

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE**

**Ministère de l'enseignement Supérieur et de la recherche scientifique**

**Université FERHAT ABBAS -SETIF-**

**Faculté des Sciences de l'Ingénieur**

**Département de l'électronique**

## **MEMOIRE**

En vue de l'obtention d'un diplôme de magister  
En électronique

### **Option**

Instrumentation

### **Thème**

## **Etude et simulation du comportement des matériaux diélectriques à fréquence fixe**

Présenté par : REDDAF A/MALEK

Soutenu le ..../...../2009 devant la commission d'examen :

<b>A. MERZOUKI</b>	Professeur à l'université de Sétif	Président
<b>N. BOUZIT</b>	Professeur à l'université de Sétif	Rapporteur
<b>F. DJAHLI</b>	Professeur à l'université de Sétif	Examineur
<b>N. BOUKEZZOULA</b>	MC à l'université de Sétif	Examineur
<b>A. FARHAT HAMIDA</b>	MC à l'université de Sétif	Examineur

# REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier plus singulièrement Monsieur **Nacerdine BOUZIT** professeur à l'université de Ferhat Abbas de Sétif pour m'avoir proposé le thème qui a fait l'objet de ce mémoire ; je tiens également à lui exprimer ici ma gratitude et ma profonde reconnaissance pour son encadrement et les inappréciables conseils le long de la réalisation de ce travail.

Je tiens remercier également Monsieur **Abdelaziz Merzouki** professeur à l'université de Ferhat Abbas de Sétif de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de ma soutenance et d'avoir accepté de juger ce travail.

Je remercie aussi Monsieur **Farid DJAHLI** professeur à l'université de Ferhat Abbas de Sétif d'avoir examiné ce travail et accepté de participer à mon jury de ce mémoire.

Je remercie pareillement Monsieur **N.BOUKAZZOULA** Maitre de conférence à l'université de Ferhat Abbas de Sétif d'avoir examiné ce travail et accepté de participer à mon jury de ce mémoire.

Je remercie pareillement Monsieur le professeur **A. FARHAT HAMIDA** Maitre de conférence à l'université de Ferhat Abbas de Sétif d'avoir examiné ce travail et accepté de participer à mon jury de ce mémoire.

Que tous ceux qui ont de près ou de loin, participé à la réussite de ce mémoire soient aussi remerciés.

Enfin, bonne chance à tous les étudiants de post-graduation pour la suite de leurs travaux .et que ce que j'ai oubliés me pardonne.

# SOMMAIRE

<b>INTRODUCTION GENERALE.</b>	1
<b>CHAPITRE I : RAPPEL D'ELECTROMAGNETISME.</b>	
I.1 Généralités	3
I.2 Les équations de bases	4
I.2.1 Equations de maxwell	4
I.2.2 Equation de Laplace	6
I.2.3 Equation de propagation	6
I.3 Interaction des ondes centimétriques avec une substance	7
I.4 Propagation des ondes électromagnétiques	9
I.4.1 Guides rectangulaires en modes $TE_{mn}$	10
I.4.1.1 Expression des champs	10
I.4.1.2 Interprétation des résultats	11
I.4.1.3 Cas particulier du mode $TE_{10}$ ( $m=1$ )	12
I.4.1.4 Onde évanescence	13
I.4.1.5 Onde stationnaire dans le guide	13
I.4.2 Mode dominant	14
I.5 Conclusion	16
<b>CHAPITRE II: THEORIES DES MILIEUX EFFECTIFS.</b>	
II.1 Théorie du milieu effectif	17
II.2 Théorie de percolation	18
II.3 Polarisabilité	19
II.4 Les phénomènes électriques dans les matériaux	21
II.4.1 Les phénomènes de transport	21
II.4.2 Les phénomènes de polarisation	22
II.5 Spectroscopie diélectrique	24
II.5.1 Processus de relaxation	24
II.5.2 Modèle de relaxation diélectrique de base	24
II.6 Ferroélectricité	32
II.6.1 Définition	32
II.6.2 Classification des ferroélectriques	34
II.7 Relation entre la permittivité et la température dans les ferroélectriques	35
II.8 Etude cristallographique de $BaTiO_3$	35
II.9 Etude cristallographique de $CaTiO_3$	36
II.10 Conclusion	36
<b>CHAPITRE III : LOIS DE MELANGES.</b>	
III.1 Introduction	37
III.2 Mélange hétérogène	37
III.2.1 Type des mélanges	37
III.2.2 Approximation du milieu effectif généralisé	37
III.2.2.1 Modèle d'Alpha (Lichtenecker)	38
III.2.2.2 Modèle de modélisation de Bottreau	40

III.2.2.3 Loi de Glausius-Mossotti	44
III.2.2.4 Loi de Rayleigh	44
III.2.2.5 Formalisme de Reynold et Hough	45
III.2.2.6 Modèle non consistant	46
III.2.2.7 Modèle auto consistant	49
III.2.2.8 Modèle de Bruggeman symétrique	51
III.2.2.9 Modèle de Hanai	51
III.2.2.10 Modèle de Bruggeman – Hanai	51
III.2.2.11 Modèle de Birchak	52
III.2.2.12 Modèle de Looyenga	53
III.2.2.13Modèle de Me Lachlan	53
III.3 Généralisation des différentes approches	54
III.4Conclusion	55
<b>CHAPITRE IV : ASPECT THEORIQUE.</b>	
IV.1 Introduction	56
IV.2 Principe de mesure	56
IV.3Le dispositif de mesure	57
IV.4Expression du coefficient de réflexion	59
IV.5Les méthodes de multi réflexion	60
IV.5.1 La méthode de la ligne adaptée	61
IV.6 Méthode d'optimisation	62
IV.6 .1Methode de polytope de Nelder-Mead	62
IV.7Les réseaux de neurones artificiels	66
IV.7.1Utilité de réseau de neurone	66
IV.7.2Structure de réseau	67
IV.7.3Algorithme	69
IV.7.4Different type de réseau de neurone	70
IV.8conclusion	71
<b>CHAPITRE V : RESULTATS ET SIMULATIONS.</b>	
V.1 Introduction	72
V.2 préparation des échantillons	72
V.3 Mélange binaire	73
V.2.1Mélange binaire titanate de Calcium et Résine époxyde (RE/TCA)	73
V.2.2Mélange binaire titanate de Baryum et Résine époxyde (RE/TBA)	74
V.2.3.La simulation	76
V.2.4. comparaison des résultats	77
V.3Mélanges ternaires	79
V.3.1.Simulation des lois de mélanges	82
V.3.2.La modélisation par réseau neurone	84
V.4 Analyse et interprétation	87
V.5.Conclusion	90
<b>CONCLUSION GENERALE.</b>	91

# INTRODUCTION GENERALE

L'étude des matériaux composites a commencé il y a plus d'un siècle et les efforts en vue de concevoir de nouveaux produits n'ont cessé d'être soutenus dans différents domaines tels que, l'industrie du sport à l'aérospatiale l'isolation appareillages haute tension et haute fréquence et le domaine le plus intéressant qui est la microélectronique hyperfréquence,

Le succès des matériaux composites provient de la possibilité d'obtenir des propriétés très diverses en fonction des caractéristiques des phases constituantes. La caractéristique effective d'un matériau composite ne dépend pas seulement des propriétés physiques de ses constituants, mais elle est également déterminée par la micro géométrie d'un tel système hétérogène [4]. Il s'agit principalement des formes d'inclusions, de leur répartition dans la matrice, de leur orientation par rapport aux contraintes externes (forces électriques, forces mécaniques, ...), et de leur fraction volumique (concentration). Ainsi, la caractéristique effective du matériau est une fonction très complexe, dépendant de tous ces facteurs, et difficile à décrire [5].

L'étude et la simulation du comportement des matériaux diélectriques hétérogènes à fréquence fixe; englobe l'étude sur les relations entre les propriétés microscopiques et macroscopiques des composites ainsi les lois de mélange, La caractérisation expérimentale, faite au laboratoire de Saragosse Espagne, [18] d'un mélange ternaire constitué de résine Epoxyde, titanate de baryum  $BaTiO_3$  et titanate de calcium  $CaTiO_3$  en fonction de ses fractions volumiques. Les données sont des coefficients de réflexions obtenues par la technique de mesure spectroscopie en domaine de temps "SDT" à fréquence fixé à 500 MHz où elle était faite en collaboration avec le Laboratoire d'Instrumentation Scientifique "LIS" du département d'électronique de Sétif. Au début nous avons simulé deux lois de mélange la loi de Bottreau et la loi de Lichtenecker, ces deux lois sont optimisées par la méthode de l'algorithme de Nelder-Mead qui est utilisée dans la résolution des systèmes compliqués chimiques [50; 51] à fin de déterminer les paramètres inconnus du modèle en exploitant les résultats de mesure; les deux lois nous ont permis de traduire le comportement du composite d'un côté et de sortir la liaison entre eux d'autre côté; ensuite nous avons modélisé le comportement en utilisant les réseaux de neurone qui nous a permis de modéliser le facteur de forme de la répartition des particules dans les composites où règne le phénomène de percolation.

Notre travail s'articulera de la façon suivante :

Dans le premier chapitre, nous présentons un rappel de base de l'électromagnétique dans lequel se place nos études.

Dans le second chapitre, nous introduisons la notion des matériaux hétérogènes et les différentes théories développées pour accéder aux caractéristiques diélectriques. Nous avons retenu plus particulièrement les milieux effectifs qui sont la base de toutes les lois de mélange qu'on expose en troisième chapitre et aussi nous présentons les phénomènes physiques qui peuvent surgir dans les matériaux, et enfin une étude cristallographique des structures pérovskites des composites utilisées.

Dans le troisième chapitre, nous présentons tous les approches des lois de mélanges, et on s'intéresse beaucoup plus en détail au développement de la loi de Lichtenecker et Bottreau.

