



AVIS DE SOUTENANCE DE THESE

Le Doyen de la Faculté des Sciences Dhar El Mahraz –Fès – annonce que

Mr **MOUTAOUAFI Adil**
Soutiendra : le Samedi 23/12/2023 à 10H00
Lieu : **FSDM – Centre Visioconférence**

Une thèse intitulée :

**Elaboration et étude des propriétés structurales, optiques et diélectriques
de BaTiO₃ pur et dopé au La ou au Ho**

En vue d'obtenir le **Doctorat**

FD : **Sciences des Matériaux et Procédés Industriels**

Spécialité : **Sciences des Matériaux pour l'énergie et l'environnement**

Devant le jury composé comme suit :

Nom et prénom	Etablissement	Grade	Qualité
Pr FILALI Mohammed	Faculté des Sciences Dhar El Mahraz, Fès	PES	Président
Pr HAJJI Lahoucine	Faculté des Sciences et Techniques, Marrakech	PES	Rapporteur & Examineur
Pr JABER Boujema	Centre National pour la Recherche Scientifique et Technique, Rabat	PES	Rapporteur & Examineur
Pr ABABOU Yahya	Faculté des Sciences Dhar El Mahraz, Fès	PES	Rapporteur & Examineur
Pr SQALLI HOUSSAINI Driss	Faculté des Sciences et Techniques, Fès	PES	Examineur
Pr NAJI Mohamed	Faculté des Sciences Dhar El Mahraz, Fès	PH	Examineur
Pr SAYOURI Salaheddine	Faculté des Sciences Dhar El Mahraz, Fès	PES	Invité
Pr RJEB Abdelilah	Faculté des Sciences Dhar El Mahraz, Fès	PES	Directeur de thèse



Résumé :

Le travail de recherche, développé dans le présent mémoire concerne l'élaboration, par voie sol gel, et les caractérisations structurales, optiques et diélectriques de BaTiO_3 pur et dopé, d'abord à différentes concentrations en lanthane selon la formule chimique $\text{Ba}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$ (BL_xT) ($x=0 ; 0,25 ; 0,5 ; 0,75 ; 1,5$ et 3%) et ($x=0 ; 5, 10 ; 20$ et 30%), puis, en un deuxième temps, à différents concentrations en l'holmium selon la formule $\text{Ba}_{1-x}\text{Ho}_x\text{TiO}_3$ (BH_xT) ($x=0 ; 0,25 ; 0,5 ; 0,75 ; 1 ; 1,5$ et 2%). Les résultats de diffraction des rayons X (DRX), des spectroscopies infrarouge et Raman montrent que tous les échantillons cristallisent dans la phase pérovskite pure, sans la présence de phases secondaires, et que l'évolution de la quadracité c/a montre que plus la teneur en (Ho et La) augmente, plus la tétragonalité de la phase diminue, ce qui indique une transition de la phase quadratique (BT pur) vers la phase pseudo-cubique. De plus, les ions Ho^{3+} et La^{3+} sont montrés substituer les ions Ba^{2+} et Ti^{4+} dans la structure de référence BaTiO_3 . L'analyse par microscopie électronique à balayage (MEB) a montré que le dopage par le lanthane favorise la décroissance de la taille des grains. Par contre, la taille moyenne des grains augmente avec l'augmentation du taux d'holmium. Les valeurs des énergies de gap pour les échantillons dopés (BH_xT) sont inférieures à celles de la valeur correspondante de BaTiO_3 pur ($3,256$ eV), et l'énergie d'Urbach diminue avec l'augmentation de la teneur en Ho jusqu'à $x = 0,5\%$ puis augmente pour $x > 0,5\%$. Les mesures diélectriques (permittivité et pertes) des échantillons pur et dopé ont été étudiées en fonction de la température et de la fréquence, et les résultats montrent que le dopage au lanthane entraîne une diminution de la température de transition ferro- paraélectrique (TFP) jusqu'à la concentration $x= 20\%$ ($T_C = -104^\circ\text{C}$), suivie d'une augmentation pour $x = 30\%$ ($T_C = 55^\circ\text{C}$). En outre, la permittivité des échantillons BH_xT frittés à 1200°C deviant faible et augmente avec l'augmentation du taux de Ho, et la température correspondante de la TFP reste pratiquement indépendante de la fréquence, alors que ceux frittés à 1300°C ont montré une amélioration à la fois du maximum de la permittivité (ϵ_{max} atteint la valeur 262446 pour le composé $\text{BH}_{1,5}\text{T}$ fritté à $1300^\circ\text{C}/4\text{h}$ à 1kHz) et de la TFP. Les pertes diélectriques se sont avérées relativement faibles pour les échantillons frittés à 1200°C , cependant, elles sont plus élevées pour ceux frittés à 1300°C et dépendantes de la fréquence. D'autre part, l'étude des propriétés piézoélectriques des échantillons BH_xT frittés à $1300^\circ\text{C}/4\text{h}$ montrent que le facteur de couplage électromécanique planaire K_p augmente avec l'augmentation de la concentration en dopant.

