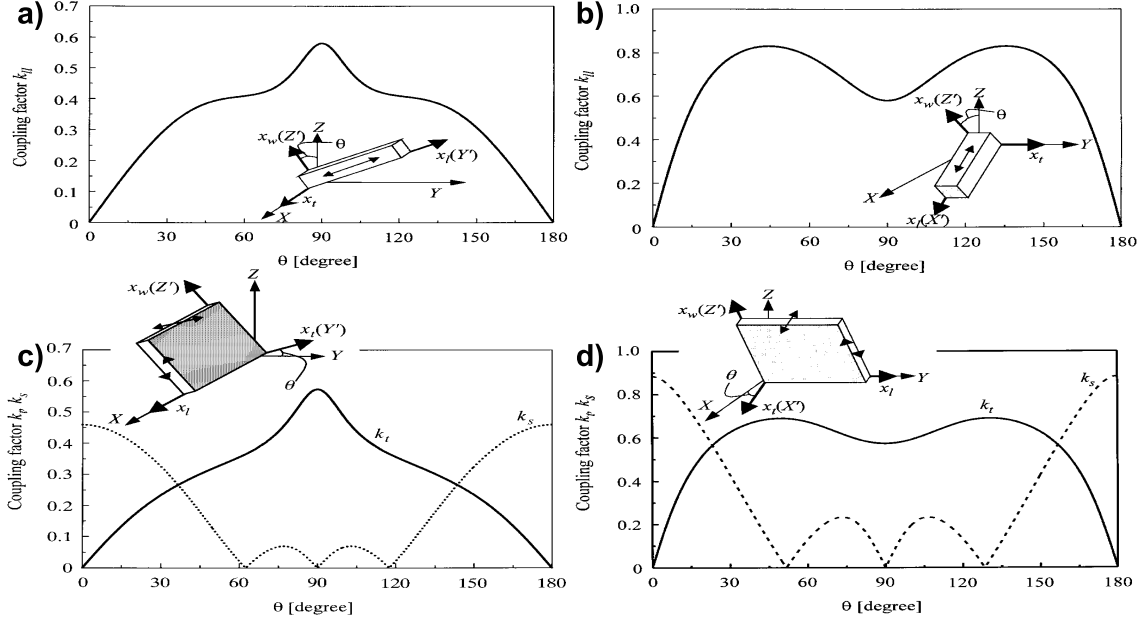


FIGURE 5.8 – Courbes des variations du coefficient de couplage  $k_{33}$  dans le plan a)YZ et b)XZ et du coefficient de couplage  $k_t$  dans le plan c)YZ et d)XZ obtenues par Nakamura *et al.* [16].

## 5.3 Étude fréquentielle des caractéristiques en épaisseur

Dans cette partie, le comportement fréquentiel du monocristal  $\text{KNbO}_3$  est étudié. Il s'agit d'une étude indépendante des parties 5.1 et 5.2. En effet, seul le mode épaisseur est caractérisé ici sur plusieurs fréquences grâce à sa résonance fondamentale et ses harmoniques. De cette manière, la dépendance fréquentielle des caractéristiques en épaisseur au-delà de 150MHz est déduite. Cette étude fréquentielle se faisant sur les harmoniques du mode épaisseur, elle est indirecte et suppose donc que la microstructure ne varie pas, ce qui n'est pas toujours le cas lorsqu'un matériau atteint de très faibles épaisseurs.

### 5.3.1 Procédé de caractérisation

Contrairement à la caractérisation précédente du mode épaisseur qui reste simple, le modèle KLM [27, 29, 30] est utilisé ici pour caractériser également ces propriétés en épaisseur sur les 7 échantillons présentés sur la Figure 5.3 et numérotés de 6 à 12. Ce modèle prend en compte les pertes mécaniques et diélectriques [28]. Il calcule l'impédance électrique complexe en fonction de la fréquence. Dans ce modèle, les propriétés qui sont caractérisées sont la vitesse longitudinale  $v_l$ , la constante diélectrique  $\epsilon_{33}^S$ , le coefficient de couplage  $k_t$  et les pertes mécaniques  $\delta_m$  et diélectriques  $\delta_e$ . Les mesures d'impédance sont faites avec le même appareil que précédemment.