Dans le quatrième chapitre nous définissons le dispositif et les techniques de mesure en domaine temporel, la réflectométrie en domaine de temps "RDT", qui permet par un traitement de signal associés de passer du domaine de temps au domaine de fréquence qui s'étend du continu à 30 GHz, on s'intéresse à la fréquence fixe de 500MHz qui est prélevé sur cette bande. Ensuite nous présentons l'algorithme de la méthode d'optimisation de Nelder-Mead, enfin une introduction sur les réseaux de neurones donc un aspect théorique utilisé dans la dernière partie.

Enfin, le cinquième chapitre est consacré à l'analyse des résultats obtenus pour le mélange qu'on a cité. Nous étudions les composites à trois constituants résine époxyde avec les deux titanates et leur simulation par les deux lois. L'étude de la modélisation par réseau de neurone en exploitant les résultats des mesures pour voir le comportement de ce mélange et l'interprétation avec les résultats de simulation et modélisation des paramètres d'influence sur ce comportement.

On termine notre travail par une conclusion générale.

CHAPITRE I :

RAPPEL

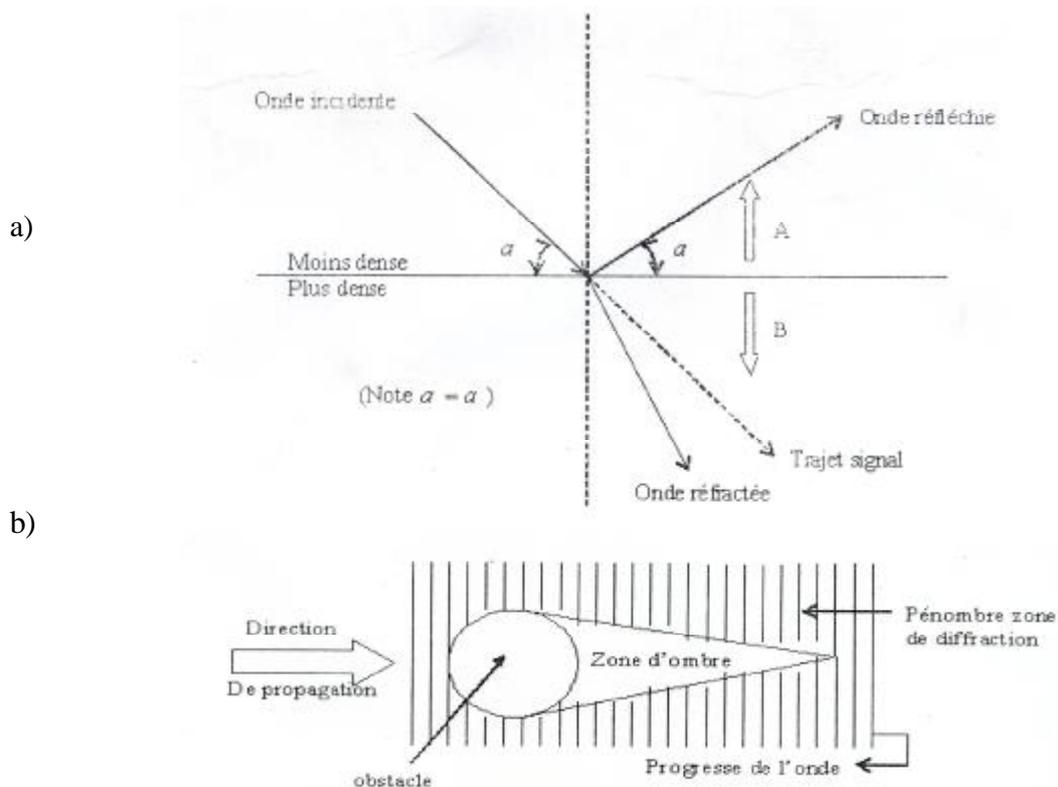
ELECTROMAGNETISME

## I.1 Introduction :

Notre étude est faite dans le domaine des ondes centimétriques, l'application de ces ondes, toujours d'actualité, est celle du radar. Elles sont depuis très utilisées dans le domaine des télécommunications, ces fréquences très élevées autorisent de grandes bandes passantes et des antennes de forte directivité. Il est possible de se servir du très puissant outil mathématique pour étudier les ondes électromagnétiques ainsi la caractérisation diélectrique est basé sur l'étude de l'interaction onde et matière et a fin de mieux situer notre travail ; nous avons dans un premier temps revenir à quelque notions de base sur les théorèmes de l'électromagnétisme et aussi une étude pour les guides d'ondes existants.

## I.2. Généralité : [1 ;2]

Le développement des équations de Maxwell représente assurément un vaste champ de fouilles exploré par certains spécialistes. Le terme isotrope sous entend que la source de rayonnement se représente sous la forme d'une très petite sphère qui rayonne son énergie uniformément dans toutes les directions. Le diagramme de rayonnement est alors une sphère ayant pour centre l'antenne isotrope. Puisque le rayonnement d'une source sphérique est uniforme dans toutes les directions, des calculs simples, sur les principes de la géométrie spatiale, permettent alors de connaître la puissance du signal en tout point. Une onde EM se propage à la vitesse de la lumière. La vitesse de propagation d'une onde est ralentie lorsque la densité de l'environnement augmente. Supposant que l'onde EM soit un «rayon» ou un «pinceau très étroit» qui se diverge pas sur son trajet. Cela signifie que ce rayon gardera une largeur constante tout le long de son parcours.



**Figure I.1:** a) Réflexion et réfraction de l'onde, b) Diffraction de l'onde.

La figure (I.1.A) illustre les phénomènes de réflexion et de réfraction. Une réflexion se produit lorsqu'une onde incidente rencontre un milieu réfléchissant plus dense, exactement comme dans le cas d'un faisceau lumineux qui vient frapper un miroir. L'onde incidente (représentée sous l'aspect d'un rayon unique) frappe la surface de séparation de deux milieux de densité différente sous un angle d'incidence  $\alpha_i$ , elle se réfléchit suivant un angle de même valeur, que l'on appelle l'angle de réflexion  $\alpha_r$ , le phénomène de réfraction se produit lorsque l'onde incidente pénètre dans un milieu ayant une densité différente et subit une modification de son trajet et de sa vitesse de propagation. La qualification de ces changements dépend du rapport des densités des deux milieux. L'angle de réfraction sera élevé si la caractéristique du milieu B (appelée ici indice de réfringence) est beaucoup plus élevée que l'indice de réfringence du milieu A. L'indice de réfringence ou réfringence est une mesure de la faculté d'un milieu à dévier la trajectoire d'un faisceau qui le pénètre. La figure (I.1.b) illustre le phénomène dû à la diffraction. Le front d'onde se propage et rencontre un obstacle opaque (un immeuble métallique par exemple). La zone d'ombre située à l'arrière de l'immeuble n'est pas rigoureusement perpendiculaire à l'onde mais se profile derrière l'obstacle en forme de cône. La zone d'ombre ou "zone de diffraction\*" située au-delà du cône de silence provoqué par l'obstacle constitue un secteur où la puissance du signal est faible, quoique non nulle. Lorsque l'on s'éloigne de l'obstacle dans la zone de pénombre, la puissance reçue recouvre peu à peu un niveau identique à la puissance disponible dans la zone de propagation libre : l'onde se reconstitue de proche en proche, comme une vague se reforme après avoir heurté un rocher.

### 1.3. Les équations de base.

#### 1.3.1 Equations de Maxwell.

Nous rappelons, avec les formules (1.1) à (1.4), l'ensemble des équations de Maxwell complètes, on pourra consulter à ce sujet les références [5 ;6 ;9]

$$\text{rot } \overset{\mathbf{r}}{E}(t, \overset{\mathbf{r}}{r}) = - \frac{\partial \overset{\mathbf{r}}{B}(t, \overset{\mathbf{r}}{r})}{\partial t} \quad (\text{I.1})$$

$$\text{div } \overset{\mathbf{r}}{B}(t, \overset{\mathbf{r}}{r}) = 0 \quad (\text{I.2})$$

$$\text{div } \overset{\mathbf{r}}{D}(t, \overset{\mathbf{r}}{r}) = \overset{\mathbf{r}}{r}_c(t, \overset{\mathbf{r}}{r}) \quad (\text{I.3})$$

$$\text{rot } \overset{\mathbf{r}}{H} = \overset{\mathbf{r}}{J}(t, \overset{\mathbf{r}}{r}) + \frac{\partial \overset{\mathbf{r}}{D}(t, \overset{\mathbf{r}}{r})}{\partial t} \quad (\text{I.4})$$

Les équations de Maxwell doivent être complétées par les relations constitutives qui traduisent les propriétés d'un matériau. Dans le cas d'un milieu homogène isotrope linéaire, elles s'écrivent :

$$\overset{\mathbf{r}}{D} = \overset{\mathbf{r}}{e} \overset{\mathbf{r}}{E} \quad (\text{I.5})$$

$$\overset{\mathbf{r}}{B} = \overset{\mathbf{r}}{m} \overset{\mathbf{r}}{H} \quad (\text{I.6})$$

$$\overset{\mathbf{r}}{j}_c = \partial \overset{\mathbf{r}}{E} \quad (\text{I.7})$$

Où  $\overset{\mathbf{r}}{e} \left( \frac{F}{m} \right)$  désigne la permittivité électrique du milieu,  $\overset{\mathbf{r}}{s} \left( \frac{S}{m} \right)$  sa conductivité électrique et  $\mu$  (H/m) sa perméabilité magnétique. On utilise en général la permittivité relative  $K$ , rapport de la permittivité du milieu avec celle du vide,  $\overset{\mathbf{r}}{e}_0 \left( \frac{F}{m} \right)$  et la perméabilité magnétique relative  $\overset{\mathbf{r}}{m}_r$ , rapport de la perméabilité du milieu avec celle du vide, (Eq.1.9), ou la susceptibilité magnétique  $\chi$  définie par la relation (1. 10):

