

# Élaboration et caractérisation des propriétés thermiques d'un matériau à gradient de propriétés céramique/métal.

## Development and characterization of the thermal properties of a ceramic/metal gradient material.

Baraa SAIDANI<sup>1</sup>, Julie CEDELLE<sup>1\*</sup>, Damien BREGIROUX<sup>2</sup>, Johann PETIT<sup>1</sup>, Jihed ZGHAL<sup>1</sup>, Isabelle BRUANT<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire Energétique Mécanique Electromagnétisme, Université Paris Nanterre  
Rue de Sèvres – 92410 Ville d’Avray

<sup>2</sup>Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris, Sorbonne Université  
Place Jussieu– 75005 Paris

\*(auteur correspondant : julie.cedelle@parisnanterre.fr)

**Résumé** - Les matériaux à gradient de fonction (FGM) combinent céramique et métal via une transition continue, offrant des propriétés complémentaires pour des environnements extrêmes. L'étude se concentre sur un FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub>, élaboré par frittage flash (SPS), avec une transition progressive de composition. Des analyses de conductivité thermique et de dilatation ont révélé une loi de puissance modélisant la variation des propriétés selon le gradient. Ces résultats améliorent la précision des modèles numériques et ouvrent des perspectives pour des applications exigeant un contrôle précis des propriétés thermiques.

**Abstract** - Function gradient materials (FGMs) combine ceramics and metals via a continuous transition, offering complementary properties for extreme environments. The study focuses on a Ni/BaTiO<sub>3</sub> FGM, developed by plasma sintering (SPS), with a gradual transition in composition. Thermal conductivity and expansion analyses revealed a power law modeling the variation of properties with gradient. These results improve the accuracy of numerical models and open up prospects for applications requiring precise control of thermal properties.

### Nomenclature

$L$	longueur, m	$\alpha$	Coefficient de dilatation thermique, $10^{-6} \text{ K}^{-1}$
$k$	indice, sans unité		
$T$	Température, K	$\lambda$	Conductivité thermique, $\text{W.m}^{-1}\text{K}^{-1}$

## 1. Introduction

Depuis quelques années, les matériaux à gradient de fonction (FGM, *Functionally Graded Materials*) ont émergé, initialement développés pour résoudre des problématiques thermiques [1]. Leur spécificité réside dans la variation continue de leurs propriétés selon une ou plusieurs directions, associant typiquement des matériaux céramiques et métalliques aux caractéristiques complémentaires via une transition progressive [2]. Récemment, ces concepts ont été étendus aux matériaux piézoélectriques, donnant naissance aux FGPM (*Functionally Graded Piezoelectric Materials*). Ces matériaux innovants permettent d'améliorer la récupération d'énergie et le contrôle actif des vibrations [3,4], tout en évitant les limitations des structures multicouches classiques, comme le délaminate ou le décollement des pastilles piézoélectriques.

Au sein du Laboratoire Énergétique Mécanique Électromagnétisme (LEME), une étude sur l’élaboration et la caractérisation d’un FGPM à base de Ni/BaTiO<sub>3</sub> a été menée en collaboration avec le Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris [5]. Des échantillons multicouches cylindriques ont été fabriqués grâce à la technique de frittage par plasma (SPS). Les travaux réalisés ont permis de caractériser les propriétés thermiques, mécaniques et piézoélectriques des échantillons, en proposant notamment une loi d’homogénéisation pour la conductivité thermique. Cet article présente une partie de ces travaux, en mettant l’accent sur l’élaboration et la caractérisation de propriétés telles que la conductivité thermique et la dilatation thermique du FGM avant sa polarisation.