Cette procédure de caractérisation [137] est appliquée à la résonance fondamentale des plaques mais également à toutes ses harmoniques pour couvrir une large bande de fré-



### 5.3. ÉTUDE FRÉQUENTIELLE DES CARACTÉRISTIQUES EN ÉPAISSEUR

quence de 10 à 160MHz. L'épaisseur des échantillons est plus précisément de  $395 \pm 2 \mu\text{m}$  et les électrodes d'or déposées par « sputtering » sur les deux faces font 400 nm d'épaisseur. Ici, les électrodes sont prises en compte dans le modèle KLM car leur présence est d'autant plus importante que la fréquence augmente. L'aire de chaque échantillon est donnée dans la Table 5.8. La masse volumique reste la même que précédemment :  $4575 \pm 40 \text{ kg/m}^3$ . L'intérêt de découper plusieurs échantillons d'aires de plus en plus petites est l'étude de l'homogénéité des propriétés du matériau qui est faite dans un second temps.

TABLE 5.8 – Aires des 7 échantillons permettant l'étude fréquentielle des propriétés en épaisseur du monocristal  $\text{KNbO}_3$ .

Numéro de l'échantillon	6	7	8	9	10	11	12
Aire (en $\text{mm}^2$ )	100,6	24,5	25,4	6,3	6,0	6,1	6,4

#### 5.3.2 Résultats

Tout d'abord, il est important de confirmer les valeurs du mode épaisseur trouvées précédemment pour la base de données complète du monocristal grâce à la plaque n°1 qui a les mêmes dimensions que les plaques n°9, 10, 11 et 12 utilisées ici. La fréquence d'antirésonance avait été mesurée à 10,055 MHz, ce qui avait permis de déduire  $c_{33}^D$  à 296,03 GPa. Lorsque l'impédance électrique de la plaque n°11 est mesurée puis modélisée avec le schéma KLM sur son mode épaisseur, une fréquence d'antirésonance de 10,1 MHz et un  $c_{33}^D$  de 288 GPa sont obtenus. La différence relative de 2,75% sur les valeurs de  $c_{33}^D$  est le cumul des faibles différences observées sur la masse volumique et la fréquence d'antirésonance.

La Figure 5.9 montre l'exemple de l'ajustement de l'impédance expérimentale avec le modèle KLM pour la résonance fondamentale, la 3<sup>ème</sup> harmonique et la 15<sup>ème</sup> harmonique pour l'échantillon 9. Comme pour tous les échantillons, à la résonance fondamentale (autour de 10MHz), des imprécisions sont faites à cause d'approximation sur l'ajustement à partir de courbes expérimentales ne correspondant pas à des mesures « idéales » (Fig. 5.9.a)). Cela provoque, en général, une légère surestimation des pertes mécaniques mais aussi des er-

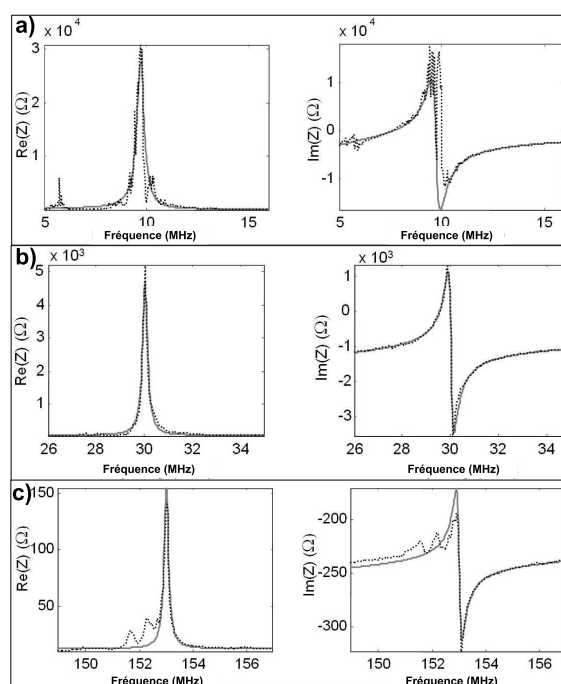


FIGURE 5.9 – Les impédances électriques complexes expérimentales (trait pointillé) et théoriques (trait plein) pour a) la résonance fondamentale, b) la 3<sup>ème</sup> harmonique et c) la 15<sup>ème</sup> harmonique.



reurs sur l'évaluation des fréquences de résonances et d'anti-résonance donc, du  $k_t$ . Les propriétés déterminées sur l'harmonique 3 sont généralement plus précises comme le montre la Figure 5.9.b). Finalement, les propriétés ont pu être évaluées jusqu'à 160 MHz comme le montre la Figure 5.9.c).