(I.8)

$$K = \frac{e}{e_0} \rightarrow e_r = \frac{e}{e_0}$$

(I.9)

$$m_r = \frac{m}{m_0}$$

(I.10)

$$c = 1 - m_r$$

Le courant total ( $\dot{J}_T$ ) est la somme du courant de conduction (dû aux charges libres) et du courant de déplacement (dû aux charges liées).  $\dot{J}_T = \dot{j}_l + \dot{j}_c$  et  $\dot{j}_T = \frac{\partial \dot{D}}{\partial t} + \dot{j}_c$

$$\vec{J}_T = e \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + s \vec{E} \quad (I.11)$$

Le courant total ( $\dot{J}_T$ ) peut être vu aussi comme la dérivée par rapport au temps d'un vecteur d'induction totale ( $\dot{D}_T$ ) d'où :

$$\dot{J}_T = \frac{\partial \dot{D}}{\partial t} \quad (I.12)$$

Puisque nous traitons des systèmes linéaires, le théorème de superposition est applicable, et dans le cas d'un champ électrique sinusoïdal de la forme :

$$\underline{\dot{E}} = \underline{\dot{E}}_0 e^{j\omega t} \quad (I.13)$$

On peut décrire sous deux formes équivalentes, en utilisant une conductivité totale ou généralisée  $s_T^\bullet$  ou une permittivité totale  $e_T^\bullet$ .

$$\dot{j}_l = (i\omega e + s) \underline{\dot{E}} = s T^\bullet \underline{\dot{E}} = (e + \frac{s}{i\omega}) \omega \underline{\dot{E}} = e T^\bullet \frac{\partial \underline{\dot{E}}}{\partial t} \quad (I.14)$$

$$\underline{\dot{D}}_T = \int \underline{\dot{J}}_T dt = e T^\bullet \underline{\dot{E}} \quad (I.15)$$

Où  $\underline{\dot{E}}$ ,  $\underline{\dot{J}}_T$  et  $\underline{\dot{D}}_T$  sont les notations complexes respectivement du champ électrique, du vecteur densité de courant et de l'induction électrique. Ils sont aussi appelés phaseurs. Les relations (I.14) et (I.15) montrent formellement, que l'on peut traiter le matériau comme un conducteur, avec une conductivité complexe, la partie imaginaire traduisant le comportement diélectrique du matériau, pour la pulsation  $\omega$  ou comme un diélectrique avec une permittivité complexe  $e_T^\bullet$ . La conductivité complexe totale est directement liée à la permittivité complexe totale (Eq.1.16).

$$s_T^\bullet = i\omega e_T^\bullet \quad (I.16)$$

### I.3.2 Equation de Laplace :

Dans le cas stationnaire ou quasi-stationnaire (on néglige les variations des champs en fonction du temps), si on écrit que le champ électrique dérive du potentiel électrique (I.12), l'utilisation des équations (I.3) et (I.17) permet d'obtenir, pour un milieu homogène, l'équation de Poisson (1.18) qui, en l'absence de charge  $r_c = 0$ , conduit à l'équation de Laplace (1.19) [3].

$$\mathbf{E} = -\text{grad}V \quad (\text{I.17})$$

$$\nabla^2 V = -\frac{r_c}{e} \quad (\text{I.18})$$

$$\text{Si } r_c = 0 \text{ alors } \nabla^2 V = 0 \quad (\text{I.19})$$

Une conséquence directe de l'équation de Laplace est que, dans un diélectrique homogène à l'extérieur duquel règne un champ uniforme, le champ électrique à l'intérieur du diélectrique est aussi uniforme. Les Matériaux qui seront étudiés sont hétérogènes, est constitués de plusieurs composants homogènes. Nous aurons donc à résoudre l'équation de Laplace (1.19) dans chaque constituant, en spécifiant les conditions aux interfaces ; ces dernières expriment, comme nous l'avons déjà mentionné, la conservation de la composante tangentielle du champ électrique et de la composante normale de l'induction. La traduction de ces conditions en utilisant les tensions dans chaque phase s'écrit :

$$V_i = V_j \quad (\text{I.20})$$

$$e_i \frac{\partial V_i}{\partial n} = e_j \frac{\partial V_j}{\partial n} \quad (\text{I.21})$$

Où  $V_i$  et  $V_j$  désignent les potentiels à l'interface entre les phases  $i$  et  $j$ ,  $n$  est la normale.

L'équation de Laplace (1.19) associées aux conditions aux limites ((1.20) et (1.21)) peut être généralisée au cas où les permittivités sont complexes, ce qui permet d'avoir des solutions similaires pour les conductivités ou pour un mélange de diélectriques non parfaits. Cette extension est applicable uniquement dans le cas quasi-stationnaire.

### I.3.3 Equation de propagation

A partir des équations de Maxwell et des relations constitutives, nous pouvons déduire l'équation de propagation [4] vérifiée par le champ électrique (toujours dans le cas d'un milieu homogène). En effet, si on part de la relation vectorielle suivante :

$$\text{rot}(\text{rot}\mathbf{E}) = \text{grad}(\text{div}\mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E} \quad (\text{I.22})$$

Le développement du membre de gauche (en utilisant les équations de Maxwell et les relations constitutives (I.1- 4, I.12 et I.16) permet de déduire l'égalité suivante :

$$\text{rot}(\text{rot}\mathbf{E}) = -m \text{rot}\left(\frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}\right) = -m \frac{\partial}{\partial t}(\text{rot}\mathbf{H}) = -m e \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - m \frac{\partial \mathbf{j}_c}{\partial t} \quad (\text{I.23})$$

Et la première partie de l'équation (I.22) s'écrit également (en utilisant les équations (I.3) et (I.7).

$$\mathbf{grad}(\mathbf{div}\mathbf{E}) = \mathbf{grad}\left(\frac{r_c}{e}\right) \quad (\text{I.24})$$

D'où l'équation d'onde pour le champ électrique.

$$\nabla^2 \mathbf{E} - m\mathbf{e} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mathbf{grad}\left(\frac{r_c}{e}\right) + m \frac{\partial j_c}{\partial t} \quad (\text{I.25})$$

Cette équation d'onde inhomogène montre qu'un champ électrique est produit par des charges et par des courants électriques.

En l'absence de charges ( $r_c = 0$ ) et en utilisant la relation (I.7) l'équation (I.25) devient :

$$\nabla^2 E - sm \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - em \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (\text{I.26})$$

Dans le cas harmonique ( $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{j\omega t}$ ), celle-ci s'écrit :

$$\nabla^2 \underline{E}_0 - g^2 \underline{E}_0 = 0 \quad (\text{I.27})$$

Dans laquelle on introduit de la constante de propagation complexe / qui s'exprime par .  
 $g = a + ib$

$$y = [i\omega m(s + i\omega e)]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{I.28})$$

Où  $a$  est la constante d'atténuation et  $b$  la constante de propagation. Dans le cas d'un diélectrique parfait :

$$s = 0 \Rightarrow a = 0 \text{ et } b = \omega \sqrt{e u} \quad (\text{I.29})$$

Dans le cas d'un diélectrique avec de faibles pertes :

$$s \ll \omega e \Rightarrow a \approx \frac{s}{2} \sqrt{\frac{m}{e}} \text{ et } b \approx \omega \sqrt{em} \quad (\text{I.30})$$

#### I.4 Interaction des ondes centimétriques avec une substance : [5]

Dans toute la physique moderne, ce problème est le plus compliqué, et c'est cependant le plus important. Car depuis les longues ondes de la radio diffusion, jusqu'aux ondes les plus courtes des rayons  $g$ , le domaine est immense, où les radiations électromagnétiques entrent en interaction avec la matière. Dans le petit domaine des ondes centimétriques, nous ferons l'hypothèse simple que l'onde se propage dans le vide intermoléculaire, qu'elle y existe, les centres : atomes, molécules ou même groupes de molécules, et que le résultat que nous observons est la somme de l'onde incidente et des réactions qu'elle a entraînées. Si nous adoptons l'hypothèse quasi statique, ce qui signifie que nous appliquerons les relations de l'électrostatique, nous voyons que le vecteur que nous pourrions observer est le vecteur D :

$$D = e_0(E + P) \quad (\text{I.31})$$

L'étude de la constante diélectrique donnera des résultats importants pour la connaissance de la polarisation de la matière. Il est possible de distinguer trois types d'interaction, qu'il est nécessaire de quantifier :

1- Avec les électrons : c'est plutôt le domaine des radiations lumineuses, mais cette interaction peut avoir des percussions dans le domaine centimétrique.

2- Avec les atomes : les masses étant beaucoup plus élevées que dans le cas précédent, les fréquences à considérer sont aussi beaucoup plus basses et tombent alors dans le domaine centimétrique, ou infrarouge lointain.