## 2. Élaboration des échantillons

Les pastilles cylindriques FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub> ont été élaborées par la technique de SPS (*Spark Plasma Sintering*) à partir de mélanges de deux poudres. La poudre céramique utilisée est du BaTiO<sub>3</sub> nanométrique ( $\phi_{\text{grain}} \leq 100\text{nm}$ ) et la poudre métallique est du Nickel micrométrique ( $\phi_{\text{grain}} \leq 1\mu\text{m}$ ). Dans cette première étude, nous avons choisi d’élaborer un FGM ayant une variation de composition en pourcentage massique linéaire dans l’épaisseur, allant d’une composition de 100% Ni à celle de 100% BaTiO<sub>3</sub>. Pour ce faire, nous avons décidé de l’obtenir à partir de 5 couches de mélanges superposées et d’épaisseur égale. Ainsi, le FGM sera obtenu à partir des mélanges de poudres suivants : 100% Ni ,75% Ni -25%BaTiO<sub>3</sub>, 50% Ni - 50% BaTiO<sub>3</sub>, 25%Ni - 75% BaTiO<sub>3</sub>, 100% BaTiO<sub>3</sub>.

### 2.1. Le procédé d’élaboration SPS

Le procédé de frittage flash SPS s’appuie sur des temps de traitement thermique très brefs par l’application simultanée de décharges de courant continu pulsé de faible tension et d’une grande intensité (1500 A) et d’une pression uni-axiale externe [6]. Cette combinaison permet d’augmenter significativement les cinétiques de frittage, rendant possible la fabrication de matériaux nanostructurés et la possibilité d’obtenir des pièces complètement denses à des températures relativement basses. Les échantillons obtenus ont la forme des petites pastilles denses, de diamètre 10 ou 15 mm et d’épaisseur pouvant varier de 2.5 à 5 mm. La poudre préparée est placée dans une matrice en graphite d’un diamètre intérieur de 10 mm. L’ensemble est positionné dans la chambre SPS (Figure 1), où un thermocouple, inséré dans un orifice latéral de la matrice, contrôle précisément la température. Une fois en place, la chambre est mise sous vide et une charge uni axiale minimale 100 MPa est appliquée pour garantir le bon déroulement du processus de frittage.

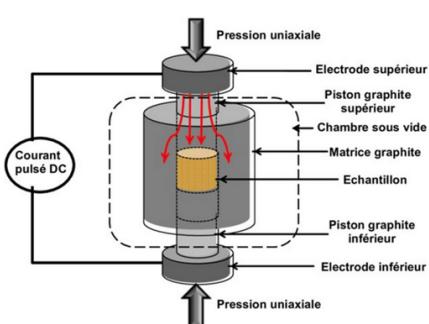


Figure 1 : Principe du procédé d’élaboration SPS

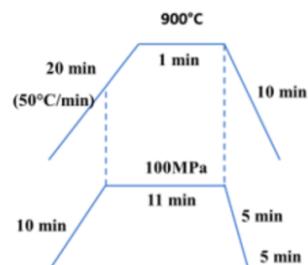


Figure 2 : Cycle de frittage

Les densités relatives des échantillons monolithiques, comprises entre 96 % et 98 % mettent en évidence l'efficacité du procédé SPS pour produire des matériaux à la fois denses et homogènes. Cette densité élevée, proche de la densité théorique, confirme que le SPS permet de réduire au maximum les porosités tout en assurant des propriétés mécaniques et fonctionnelles optimales dans les mélanges BaTiO<sub>3</sub>-Ni.

## 2.2. Microstructure des échantillons

La figure 3 présente un échantillon FGM d'une épaisseur de 3 mm fabriqué à partir de 5 couches de mélange de poudre superposées.



Figure 3 : Observation microscopique de la coupe transversale du FGM  
Ni/BaTiO<sub>3</sub>

Figure 4 : Échantillons monolithiques représentant les différentes sections du FGM

L'analyse microstructurale des différentes couches ainsi que des interfaces du FGM a montré qu'elles pouvaient être considérées comme idéales [5]. Cela nous a permis d'assimiler chaque monolithe de mélange présentés sur la figure 5 à une section spécifique du FGM. Ainsi, les mesures expérimentales effectuées sur chacun de ces monolithes ont été utilisées pour interpoler la loi de variation des diverses propriétés.