La Figure 5.10 présente les paramètres du mode épaisseur les plus importants. Les mesures des différents échantillons pour chaque fréquence sont regroupées dans une boîte de Tukey. Cela signifie que pour la Figure 5.10.a), par exemple, la première boîte de Tukey à la fréquence 9,7MHz contient les 7 mesures de  $k_t$  faites à la résonance fondamentale des 7 échantillons. La boîte de Tukey possède un point rouge qui est la moyenne, d'un trait rouge qui est la médiane et d'un rectangle qui contient les deux premiers quartiles, sans oublier les valeurs extrêmes représentées par les traits externes au rectangle. La fréquence à laquelle la boîte de Tukey apparaît est la fréquence moyenne de toutes les mesures qui sont égales entre elles à 5% près.

Maintenant, pour évaluer l'homogénéité de l'échantillon n°6 qui est le plus grand, nous avons tracé (Figure 5.10.a)), la variation du  $k_t$  pour les 7 échantillons (n°6 à 12). Si les dimensions des boîtes de Tukey de cette Figure sont comparées à celles des boîtes de Tukey de la Figure 5.10.b) qui ne prend en compte que les 4 plus petits échantillons (n°9, 10, 11 et 12), les rectangles contenant les deux premiers quartiles sont nettement plus grands et les deux valeurs extrêmes sont également plus éloignées. Cela signifie qu'avec ces 7 échantillons, nous avons de plus grandes variations de  $k_t$  que sur une région localisée par les 4 échantillons les plus petits. Le matériau possède donc des variations de propriétés locales. Les variations de  $e_{33}$  et  $\epsilon_{33}^S$  sont également données mais en ne prenant en compte que les 4 plus petits échantillons.

Le  $k_t$  évalué à 10 MHz vaut 65% et il est beaucoup plus proche de la valeur attendue par la base de données de Zgonik. Cependant sa valeur décroît en fréquence pour descendre jusqu'à 45% à 155 MHz. Contrairement à un monocristal PZN-PT déjà étudié [137], ce monocristal ne semble pas aussi stable en fréquence.

**Conclusion** Dans ce chapitre, un outil général de consistance d'une base de données d'un matériau a été mis en place. Il ne résout cependant pas les incohérences dues aux mesures. C'est pour cela qu'il s'agit d'un outil complémentaire aux nouvelles techniques de mesures [58, 132, 133, 134] qui elles, minimisent les inconsistances expérimentales.

Appliqué au monocristal  $\text{KNbO}_3$ , cela nous a permis de fournir tous ses tenseurs élastiques, piézoélectriques et diélectriques qui seront nécessaires pour les simulations réalisées avec ce matériau. La valeur du coefficient de couplage  $k_t$  mesurée ( $\sim 60\%$ ) est la preuve des performances de ce matériau piézoélectrique sans plomb pour cette coupe. Cela avait été également vérifié par deux autres équipes [90, 121]. Néanmoins, la valeur de  $k_{33}$  à 83%, attendue par Nakamura *et al.* [16] n'est pas atteinte par notre matériau ( $\sim 50\%$ ) mais n'a encore jamais été vérifiée expérimentalement. L'utilisation de ce matériau pour son  $k_t$  reste son point fort car il dépasse toutes les valeurs mesurées jusqu'à présent (PZT inclus). L'étude en fréquence de ses propriétés en épaisseur permet de mettre en évidence une stabilité de ces dernières relativement plus faibles que pour les monocristaux contenant du plomb [137]. Il peut donc être moins performant qu'attendu pour les très hautes fréquences ( $>100\text{MHz}$ ). Toutefois, par usinage à très faible épaisseur du matériau ( $<100\ \mu\text{m}$ ), les mesures ont montré une bonne stabilité des propriétés (en particulier  $\epsilon_r$ ) [121].