3- Avec les molécules entières : l'a encore la fréquence s'abaisse, et c'est dans les derniers domaines que nous observons les courbes de dispersion qui se raccordent d'ailleurs aux courbes obtenus par les indices de réfraction. La relation et d'ailleurs bien connue et s'écrit, même en valeurs imaginaires :

$$\epsilon_0 n^2 = \epsilon \quad (\text{I.32})$$

- nous avons en électrostatique :

$$P = 3 \frac{\epsilon - \epsilon_0}{\epsilon + 2\epsilon_0} E_0 \quad (\text{I.33})$$

Nous en déduisant :

$$\frac{\epsilon}{\epsilon_0} = \frac{1 + 2 \frac{P}{3E_0}}{1 - \frac{P}{3E_0}} = \frac{1 + 2aP}{1 - aP} \quad (\text{I.34})$$

On peut arriver à ces résultats par une méthode due à Faraday et Pellat si nous posons :

$$D = \epsilon_0 (E + P) = \epsilon E \quad (\text{I.35})$$

Nous pouvons écrire pour la fréquence nulle  $\epsilon = \epsilon_1$  :

$$D = \epsilon_1 E \quad \text{d'où} \quad P = \frac{\epsilon_1 - \epsilon_0}{\epsilon_0} E \quad (\text{I.36})$$

Et pour la fréquence infinie, pour laquelle nous avons  $\epsilon_0 n^2 = \epsilon_\infty$

$$P = \frac{\epsilon_\infty - \epsilon_0}{\epsilon_0} E \quad (\text{I.37})$$

Il s'ensuit qu'il existe une polarisation permanente due aux centres considérés :

$$P_0 = \frac{\epsilon_1 - \epsilon_\infty}{\epsilon_0} E \quad (\text{I.38})$$

En introduisant un temps de relaxation  $t$  , nous aurons :

$$P = P_0 \left( 1 - e^{-\frac{1}{t}} \right) \quad (\text{I.39})$$

La formule (1.39) donne la loi de variation de la polarisation en fonction du temps à partir du moment où nous appliquons un champ (supposé statique). La relation différentielle qui lui correspond est :

$$\frac{dP}{dt} = \frac{1}{t} (P_0 - P) \quad (\text{I.40})$$

Si maintenant nous imposant un champ alternatif, que nous introduisant la relation imaginaire  $E = E_0 e^{j\omega t}$ , l'équation différentielle s'écrit :

$$\frac{dP}{dt} = \frac{1}{t} \left( \frac{e_1 - e_0}{e_0} E_0 e^{j\omega t} - P \right) \quad (\text{I.41})$$

D'où nous tirons la valeur de  $P$  :

$$P = c e^{-\frac{1}{t}} + \frac{e_1 - e_\infty}{e_0 (1 + j\omega t)} E_0 e^{j\omega t} \quad (\text{I.42})$$

Et en revenant à la valeur de  $D$  :

$$D = e_0 (E + P) = e_0 (E + P + P_\infty) = eP \quad (\text{I.43})$$

Il vient en posant  $e = e' - j e''$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} e' = e_\infty + \frac{e_1 - e_\infty}{1 + \omega^2 t^2} \\ e'' = (e_1 - e_\infty) \frac{\omega t}{1 + \omega^2 t^2} \end{array} \right\} \quad (\text{I.44})$$

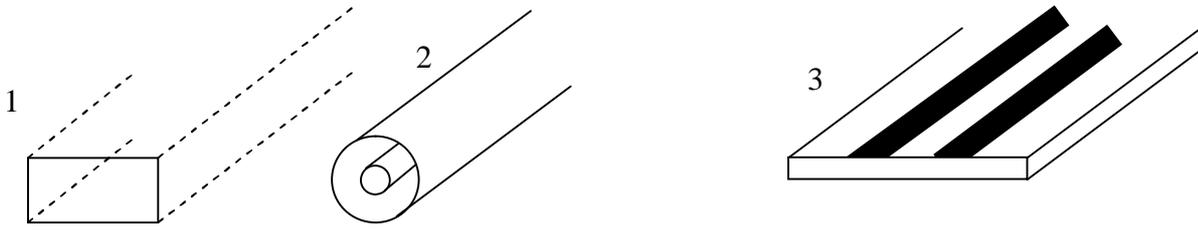
Ces formules permettent de trouver le lieu de point représenté par l'imaginaire  $e$ , c'est-à-dire le point de coordonnées  $e'$ ,  $e''$  qui est le cercle de l'équation.

$$\left( e' - \frac{e_1 + e_\infty}{2} \right)^2 + (e'')^2 = \left( \frac{e_1 - e_\infty}{2} \right)^2 \quad (\text{I.45})$$

## I.5 Propagation des ondes électromagnétiques :

On distingue deux types de propagation :

- La propagation libre (transmission hertzienne, par satellite), à travers un milieu infini.
- La propagation guidée par, figure (1.2):
  - 1) des guides métalliques (rectangulaire ou cylindrique).
  - 2) des lignes coaxiales.
  - 3) des guides « planaires », bifilaires ou micro- rubans, sur des plaquettes de circuits intégrés.

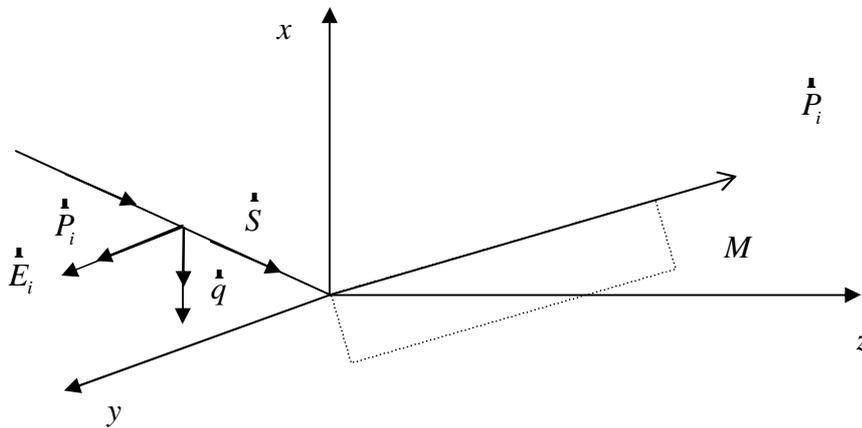


**Figure.1.2;** Divers types de guides d'ondes

### I.5.1 Guides d'ondes rectangulaires en mode $TE_{mn}$ [6 ;7 ;8 ;9] :

#### a) Expression des champs :

Soit une onde plane incidente  $\vec{E}_i, \vec{H}_i$ , se déplaçant parallèlement au plan  $xoz$  et dont le champ électrique  $\vec{E}_i$  est parallèle au plan métallique  $x = 0$ . Nous choisissons l'axe  $oy$  parallèle à  $\vec{E}_i$ ...



**Figure. 1.3:** Vecteur du champ électrique dans un plan  $xyz$ .

Les coordonnées des vecteurs unitaires des champs de l'onde incidente sont :

$$\vec{P}_i(0,1,0); \vec{S}(a,0,g); \vec{q} = \vec{S} \wedge \vec{P}_i(-g,0,a).$$

Les coordonnées des vecteurs unitaires de l'onde réfléchie :

$$\vec{P}'(0,-1,0); \vec{q}'(g,0,a); \vec{S}'(-a,0,g).$$

Déterminons les champs résultant en point  $M(x, y, z)$ ,  $d$  et  $d'$  étant les distances algébriques parcourues par les ondes sur leurs trajectoires :

$$d = OM \cdot \vec{S} = ax + gz \text{ et } d' = OM \cdot \vec{S}' = -ax + gz$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{E}_i = \vec{P} E_0 e^{jw\left(t - \frac{d}{v}\right)} \\ \vec{H}_i = \vec{q} H_0 e^{jw\left(t - \frac{d}{v}\right)} \end{array} \right\} \quad (I.46)$$

Onde réfléchie :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{E}'_r = P' \mathbf{E}_0 e^{jw\left(t-\frac{d}{v}\right)} \\ \mathbf{H}'_r = q' H_0 e^{jw\left(t-\frac{d}{v}\right)} \end{array} \right\} \quad (\text{I.47})$$

Onde résultante:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{E}_i + \mathbf{E}_r \\ \mathbf{H} &= \mathbf{H}_i + \mathbf{H}_r \\ E_x &= 0, \quad E_z = 0, \quad H_y = 0 \end{aligned} \quad (\text{I.48})$$

En remplaçant  $d$  et  $d'$  on obtient:

$$\left\{ \begin{array}{l} E_y = -2jE_0 \sin \frac{wax}{V} e^{jw\left(t-\frac{yZ}{V}\right)} \\ H_x = 2jgH_0 \sin \frac{wax}{V} e^{jw\left(t-\frac{yZ}{V}\right)} \\ H_z = ZaH_0 \cos \frac{wax}{V} e^{jw\left(t-\frac{yZ}{V}\right)} \end{array} \right. \quad (\text{I.49})$$

### b) Interprétation des résultats :

Les expressions des champs tout le terme  $e^{jw\left(t-\frac{g}{V}\right)}$  qui traduit une propagation suivant oz, à la vitesse  $V/\gamma$ , à laquelle correspond la longueur d'onde dans le guide :

$$l_g = \frac{VT}{g} = \frac{l}{g} \quad (\text{I.50})$$

Où:

$\lambda$  est la longueur d'onde dans l'espace infini, donc:  $g = \frac{l}{g_g}$  et

$$\frac{wgz}{V} = \frac{2p f}{u} \cdot \frac{l}{l_g} z = \frac{2p z}{l_g} \quad (\text{I.51})$$

Les composantes  $E_y$ ,  $H_x$  s'annulent aux points d'abscisse  $x=0$ ,  $x=a$ , tels que:

$$\frac{waa}{V} = mp \quad (\text{I.52})$$

On peut métalliser le plan  $x = a$  sans perturber la propagation. Celle-ci s'effectuera entre les deux plans  $x=0$  et  $x=a$ .

Entraîne :

$$a = \frac{ml}{2a} \quad (\text{I.51})$$

Les expressions des champs deviennent:

$$\Rightarrow \begin{cases} \overline{E}_y = -2jE_0 \sin \frac{m\pi c}{a} e^{-j\frac{2\pi z}{l_g}} \\ \overline{H}_x = 2j\frac{l}{l_g} H_0 \sin \frac{m\pi c}{a} e^{-j\frac{2\pi z}{l_g}} \\ \overline{H}_z = \frac{ml}{a} H_0 \cos \frac{m\pi c}{a} e^{-j\frac{2\pi z}{l_g}} \end{cases} \quad (1.54)$$

L'onde obtenue est transmise électrique. Les composantes transverses  $E_y$  et  $H_x$  sont en phase (le signe provient du choix des axes). la composante longitudinale  $H_z$  est en quadrature avec les précédentes.

On désigne sous le nom d'impédance d'onde le rapport des amplitudes des composantes transverses:

$$\frac{|\overline{E}_y|}{|\overline{H}_x|} = Z_H = \frac{l_g}{l} Z_0 \quad (I.55)$$

Les composantes des vecteurs  $\hat{S}$  et  $\hat{S}'$ , vérifient la relation :

$$a^2 + g^2 = 1 \quad (I.56)$$

Soit encore:

$$\left(\frac{ml}{2a}\right)^2 + \left(\frac{l}{l_g}\right)^2 = 1 \quad (I.57)$$

$$\frac{1}{l^2} = \frac{1}{l_g^2} + \frac{1}{(2a/m)^2} \quad (I.58)$$

La propagation n'est pas possible que si  $\lambda_g$  est réel ; c'est-à-dire si  $l \ll 2a/m$ . La limite supérieure de  $\lambda$ ,  $l_c = a/m$  est la longueur d'onde de coupure.