Mots clés : Sol-gel, Céramique, BaTiO_3 , Dopage, Lanthane, Holmium, DRX, IRTF, Raman, Energie de gap, MEB, Diélectrique, Piézoélectrique, Cycle d'hystérésis



Elaboration and study of the structural, optical and dielectric properties of pure BaTiO₃ and doped with La or Ho

Abstract:

This thesis dealt with the elaboration by sol-gel route, and the study of structural, optical and dielectric properties of pure BaTiO₃ and doped with different concentrations of Lanthanum, Ba_{1-x}La_xTiO₃ (BL_xT) (x=0; 0.25; 0.5; 0.75; 1.5 and 3%) and (x=0; 5, 10; 20 and 30%), and Holmium, Ba_{1-x}Ho_xTiO₃ (BH_xT) (x=0; 0.25; 0.5; 0.75; 1; 1.5 and 2%). The results of X-ray diffraction (XRD), infrared and Raman spectroscopies showed that all the samples are well crystallized in the pure perovskite phase without the presence of secondary phases, and that the evolution of the quadracity, c/a, showed that more the content of (Ho and La) increased, the more the tetragonality of the phase decreased, which indicated a transition from the quadratic phase (pure BT) to the pseudo-cubic phase (doped samples). Moreover, Ho³⁺ and La³⁺ ions can replace the two Ba and Ti sites in the BaTiO₃ lattice. Scanning electron microscopy (SEM) analysis showed that Lanthanum doping decreased the grain size, while the opposite effect was observed when doping with Ho. The values of the gap energies for the doped samples (BH_xT) were lower than those of the pure BaTiO₃ (3.256 eV) and the Urbach energy decreased with increasing Ho content up to x = 0.5% before it increased. The dielectric measurements (permittivity and losses) performed on the pure and doped compounds sintered at 1200°C were studied as a function of temperature and frequency, and the results showed that Lanthanum doping led to a decrease in the ferro-paraelectric transition temperature (FPT) for concentrations such as x ≤ 20% (T_C = -104°C), followed by an increase for x = 30% (T_C = 55°C), while the permittivity of the BH_xT samples sintered at 1200°C became low and increased with increasing Ho rate and the corresponding temperature of the FPT was nearly frequency independent. However the BH_xT compositions sintered at 1300°C showed an improvement of both the maximum permittivity (ε_{max} reached the value 262446 for the BH_{1.5}T case sintered at 1300°C/4h) and of the FPT temperature. Dielectric losses were found to be relatively low for samples sintered at 1200°C, however, they were higher for those sintered at 1300°C and frequency dependent. In addition, the study of the piezoelectric properties of the BH_xT samples sintered at 1300°C/4h showed that the planar electromechanical coupling factor K_p increased with increasing dopant concentration.

Mots clés : Sol-gel, Céramique, BaTiO₃, Dopage, Lanthane, Holmium, DRX, IRTF, Raman, Energie de gap, MEB, Diélectrique, Piézoélectrique, Cycle d'hystérésis