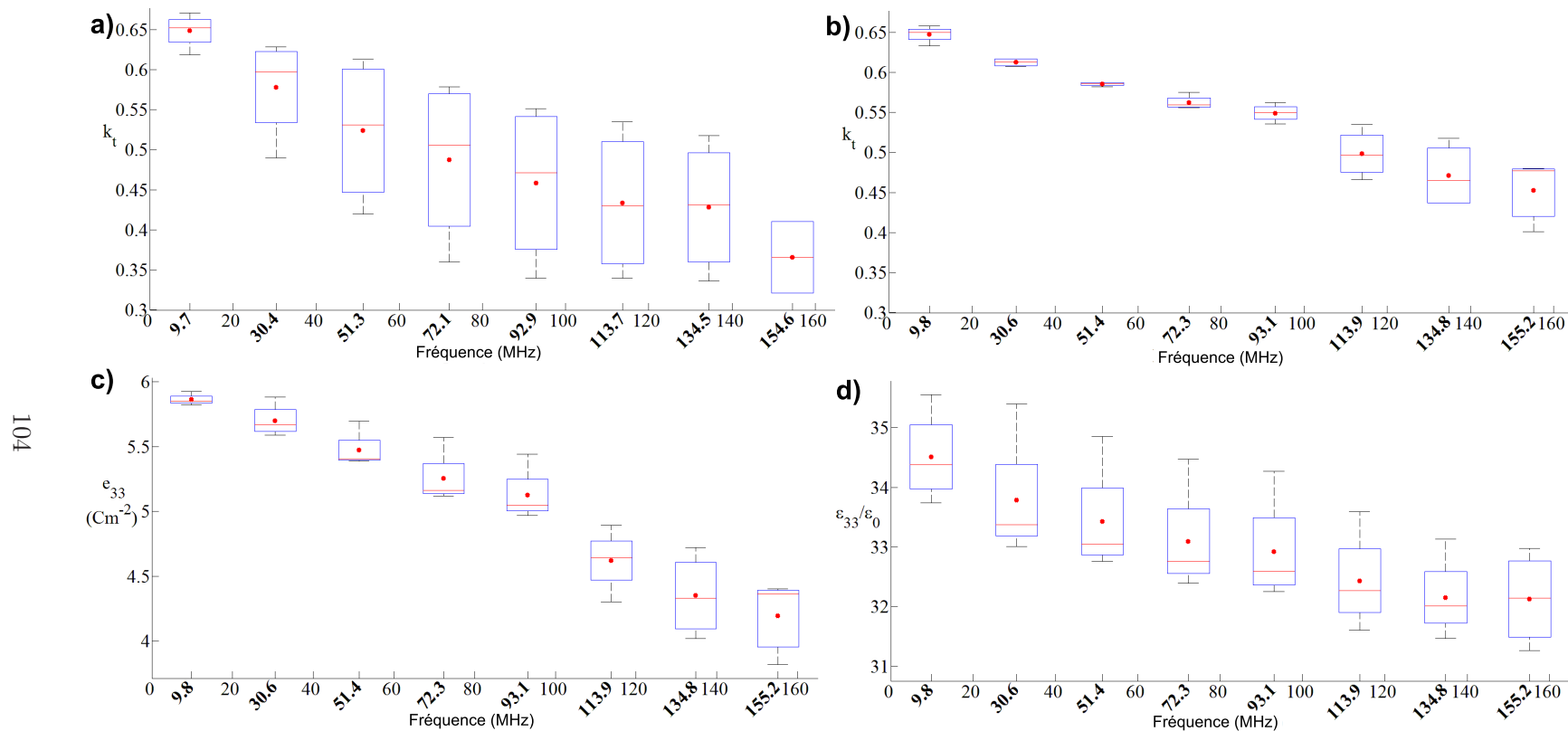


FIGURE 5.10 – Boîtes de Tukey représentant les variations fréquentielles a) du  $k_t$  pour les 7 échantillons, b) du  $k_t$  pour les 4 plus petits échantillons, c) du  $e_{33}$  pour les 4 plus petits échantillons et d) du  $\epsilon_{33}^S$  pour les 4 plus petits échantillons également. Le point représente la moyenne.