## 3. Mesures expérimentales

### 3.1. Mesure de la conductivité thermique

Dans un matériau à gradient de fonction, la conductivité thermique  $\lambda$  varie spatialement le long du gradient. Cela est dû à la transition progressive entre différentes phases du matériau, telles que la céramique BaTiO<sub>3</sub> et le métal Ni dans le FGM de notre étude. Cette variation spatiale est généralement modélisée par des lois de mélange, telles que la loi de puissance qui relie la conductivité thermique au gradient de composition. La conductivité thermique d'un FGM est influencée par plusieurs facteurs, notamment la proportion des phases constitutives, la microstructure du matériau et la température. Par exemple, les transitions de phase peuvent provoquer des variations significatives de la conductivité thermique.

La conductivité thermique a été déterminée conformément à la norme ISO 22007-2 :2015, en utilisant la méthode de la source plane transitoire développée par Gustafsson [7]. Une sonde Hot Disk TPS2500 a été placée entre deux échantillons identiques. Pendant 10 secondes, la sonde applique une puissance électrique constante, suffisamment élevée pour provoquer une augmentation de température de 0,5 K à la surface des échantillons. L'évolution de cette température est mesurée en fonction du temps. La sonde sert de détecteur de température, et la variation de la température de surface, mesurée via la résistance, est directement liée aux propriétés de transport thermique du matériau. La conductivité thermique est ainsi obtenue en

analysant la réponse thermique de la surface pendant le chauffage. Pour éviter toute incertitude liée aux conditions aux limites radiatives et convectives, le modèle et l'expérience se basent sur l'hypothèse d'une géométrie semi-infinie. Les dimensions des échantillons respectent les contraintes de la norme, ce qui les qualifie comme semi-infinis.

### 3.2. Mesure du coefficient de dilatation thermique

Les mesures des coefficients de dilatation ont été réalisés à l'aide du dilatomètre Netzsch DIL 402 C. Ce dilatomètre à poussoir horizontal permet de mesurer les variations de longueur des matériaux, conformément à la norme DIN 51045. Il est conçu pour fonctionner sur une large plage de températures, allant de -180°C à 1650°C. Le dilatomètre mesure les variations de longueur des échantillons en fonction de la température. L'échantillon est positionné dans un porte-échantillon en alumine, maintenu par une tige de poussée avec une force de contact réglable entre 15 et 45 cN. Lors de la dilatation de l'échantillon, la tige se déplace, ce qui induit un courant électrique qui est amplifié et proportionnel la dilatation. Un thermocouple de type Pt-Pt/Rh (type S), intégré au porte-échantillon, garantit un contrôle précis de la température. Le chauffage est assuré par un four à haute température avec un élément en carbure de silicium, pouvant atteindre 1650 °C avec une vitesse de chauffe optimale de 5 °C/min. Les variations dimensionnelles de l'échantillon sont enregistrées en continu et analysées via un logiciel connecté.

Le cycle thermique est présenté sur la figure 5. L'appareil est étalonné avant les mesures, utilisant le même cycle thermique, à l'aide d'un étalon en alumine et sous atmosphère d'argon.

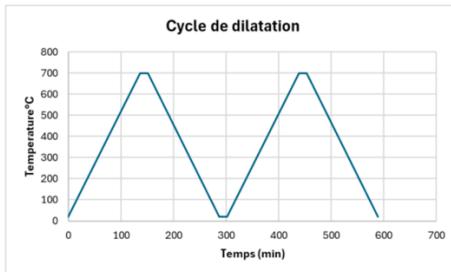


Figure 5 : Cycle thermique mis en œuvre

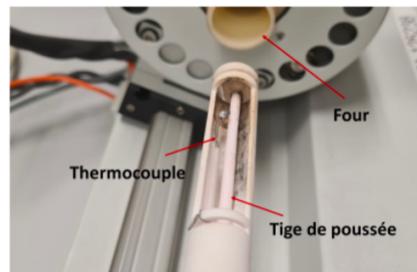


Figure 6 : Dilatomètre Netzsch DIL 402 C

#### 3.2.1. Coefficient de dilatation

Le coefficient de dilatation linéique, noté  $\alpha$ , quantifie la variation relative de la longueur d'un matériau en fonction de la température, sous l'hypothèse d'une contrainte mécanique négligeable. Il est défini par la relation :

