

Mat riaux composites   microstructure contr l e pour des propri t s multifonctionnelles

R sum  :

Dans cette th se, nous avons  labor  par frittage Spark Plasma Sintering (SPS) des composites c ramiques particuli res  cologiques de composition $(1-x)K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3 - (x)CoFe_2O_4$ pour $x = 0.05, 0.10$ et 0.20 , associant une phase ferro lectrique submicrom trique ou microm trique sans plomb ($K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$, KNN)   une phase ferrimagn tique (5-8 nm) sans terre rare ($CoFe_2O_4$, CFO). Les analyses structurales ont confirm  la pr sence des phases orthorhombique (KNN) et cubique spinelle (CFO) sans la d tection de phases secondaires. Les observations microstructurales r v lent des composites denses (>90%), form s de grains de CFO submicrom triques distribu s aux joints de grains du KNN de taille microm trique. Les composites avec une taille moyenne de grains de CFO inf rieure ou  gale   300 nm tendent   se r partir sous forme de cha nes le long des joints de grains de KNN tandis que les composites avec une taille moyenne de grains de CFO sup rieure ou  gale   400 nm s'agglom rent sans former des cha nes. L'interface CFO/KNN est apparue nette et sans interdiffusion jusqu'  l' chelle nanom trique. Tous les composites  tudi s pr sentent un comportement ferro lectrique, capacitif et r sistif   temp rature ambiante. Ces propri t s ferro lectriques sont d grad es lorsque la surface d'agglom ration des grains de CFO augmente, lorsque la dispersion se fait sous forme de cha nes conductrices et quand le pourcentage massique en CFO augmente. En parall le, tous les composites ont montr  un comportement ferromagn tique dominant   temp rature ambiante. Ces propri t s sont aussi r duites lorsque la taille moyenne des grains de CFO ainsi que leur surface d'agglom ration augmentent. Gr ce au contr le de cette microstructure et   l'optimisation de l'interface CFO/KNN, nos composites c ramiques  cologiques se r v lent prometteurs pour le couplage magn to- lasto- lectrique   temp rature ambiante.

Mots cl s : C ramiques composites, CFO-KNN, Spark Plasma Sintering, propri t s di lectriques, propri t s magn tiques

Composite materials with controlled microstructure for multifunctional properties

Summary :

In this thesis, environmentally friendly particulate ceramic composites with composition $(1-x)K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3 - (x)CoFe_2O_4$ pour $x = 0.05, 0.10$ et 0.20 were elaborated by Spark Plasma Sintering (SPS). These composites combine a lead-free submicrometric or micrometric ferroelectric phase ($K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$, KNN) with a rare-earth-free ferrimagnetic phase ($CoFe_2O_4$, CFO) with a particle size of 5-8 nm. Structural analyses confirmed the presence of the orthorhombic KNN and cubic spinel CFO phases, with no secondary phases detected. Microstructural observations revealed dense composites (>90%), consisting of submicrometric CFO grains distributed along the grain boundaries of micrometric KNN grains. Composites with an average CFO grain size less than or equal 300 nm tend to be arranged as chains along the KNN grain boundaries, whereas composites with an average CFO grain size larger or equal 400 nm form agglomerates without chain-like structures. The CFO/KNN interface appeared sharp, with no interdiffusion observed down to the nanometric scale. All studied composites exhibit ferroelectric, capacitive and resistive behavior at room temperature. These ferroelectric properties deteriorate with increasing CFO weight fraction. In parallel, all composites show dominant ferromagnetic behavior at room temperature. These magnetic properties are also reduced when the average CFO grain size and their agglomeration surface increase. Through microstructural control and optimization of the CFO/KNN interface, our environmentally friendly ceramic composites demonstrate strong potential for magneto-elasto-electric coupling at room temperature.

Keywords : Composite ceramics, CFO-KNN, Spark Plasma Sintering, dielectric properties, magnetic properties