### c) Cas particulier du mode $TE_{10}(m=1)$

Prenons comme référence des amplitudes, celle de la composante longitudinale  $H_z$  et faisons  $m = 1$

$$\begin{cases} H_0 = \frac{aHm}{l} = \frac{l_c}{2l} H_m \\ E_0 = \frac{Z_0 l_c}{2l} H_m \end{cases} \quad (I.59)$$

Adoptons la représentation complexe :

$$\left\{ \begin{array}{l} \overline{E}_y = -jZ_0 \frac{I_c}{l} H_m \sin \frac{px}{a} e^{-j\frac{2pz}{l_g}} \\ \overline{H}_x = j \frac{I_c}{l_g} H_m \sin \frac{px}{a} e^{-j\frac{2pz}{l_g}} \\ \overline{H}_z = H_m \cos \frac{px}{a} e^{-j\frac{2pz}{l_g}} \end{array} \right. \quad (\text{I.60})$$

**d) Onde évanescente:**

Etudions ce qui se passe au dessous de la fréquence de coupure c'est-à-dire  $\lambda > \lambda_c$ . la relation (I.64) s'écrit :

$$\frac{1}{l_g^2} = \frac{1}{l^2} - \frac{1}{l_c^2} = \frac{1}{l^2} \left( 1 - \frac{l^2}{l_c^2} \right) \quad (\text{I.61})$$

$\lambda_g$  n'est plus réelle.

Plaçons nous très au dessous de la fréquence de coupure ;  $f \ll f_c$   $\lambda \gg \lambda_c$

$$\frac{1}{l_g} = \pm \frac{j}{2a} \quad (\text{I.62})$$

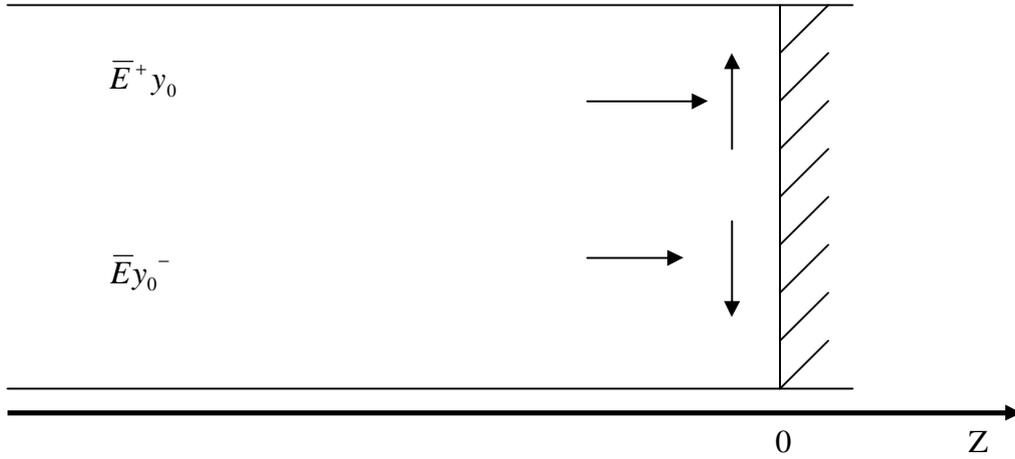
La fonction d'onde s'écrit alors :  $e^{\pm \frac{pz}{a}}$ . Le signe + ne peut être retenu, car il conduit à une amplitude infinie lorsque Z augmente. Il reste donc  $e^{-p\frac{z}{a}}$  qui effectue toutes les expressions des champs.

**e) Onde stationnaires dans le guide :**

Considérons un guide d'onde rectangulaire TE<sub>10</sub>, parcouru par l'onde progressive directe:

$$\left\{ \begin{array}{l} \overline{E}_y^+ = jZ_0 \frac{I_c}{l} H_m \sin \frac{px}{a} e^{-j\frac{2pz}{l_g}} \\ \overline{H}_x^+ = j \frac{I_c}{l_g} H_m \sin \frac{px}{a} e^{-j\frac{2pz}{l_g}} \\ \overline{H}_z^+ = H_m \cos \frac{px}{a} e^{-j\frac{2pz}{l_g}} \end{array} \right. \quad (\text{I.63})$$

Plaçons un plan conducteur dans une section droite et prenons la somme origine, figure (I.4). la condition imposée par cet obstacle est  $E = 0$  pour  $Z = 0$ , d'où la naissance d'une onde réfléchie  $\overline{E}_y^-$  tel que  $\overline{E}_{y_0}^- = -\overline{E}_{y_0}^+$ .



**Figure.I.4 :** Onde stationnaire dans un guide

On en déduit :

$$\bar{E}_y^- = jZ_0 \frac{l_c}{l} H_m \sin \frac{px}{a} e^{j\frac{2pZ}{l_g}} \quad (1.64)$$

Pour obtenir l'onde réfléchie on peut donc changer  $H_m$  et  $-H_m$  (déphasage  $\pi$ ) et  $\lambda_g$  en  $-l_g$  (sens de propagation).

On trouverait pour le champ magnétique

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{H}_x^- = j \frac{l_c}{l_g} H_m \sin \frac{px}{a} e^{j\frac{2pZ}{l_g}} \\ \bar{H}_z^- = -H_m \cos \frac{px}{a} e^{j\frac{2pZ}{l_g}} \end{array} \right. \quad (1.65)$$

Le champ résultant dans le guide est :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{E}_y = \bar{E}_y^+ + \bar{E}_y^- = -2Z_0 \frac{l_c}{l} H_m \sin \frac{px}{a} \sin \frac{2pZ}{l_g} \\ \bar{H}_x = \bar{H}_x^+ + \bar{H}_x^- = 2j \frac{l_c}{l_g} H_m \sin \frac{px}{a} \cos \frac{2pZ}{l_g} \\ \bar{H}_z = \bar{H}_z^+ + \bar{H}_z^- = -2jH_m \cos \frac{px}{a} \sin \frac{2pZ}{l_g} \end{array} \right. \quad (1.66)$$

#### I.4.2 Mode dominant :

On appelle mode dominant [10 ;11] dans un guide d'ondes le mode qui possède la fréquence de coupure de la basse (dans le cas d'une ligne de transmission usuelle, le mode TEM est le mode dominant). Cette notation présente une grande importance. En pratique, en effet, on utilise dans presque tous les cas une fréquence de travail située au-delà de la fréquence de coupure du mode dominant, ce qui autorise la propagation de celui-ci, et en deçà de la fréquence de coupure du premier mode d'ordre supérieur, ce qui interdit la propagation

de tous les modes autres que le mode dominant. On peut en effet démontrer que toute irrégularité dans les parois du guide, par exemple, imposant des conditions limites supplémentaires, engendre des modes d'ordre supérieur. Si la fréquence de travail est supérieure à la fréquence de coupure de certains de ceux-ci, ils pourront se propager, ce qui déterminera une « conversion de modes » c'est-à-dire un transfert d'énergie d'un mode à d'autres. L'énergie ainsi convertie pourrait ne pas être captée par la charge et il en résulterait une perte de transmission. Le mode dominant d'un guide rectangulaire est caractérisé par la combinaison de  $m$  et  $n$  assurant la valeur la plus faible de la fréquence de coupure, c'est à l'expression générale :

$$P_{mn} = \sqrt{\left(\frac{mP}{a}\right)^2 + \left(\frac{nP}{b}\right)^2} \quad (\text{I.67})$$

Valable pour les deux classes de modes. Assortie des conditions :

$mn \neq 0$  pour les modes TM.

$m + n \neq 0$  pour les modes TE.

Indique que la plus petite combinaison permise pour  $m$  et  $n$  est :  $m=1$  ;  $n=0$ , le mode dominant d'un guide rectangulaire est donc le mode  $TE_{10}$ . Il est caractérisé par les expressions suivantes :

$$\begin{cases} E_y = -\left(\frac{j\omega m}{P_{10}^2}\right) D_{10} \left(\frac{P}{a}\right) \sin\left(\frac{Px}{a}\right) = E_0 \sin\left(\frac{Px}{a}\right) \\ H_x = \left(\frac{g_{10}}{P_{10}^2}\right) D_{10} \left(\frac{P}{a}\right) \sin\left(\frac{Px}{a}\right) = -\left(\frac{E_0}{z_{TE}}\right) \sin\left(\frac{Px}{a}\right) \\ H_z = D_{10} \cos\left(\frac{Px}{a}\right) = j\left(\frac{E_0}{z}\right) \left(\frac{l}{2a}\right) \cos\left(\frac{Px}{a}\right) \\ E_x = E_z = H_y = 0 \end{cases} \quad (\text{I.68})$$

$$Z = \sqrt{\frac{m}{e}} \quad (\text{I.69})$$

$$Z_{TE} = \frac{Z}{\sqrt{1 - \left(\frac{l}{2a}\right)^2}} \quad (\text{I.70})$$

$$w_c = \left(\frac{P}{a}\right) C; l_c = 2a \quad (\text{I.71})$$

$$v_{ph} = \frac{C}{\sqrt{1 - \left(\frac{l}{2a}\right)^2}} \quad (\text{I.72})$$

$$v_g = C \sqrt{1 - \left(\frac{l}{2a}\right)^2} \quad (\text{I.73})$$

$$l_g = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{1}{l}\right)^2 - \left(\frac{1}{2a}\right)^2}} \quad (\text{I.74})$$

On peut déterminer quel est le premier mode d'ordre supérieur en comparant les fréquences de coupures des modes :

$$TE_{01} \quad P = \frac{p}{b} \quad (\text{I.75})$$

$$TE_{20} \quad P = \frac{2p}{a} \quad (\text{I.76})$$

$$TE_{11} \text{ et } TM_{11} \quad P = \sqrt{\left(\frac{p}{b}\right)^2 + \left(\frac{p}{a}\right)^2} \quad (\text{I.77})$$

Lorsqu'on a  $a < 2b$ , le premier mode d'ordre supérieur est le mode  $TE_{01}$ . Dans ce cas toutefois, la « bande passante » du guide, c'est-à-dire la gamme de fréquences auxquelles seul le mode dominant peut se propager, dépend à la fois de  $a$  (qui détermine la fréquence de coupure du mode dominant) et de  $b$  (qui détermine la fréquence de coupure du premier mode d'ordre supérieur). Pour éviter en pratique cet inconvénient, on réalise des guides pour lesquels on a :  $a \geq 2b$ .