$$\alpha = \frac{\Delta L}{L_0} \Delta T \quad \text{Équation 1}$$

Il joue un rôle crucial dans le dimensionnement des structures soumises à des variations thermiques. L'état de l'art [5] donne un coefficient de dilatation thermique du nickel compris entre  $13 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  et  $16 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Pour le BaTiO<sub>3</sub>, ce coefficient dépend fortement de la température en raison des transitions de phase du matériau. Il passe de  $8,6 \times 10^{-6}/\text{K}$  à  $17,5 \times 10^{-6}/\text{K}$  dans la plage de température de 120°C à 1050°C.

Dans le cas des matériaux à gradient de fonction (FGM), la variation progressive de composition entraîne une variation continue des propriétés thermomécaniques, dont le coefficient de dilatation linéique. Pour ces matériaux,  $\alpha$  n'est pas constant mais évolue selon la direction du gradient de composition. Il est généralement modélisé par des lois analytiques (par exemple, une loi de puissance ou exponentielle) en fonction de la fraction volumique des phases et de la microstructure locale. Cette évolution graduelle de  $\alpha$  permet de minimiser les contraintes thermiques internes, rendant les FGM particulièrement adaptés aux environnements soumis à des gradients thermiques sévères.

## 4. Résultats et Analyses

### 4.1. Résultats expérimentaux

Les essais réalisés avec le dilatomètre en fonction du cycle thermique présenté sur la figure 5 nous ont permis d'obtenir des courbes montrant l'allongement relatif du matériau en fonction de la température (figure 7 et 8) à partir desquelles on peut déterminer le coefficient de dilatation thermique  $\alpha$  et déduire des propriétés thermiques et physique de nos échantillons.

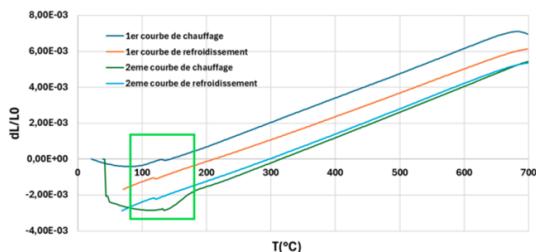


Figure 7 : Courbe de dilatation 100 % BT

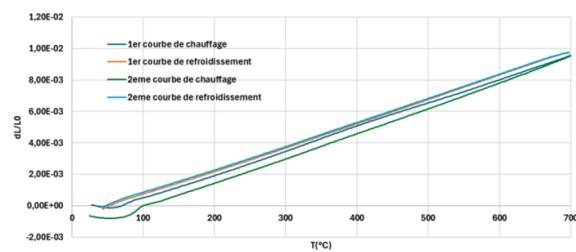


Figure 8 : Courbe de dilatation 100 % Ni

Les courbes de dilatation du BaTiO<sub>3</sub> (figure 7) monolithique présentent un point d'inflexion visible aux alentours de 110°C-120°C. Ce point marque la transition de phase de la structure tétragonale à la structure cubique, correspondant à la température de Curie du matériau. Pour obtenir et maintenir la polarisation du titanate de baryum il sera donc nécessaire de rester en dessous de cette température. On observe également un léger décalage du point d'inflexion entre les courbes de chauffage et de refroidissement. Cela peut s'expliquer par un effet de même type surfusion observable lors des transitions solide-liquide ou par une différence entre la température mesurée et celle réelle de l'échantillon, qui pourrait manquer d'homogénéité. Ce dernier point est aussi illustré par l'écart entre les courbes à une même température.

À partir de ces courbes, le coefficient de dilatation thermique du Ni et du BaTiO<sub>3</sub> a été calculé dans l'intervalle de température de 250°C à 500°C. Les valeurs obtenues sont respectivement de  $16 \times 10^{-6} \cdot K^{-1}$  pour le nickel et de  $14 \times 10^{-6} \cdot K^{-1}$  pour le BaTiO<sub>3</sub>, en accord avec les données de la littérature [5].

Les résultats des mesures expérimentales des conductivités thermiques et des coefficients de dilatation thermique (250°C-500°C) réalisées sur les différents échantillons sont présentés dans le tableau 1 :

	$\lambda$ W.m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	$\alpha$ 10 <sup>-6</sup> . K <sup>-1</sup>
100 % BaTiO <sub>3</sub>	2,8	14
75% BT-25% Ni	9,7	14,7
50% BT-50% Ni	31,5	15,5
25% BT-75% Ni	54,4	15,9
100% Ni	87,7	16

Tableau 1 : Mesures des conductivités thermiques et des coefficients de dilatation thermique

Les résultats obtenus, en accord avec les données de la littérature, montrent que le procédé SPS permet de garantir les propriétés thermiques des couches 100% Ni et 100% BaTiO<sub>3</sub>. Ainsi on peut conclure que ce procédé permet d'assurer la transition de propriétés souhaitée pour le FGM Ni/BaTiO<sub>3</sub>.

#### 4.2. Analyse et discussion

Dans le cadre de cette étude, nous avons examiné la possibilité d'appliquer une loi basée sur le modèle de Voigt [5,8] pour décrire l'évolution des propriétés à travers l'épaisseur de notre matériau à gradient de fonction (FGM). Ce modèle suppose que chaque phase contribue de manière additive et proportionnelle à la propriété totale, sans prendre en compte les interactions complexes entre les différentes phases. L'équation 2 exprime cette loi, qui est utilisée pour approximer la propriété macroscopique  $P$  effective.

Dans une version étendue du modèle de Voigt, un exposant  $k$  peut être introduit afin de rendre compte d'une variation non linéaire des propriétés du FGM à travers son épaisseur. L'indice  $k$  devient alors un paramètre ajusté expérimentalement, permettant d'affiner le modèle pour mieux refléter le comportement réel des matériaux à gradient de fonction. La relation suivante exprime cette généralisation. En considérant un matériau FGM métal/céramique de hauteur  $h$ , dont le gradient est orienté selon la direction  $z$ , on peut écrire :

$$P(V_m) = (P_m - P_c)(V_m)^k + P_c = (P_m - P_c)(z/h)^k + P_c \quad \text{Equation 2}$$

Avec  $V_m$  la fraction volumique de la phase métallique considérée ici linéaire en  $z$ .

$P_c$  et  $P_m$  sont les propriétés du matériau considéré (respectivement céramique et métallique) et  $k$  est l'indice qui pilote la variation de la propriété  $P$  en fonction de  $V_m$ . La variation de ce paramètre permet d'obtenir différents profils dans la direction de l'épaisseur de l'échantillon pour chaque propriété  $P$ .

Les travaux récents réalisés dans le cadre d'une thèse [5,9] sur l'évolution des propriétés mécaniques, telles que la dureté et le module d'Young, sur des échantillons similaires ont montré que le coefficient  $k$  diffère selon chaque propriété  $P(z)$ . Ce résultat contraste avec la valeur de  $k=1$  souvent utilisée dans les modèles numériques, en raison de la méconnaissance des évolutions réelles des propriétés [9].

Les résultats expérimentaux présentés dans le tableau 1 confirment que la loi proposée par l'équation 2 est également adaptée pour décrire l'évolution de la conductivité thermique ainsi que du coefficient de dilatation thermique à travers l'épaisseur du FGM. L'analyse des résultats relatifs à la conductivité thermique indique que l'exposant  $k$  dans l'équation 2 est de 1,6, ce qui

permet de modéliser correctement la variation de cette propriété. En revanche, pour le coefficient de dilatation thermique, l'analyse montre que l'exposant  $k$  doit être égal à 0,65 afin de traduire correctement la variation de cette propriété au travers de l'épaisseur.