Le premier mode d'ordre supérieur est alors le mode  $TE_{20}$ , dont la fréquence de coupure vaut le double de celle du mode dominant et indépendante de la hauteur  $b$  du guide d'ondes.

## I.6 Conclusion :

Nous avons dans ce chapitre présenté de manière brief, les principaux rappels relatifs aux bases de l'électromagnétisme. Ils serviront à expliquer les procédures des mesures réalisées, de la permittivité par la TDR et établir les différentes relations liants la permittivité diélectrique et les fractions volumiques des constituants, dont on utilisera comme point de départ les équations de MAXWELL et celles de Laplace, appliquées à un milieu hétérogène constitué de phases homogènes en formulant certaines hypothèses sur la géométrie du mélange. En raison de l'importance de phénomène de l'interaction des ondes centimétriques avec une substance en électromagnétisme nous avons préféré de faire un passage descriptif sur ce phénomène. Et aussi nous avons présenté les différentes notions et formules des guides d'ondes rectangulaires spécialement pour le mode transverse.

# CHAPITRE II:

# THEORIE DES MILIEUX EFFECTIFS

## II .1 Introduction :

Les lois de mélange sont toutes basées sur l'hypothèse du milieu effectif qui suppose que les propriétés diélectriques d'un corps hétérogène peuvent être représentées par un constant diélectrique effectif d'un matériau homogène fictif ; dans ce qui suit nous présentons la majorité des théories existés

## II.2 Théorie du milieu effectif [12] :

Considérant un mélange avec un milieu matériel diélectrique de permittivité  $\epsilon_0$ , contient  $n$  inclusions par unité de volume, chaque une d'elle a une polarisabilité  $\alpha$ . Le milieu de permittivité  $\epsilon_0$  n'est pas que de l'espace libre. La notation pour  $\epsilon_0$  est la déviation de la définition classique absolue, où la permittivité est référée au vide.

La permittivité effective ou la permittivité macroscopique  $\epsilon_{eff}$  est définie comme le rapport entre le déplacement moyen  $\bar{D}$  et le champ moyen  $\bar{E}$  :

$$\bar{D} = \epsilon_{eff} \bar{E} \quad (II.1)$$

Ce déplacement dépend de la polarisation moyenne  $\bar{P}$  dans le matériau :

$$\bar{D} = \epsilon_0 \bar{E} + \bar{P} \quad (II.2)$$

La polarisation moyenne peut être calculée du moment dipolaire  $\bar{p}$  des inclusions ; c'est la densité du moment dipolaire dans le matériau polarisé :

$$\bar{P} = n \bar{p} \quad (II.3)$$

Le moment dipolaire d'une inclusion dépend la polarisabilité et le champ d'excitation  $\bar{E}^e$  :

$$\bar{p} = \alpha \bar{E}^e \quad (II.4)$$

Ici, le champ d'excitation est le même que le champ moyen, seulement pour des mélanges très rares, où les inclusions sont loin de chaque une des autres et n'est pas contribué un terme de champ supplémentaire aux inclusions adjacent. Pour des problèmes où ce n'est pas le cas ; la polarisation filtrée dû au milieu des inclusions a été en compte.

Par la combinaison des équations (II.1) et (II.4) on défini la permittivité effective par :

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_0 + n \alpha \frac{\bar{E}^e}{\bar{E}} \quad (II.5)$$

Le champ d'excitation est la somme du champ macroscopique  $\bar{E}$  et le champ dépolarisation que peut être calculé de la décomposition donnée par Yaghjian.

$$\overline{\overline{E}}^e = \overline{E} + \frac{1}{e_0} \overline{\overline{L}} \cdot \overline{P} \quad (\text{II.6})$$

Où la source dyadique  $\overline{\overline{L}}$  désigne le tenseur dépolarisation des inclusions, dépend du volume de l'inclusion.

Si les inclusions sont dissymétriques et orientées dans une même direction, le milieu anisotrope.

Cette approche n'est valable que pour des régimes quasi –statiques où la longueur de corrélation est très inférieure à la longueur d'onde du champ électrique incident [13].

Pour le cas des formes sphériques, la source dyadique est  $\overline{\overline{L}} = \frac{\overline{\overline{I}}}{3}$  où  $\overline{\overline{I}}$  est dyadique unité, le champ d'excitation est :

$$\overline{\overline{E}}^e = \overline{E} + \frac{\overline{P}}{3e_0} \quad (\text{II.7})$$

La permittivité effective peut être calculée en fonction de la densité du moment dipolaire  $na$  :

$$e_{eff} = e_0 + 3e_0 \frac{na}{3e_0 - na} \quad (\text{II.8})$$

Cette égalité peut être écrite sous la forme de l'équation de Lorentz –Lorentz (Clausius Mossotti) [14 ;15] :

$$\frac{e_{eff} - e_0}{e_{eff} + 2e_0} = \frac{na}{3e_0} \quad (\text{II.9})$$

si le mélange contient des inclusions avec différentes polarisabilités, comme dans le cas le plus simple, par exemple des sphères de  $N$  permittivités différentes , ils vont être multipliés par leur fraction volumique individuelles  $n_i$ , l'équation (II.9)s'écrit :

$$\frac{e_{eff} - e_0}{e_{eff} + 2e_0} = \sum_{i=1}^N \frac{n_i a_i}{3e_0} \quad (\text{II.10})$$

Cette approche n'est valable que pour de faibles concentrations de la phase dispersée, celle –ci étant incapable de tenir compte de toutes les interactions entre les hétérogénéités. La méthode analytique classique est en outre limitée exclusivement à des inclusions isolées à cause des problèmes associés aux conditions d'interfaces en cas de contact ou de fusion des impuretés dans le milieu continu [13].

### II.3 Théorie de percolation :

La théorie de percolation permet de connaître certains propriétés électriques des matériaux [15]. Selon cette approche la conductivité globale du système composite subie une transition isolante –conductrice à une concentration volumique critique  $V_c$  de la phase conduite, ceci pour  $V$  en proximité de  $V_c$  [12] :

$$s' \propto (V - V_c)^m \quad (\text{II.11})$$

Et

$$e' \propto |V - V_c|^{-s} \quad (\text{II.12})$$

$V_c$  dépend des détails géométriques des systèmes, les exposants critique  $\mu$  et  $s$  sont universels, c'est-à-dire dépendent seulement de dimensionnalité du système .D'autre importante grandeur que caractérise les systèmes composites au voisinage de  $V_c$  est la corrélation ou la longueur connectivité  $\xi$ , la loi suivie par  $\xi$  est :

$$x' \propto |V - V_c|^{-m} \quad (\text{II.13})$$

Ce qui donne

$$s' \propto w^x \quad (\text{II.14})$$

Pour des fréquences  $w \gg w_x \propto x^{-d_w}$

$$e' \propto w^{-y} \quad (\text{II.15})$$

Avec  $y+x=1$

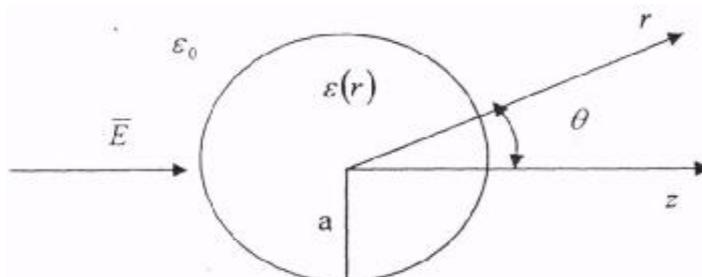
### II.4 Polarisabilité [12] :

Fondamentalement, il y a deux méthodes pour résoudre la polarisabilité d'une inclusion de permittivité  $\epsilon(\vec{r})$  dans un champ quasi statique : du champ interne ou externe d'inclusion. La première méthode est de commencer par la définition du moment dipolaire :

$$\vec{p} = \int_V dV [\epsilon(\vec{r}) - \epsilon_0] \vec{E}(\vec{r}) \quad (\text{II.16})$$

Où  $V$  est le volume d'inclusion est  $\epsilon_0$  est la permittivité de l'origine du matériau. Dans un autre coté, le moment dipolaire, a le produit de la polarisabilité et le champ d'excitation, donne la polarisation, car une seule inclusion dans un espace homogène illimité, le champ d'excitation est le même que le champ incident. Cette approche interne pour résoudre la polarisabilité exige la résolution du champ interne  $\vec{E}(\vec{r})$  de l'inclusion.

Une autre possibilité est de considérer le champ externe en dehors de l'inclusion. Quand l'inclusion est présente dans un champ constant elle provoque la perturbation du champ avec une dépendance inverse de la distance cubique. Cette perturbation est le champ statique du dipôle localisé dans le centre de l'inclusion et de l'amplitude de cette perturbation en dehors de l'inclusion, l'intensité du dipôle équivalent peut être conclue. La composante dipolaire de la solution pour le potentiel en dehors de l'inclusion est la forme  $D_0 r^{-2} \cos \theta$  où  $r$  est la distance de centre de la sphère et  $\theta$  est l'angle entre le vecteur de position et le champ incident figure (II.1)



**Figure.II.1** Géométrie du problème : inclusion polarisée dans un champ statique.

L'amplitude  $D_0$  détermine le moment dipolaire :

$$\bar{p} = 4\pi\epsilon_0 D_0 \hat{z} \quad (\text{II.17})$$

Où  $\hat{z}$  est le vecteur unité de direction de champ.

Naturellement, les deux approches, interne et externe, conduisent aux mêmes résultats. Considérant une sphère homogène de permittivité  $\epsilon_1$  dans un espace homogène illimité de permittivité  $\epsilon_0$ , le rayon de la sphère est  $a_1$ . On connaissant bien que si la sphère est soumise à un champ constant d'amplitude  $\bar{E}$ , le champ interne  $\bar{E}_{in}$  dans la sphère est également constant:

$$\bar{E}_{in} = \bar{E} \frac{3\epsilon_0}{\epsilon_1 + 2\epsilon_0} \quad (\text{II.18})$$

Par conséquent, de l'équation (II. 16), la polarisabilité est égale au produit du volume de l'inclusion et de sa susceptibilité et le rapport entre les champs intérieur et extérieur :

$$a = \frac{4\pi a_1^3}{3} (\epsilon_1 - \epsilon_0) \frac{3\epsilon_0}{\epsilon_1 + 2\epsilon_0} \quad (\text{II.19})$$

Et la permittivité effective  $\epsilon^{eff}$  du mélange contient  $n$  inclusion par unité de volume pour ce type:

$$\frac{\epsilon^{eff} - \epsilon_0}{\epsilon^{eff} + 2\epsilon_0} = f_1 \frac{\epsilon_1 - \epsilon_0}{\epsilon_1 + 2\epsilon_0} \quad (\text{II.20})$$

Où  $f_1 = n_1 a_1^3 / 3$  est la fraction volumique de la phase d'inclusion dans le mélange. Cette équation est connue sous le nom la formule de mélange de Rayleigh et peut être écrite sous la forme de Maxwell-Garnet.

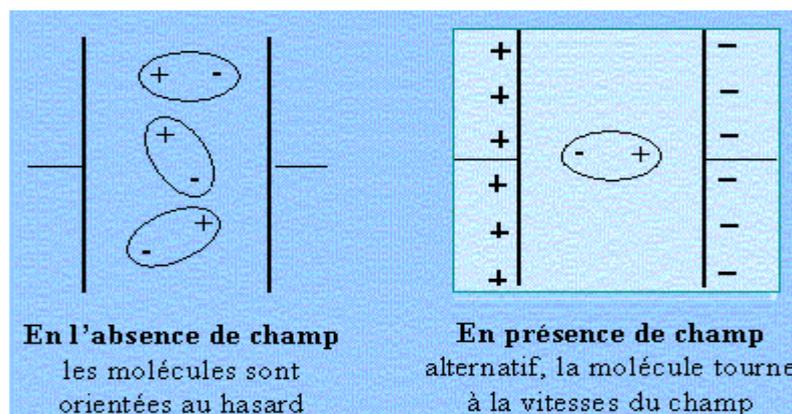
$$e_{eff} = e_0 + 3e_0 \frac{f_1 \frac{e_1 - e_0}{e_1 + 2e_0}}{1 - f_1 \frac{e_1 - e_0}{e_1 + 2e_0}} \quad (II.21)$$

## II.5 Les phénomènes électriques dans les matériaux :

En réponse à une excitation électromagnétique, deux types de phénomènes physiques peuvent avoir lieu dans le matériau : des phénomènes de transport et des phénomènes de polarisation. La description des différents phénomènes physiques qui peuvent avoir lieu dans un matériau permet d'établir des lois phénoménologiques qui décrivent le comportement fréquentiel macroscopique des grandeurs électriques [64].

### II.5.1 Les phénomènes de transport :

Ils concernent le déplacement de charges libres sous l'action d'un champ électrique. Ces charges peuvent être des électrons, des trous, des protons ou des ions. Les processus de transport sont la migration, la diffusion et la conversion. Généralement, le déplacement de charge induit une accumulation qui implique à son tour un phénomène de polarisation. La conductivité  $\sigma$  de la solution dépend du nombre d'ions par unité de volume  $n$ , de la charge  $q$  par porteur et de leur mobilité  $u$ . Elle s'écrit, dans le cas où il n'y a qu'un seul type d'ion :



**Figure II.2** Action du champ électrique sur une molécule polaire.

$$S = nqu \quad (\text{II.22})$$

Elle est donc directement proportionnelle à la concentration en ions. Elle dépend aussi fortement de la température [16].

### II.5.2 Les Phénomènes de polarisation :

En relation avec les déplacements des entités chargés existant dans le matériau, on peut définir quatre types de polarisation électronique, atomique, d'orientation (dite de Debye) et interfaciale [14 ;15 ;16 ;17], comme nous l'avons schématisé sur la figure (II.2).

#### a. Polarisation électronique :

Sous l'action d'une excitation électromagnétique extérieure, le centre de gravité des électrons des atomes dans le matériau se déplace et ne coïncide plus avec celui des protons. Ces types de polarisation sont présents dans la gamme des ultraviolets (entre  $10^{14}$  et  $10^{16}$ ). Nous définissons  $a_e$  la polarisabilité électronique de champ électrique interne  $E_i$  et  $n$  le nombre de particules par unité de volume, la polarisation dans ce type peut être sous la formule [18] :

$$P_e = na_e E_i \quad (\text{II.23})$$

#### b. polarisation atomique :

La polarisation atomique met en jeu le déplacement d'atomes au sein de la molécule. La polarisation atomique cessera à des fréquences du champ électrique appliqué plus faibles que celles où disparaît la polarisation électronique. La fréquence de coupure se situe dans le domaine des fréquences optiques infrarouges vers  $10^{12}$  Hz. La polarisation atomique se superpose à la polarisation électronique et intervient pour augmenter la permittivité relative  $\epsilon'$ . Elle représente environ 5 à 10% de la polarisation électronique dans les polymers. Si on applique un champ électrique, les atomes se déplacent les uns par rapport aux autres donnant naissance à une polarisation exprimée par [18]:

$$P_a = na_a E_i \quad (\text{II.24})$$

#### c. Polarisation d'orientation ou de Debye :

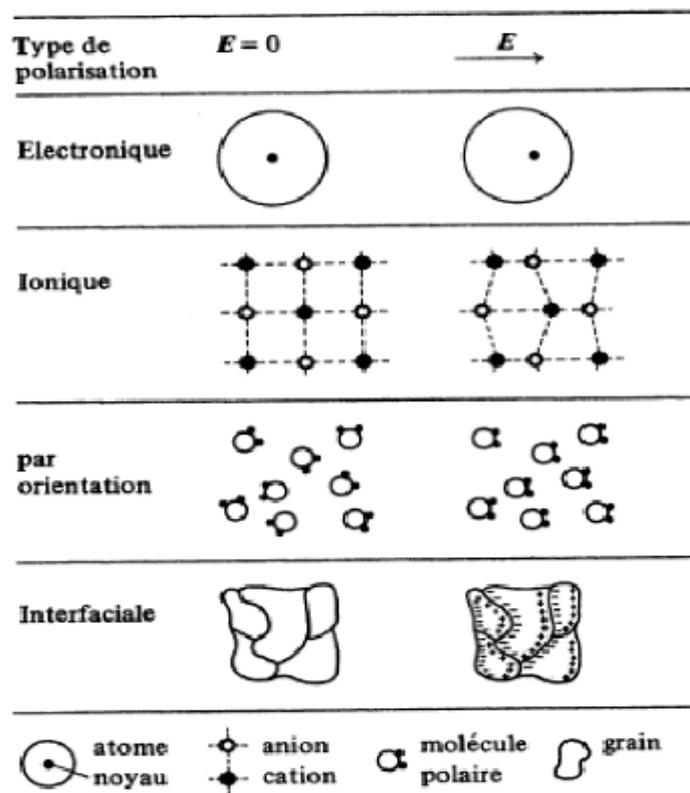
La polarisation de Debye dite d'orientation car elle provient de la rotation de dipôles moléculaires sous l'action de  $E_i$ . Elle apparaît lorsqu'une molécule ou un groupement d'atome possède un moment dipolaire permanent. Il faut de plus que la molécule ou le groupement atomique puisse s'orienter dans le champ électrique. Elle est due à des molécules polaires et se produit dans la gamme des hautes fréquences (entre  $10^8$  et  $10^{11}$  Hz), en absence du champ extérieur, les moments dipolaires des différentes molécules sont orientés aléatoirement ; la résultante est donc nulle. En présence d'une excitation, il y a une orientation privilégiée et la résultante n'est pas nulle. On définit  $m$  le moment dipolaire,  $K$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température absolue, la polarisation d'orientation est donnée par [18] :