Les résultats obtenus, qui montrent des valeurs de  $k$  variant en fonction des propriétés, soulèvent une question centrale : dans quelle mesure pouvons-nous agir expérimentalement sur  $k$  ? En particulier, est-ce que la modification des paramètres d'élaboration entraînera la même variation de  $k$  pour chaque propriété ? Ces réflexions ouvrent des perspectives de recherche prometteuses. Optimiser  $k$  dès la phase d'élaboration pourrait notamment avoir des applications significatives, par exemple en contrôle actif des vibrations, où cela permettrait d'améliorer la précision et l'efficacité des systèmes.

## 5. Conclusion

Cette étude a permis d'élaborer et de caractériser un matériau à gradient de propriétés (FGM) à base de Ni/BaTiO<sub>3</sub>, fabriqué par frittage flash SPS. Les résultats obtenus démontrent que ce procédé garantit une transition homogène des propriétés thermiques, tout en maintenant une densité élevée et une microstructure optimisée.

L'analyse expérimentale des propriétés thermiques a confirmé l'adéquation de la loi utilisée pour modéliser les variations des propriétés dans l'épaisseur du matériau. Ces résultats remettent en question l'utilisation d'un coefficient  $k = 1$  dans les modèles numériques classiques, en soulignant l'importance de paramètres microstructuraux spécifiques pour améliorer les prédictions et performances des FGMS.

Dans la continuité de ces travaux, nos recherches se concentrent désormais sur la réalisation d'un matériau à gradient de fonction piézoélectrique (FGPM), intégrant une transition progressive des propriétés électriques et mécaniques afin d'optimiser le couplage électromécanique, notamment pour des applications en récupération d'énergie ou en capteurs fonctionnant sous des contraintes complexes.

Les premières étapes de polarisation sont en cours, avec des tests exploratoires visant à déterminer les conditions optimales de champ électrique et de température pour obtenir un alignement homogène des dipôles au sein du gradient. La polarisation pourrait également influencer les propriétés thermiques et mécaniques du matériau, notamment en modifiant la conductivité thermique via l'orientation des dipôles et en induisant des effets de couplage entre les domaines ferroélectriques et la structure cristalline. L'impact de ces phénomènes sera étudié afin d'optimiser les performances globales du FGPM et son adaptation aux environnements contraints.

## Références

- [1] M. Koizumi, FGM activities in Japan. *Composites part b: engineering*, (1997), 28(1-2):1–4.
- [2] H. Yin et al. Micromechanics-based elastic model for functionally graded materials with particle interactions. *Acta Materialia*, (2004), 52(12) :3535–3543.
- [3] Y. Amini et al. Time domain and frequency domain analysis of functionally graded piezoelectric harvesters subjected to random vibration: *Finite element modeling*, (2016), 136 :384–393.
- [4] K. Larkin and A. Abdelkefi, Neutral axis modeling and effectiveness of functionally graded piezoelectric energy harvesters. *Composite Structures*, (2019). 213(January) :25–36.
- [5] Saidani B., Élaboration et caractérisation d'un matériau à gradient de propriétés céramique/métal pour la conception d'un transducteur piézoélectrique, *Thèse, Université Paris Nanterre*. (2025).

- [6] Mouawad B., Assemblages innovants en électronique de puissance utilisant la technique de “ Spark Plasma Sintering ”. *Thèse, INSA de Lyon*. (2013).
- [7] Gustafsson S.E., Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials, *Rev. Sci. Instrum.* 62 (3), March 1991 pp797-804.
- [8] Saidani B et al. Evaluation of mechanical properties of Ni/BaTiO<sub>3</sub> functionally graded material, *Mechanics & Industry* 25, (2024)10.
- [9] J. Maruani, Modélisation et optimisation des matériaux piézoélectriques à gradient de propriétés (FGPM), application au contrôle actif de structures planes, *Thèse, Université Paris-Nanterre*, (2019).