$$P_0 = \left( \frac{n \cdot m^2}{3KT} \right) E_i \quad (\text{II.25})$$

**d. Polarisation interfaciale ou effet Maxwell-Wagner-Sillars :**

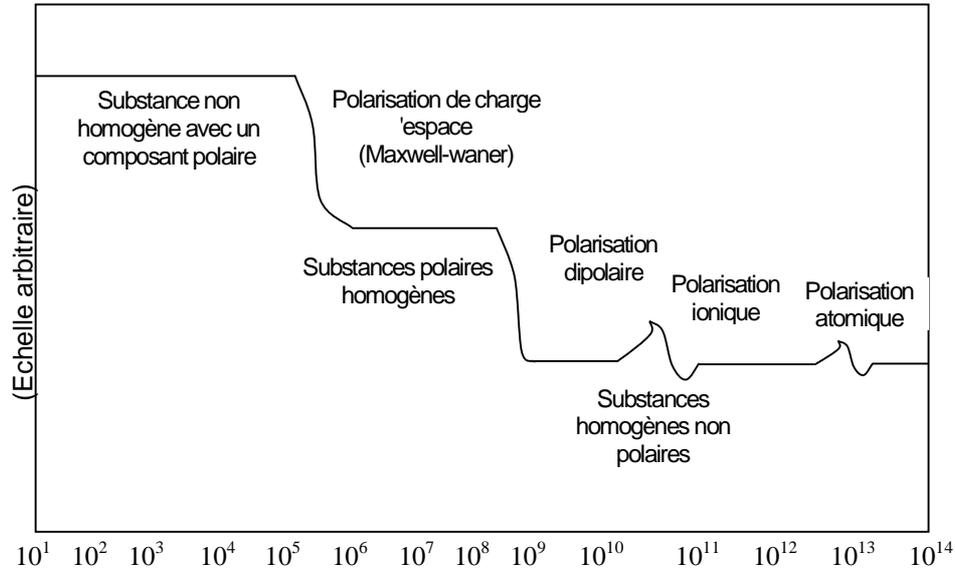
La polarisation interfaciale apparaît dans les matériaux macroscopiquement hétérogènes, avec des phases présentant des propriétés diélectriques différentes. Elle est due à l'accumulation de charges aux interfaces entre deux milieux homogènes et elle a lieu à basse fréquence, en dessous de  $10^8$  Hz les permittivités et des conductivités différentes [20]. Aux très hautes fréquences [19] la polarisation est due à l'apparition de charges à l'interface entre deux milieux de constants diélectriques différentes, ce phénomène apparaît donc dans les matériaux hétérogènes. Dans le domaine des radiofréquences aux fréquences micro-ondes, c'est la relaxation dipolaire qui cause le phénomène d'absorption. Ce sont les dipôles permanents formés par les molécules ou groupements chimiques fonctionnels dissymétriques qui tendent à s'orienter dans le champ. Dans le domaine des fréquences micro-ondes et visibles, l'absorption est due à la résonance moléculaire. En effet, chaque liaison moléculaire peut être assimilée à un ressort qui possède une fréquence de résonance propre et absorbe donc, à cette fréquence l'énergie de l'onde électromagnétique.

Aux longueurs d'ondes optiques [15] seules reste la polarisation électronique qui peut être évaluée par la mesure de l'indice de réfraction du matériau. La caractérisation diélectrique que nous envisageons concerne les hyperfréquences pour lesquelles la polarisation est essentiellement due à la relaxation dipolaire.



**Figure II.2 :** illustration schématique des différents mécanismes de polarisation.

Nous présentons sur la figure (II.2) le comportement fréquentiel de la permittivité suivant le type de la polarisation.



**Figure.II.3 :** Dispersion diélectrique des différents processus de polarisation (Partie réelle de la permittivité en fonction de la fréquence) .

## II.6 Spectroscopie diélectrique :

### II.6.1 Processus de relaxation :

La polarisation ne peut plus suivre les variations du champ, par suite de son inertie et donne ainsi naissance à une relaxation de la permittivité mesurée. Ce comportement est susceptible d'une représentation formelle par une équation de type :

$$e_r(\omega) = e_\infty + \int_0^\infty a(t)e^{j\omega t} dt \quad (\text{II.26})$$

Dans laquelle  $e_\infty$  est une constante égale à la valeur de la permittivité pour une fréquence infinie et  $a(t)$  un certain facteur de décroissance exprimant le retard de la polarisation par rapport au champ appliqué.  $a(t)$  est évidemment lié la permittivité totale, donc s'exprime en fonction de sa partie réelle  $s'$  et de sa partie imaginaire  $s''$ . L'équation (II.26) implique aussi que :  $a(t) \rightarrow 0$  quand  $\omega \rightarrow \infty$  car  $e(\omega) = e_\infty$  pour  $\omega = \infty$ .

$a(t)$  doit décrire la décroissance de la polarisation après la suppression brusque d'un champ statique puisqu'il compte du retard de  $D(\omega)$  par rapport à  $E(\omega)$ .

Il décrira, de même, l'accroissement de la polarisation jusqu'à sa valeur d'équilibre quand un champ statique est appliqué brusquement. Il peut donc être considéré comme étant équivalent à la donnée d'une constante de temps de polarisation du diélectrique [23 ;24 ;25 ;26 ;27].

### III.6.2 Modèles de relaxation diélectrique de base:

Pour des substances non polaires, si nous appliquons un champ  $E$  à une molécule non polaire, il va se produire un moment induit  $m = a E$  [21 ;22] :

$$P = nm = n a E \quad (\text{II.27})$$

$n$  étant le nombre de molécules par unité de volume ; d'autre part ; ce vecteur  $P$  est relié au vecteur  $E$  par la relation [28] :

$$\mathbf{e}E = \mathbf{e}_0 E_0 + P \quad (\text{II.28})$$

D'où il vient, si nous faisons  $E = E_0$  :

$$\mathbf{e} = \mathbf{e}_0 + n\mathbf{a} \quad (\text{II.29})$$

Cette relation est valable pour le gaz, car les molécules sont très éloignées les une des autres et  $\mathbf{e}$  est très voisin de  $\mathbf{e}_0$ . Mais dans le cas des solides ou des liquides il faut tenir compte de l'interaction par une méthode due à Clausius.

Le champ agissant sur la molécule, est le même que celui qui existerait si on enlevait celle-ci et si on remplaçait tout l'espace environnant par un milieu de polarisation  $P$ .

D'après les théories classiques, le champ dans une petite cavité est [21 ;22] :

$$E = E_0 + \frac{P}{3\mathbf{e}_0} \quad (\text{II.30})$$

D'où en ajoutant:

$$P = (\mathbf{e} - \mathbf{e}_0)E_0 = n\mathbf{a}E \quad (\text{II.31})$$

Il vient:

$$P = \frac{3(\mathbf{e} - \mathbf{e}_0)\mathbf{e}_0 E}{\mathbf{e} + 2\mathbf{e}_0} \quad (\text{II.32})$$

Et:

$$\frac{\mathbf{e} - \mathbf{e}_0}{\mathbf{e} + 2\mathbf{e}_0} = \frac{n\mathbf{a}}{3\mathbf{e}_0} \quad (\text{II.33})$$

Cette dernière relation est connue sous le nom de la relation de Clausius-Mossotti. On en déduit la

valeur du constant diélectrique  $K = n^2 = \frac{\mathbf{e}}{\mathbf{e}_0}$

$$K = \frac{1 + \frac{2n\mathbf{a}}{3\mathbf{e}_0}}{1 - \frac{n\mathbf{a}}{3\mathbf{e}_0}} \quad (\text{II.34})$$

Dans le cas de petites sphères dispersées au hasard, la valeur de  $\mathbf{a}$  est calculable, on trouve:

$$\mathbf{a} = 4\pi r^3 \mathbf{e}_0 \quad (\text{II.35})$$

Où  $r$  étant le rayon de la sphère.

Si la distance moyenne entre les centres des sphères est  $\mathbf{a}$ , donc, nous aurons:

$$\frac{e}{e_0} = \frac{1 + (8pr^3 / 3a^3)}{1 - (4pr^3 / 3a^3)} \quad (\text{II.36})$$

Ce calcul simple ne tient pas compte du champ magnétique, pour lequel, un raisonnement analogue peut être fait: mais dans ce cas la polarisabilité  $\alpha$  est négative:

$$a = -2pm_0r^3 \quad (\text{II.37})$$

Ce qui donne comme relation:

$$\frac{m}{m_0} = \frac{1 - (4pr^3 / 3a^3)}{1 + (2pr^3 / 3a^3)} \quad (\text{II.38})$$

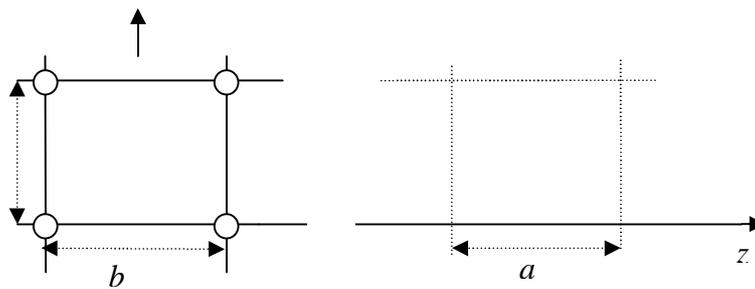
L'indice de réfraction sera alors donné par :

$$n^2 = \frac{1 + (8pr^3 / 3a^3)}{1 - (2pr^3 / 3a^3)} \quad (\text{II.39})$$

Et l'impédance de l'onde dans ce milieu sera:

$$Z = Z_0 \frac{1 - (4p^3 / 3a^3)}{\sqrt{[1 + (8pr^3 / 3a^3)][1 + (2pr^3 / 3a^3)]}} \quad (\text{II.40})$$

Considérant un diélectrique artificiel avec des sphères dont l'indice sera connu par la relation précédente. Diverses formules peuvent être obtenues pour des objets de formes différentes. En particulier, pour diminuer l'effet du champ magnétique, on peut considérer des disques extrêmes minces.



**Figure.II.3:** Réseau de disque conducteur plan.

Le champ magnétique étant parallèle à la surface, ne sera que peu affecté. Dans ces conditions, nous avons:

$$\frac{e}{e_0} = \frac{1 + (32pr^3 / 3ab^2)}{1 - (16pr^3 / 3ab^2)} \quad (\text{II.41})$$

Et pour la propagation suivant l'axe des z, de l'équation (1.32) on obtient:  $\frac{e}{e_0} = n^2$ .

Debye [11], a proposé une forme exponentielle pour le facteur de décroissance :

$$a = a(0)e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (\text{II.42})$$

Où  $\tau$  est le temps de relaxation, caractéristique du diélectrique, qui doit être une fonction de la température, mais non du temps. En combinant avec l'équation (II.26), Il vient:

$$e_r(\omega) = e_\infty + \int_0^\infty a(0)e^{\left(j\omega - \frac{1}{\tau}\right)t} dt \quad (\text{II.43})$$

Qui fournit après intégration:

$$e_r(\omega) = e_\infty + \frac{a(0)}{\left(\frac{1}{\tau} - j\omega\right)} \quad (\text{II.44})$$

Pour  $\omega = 0, e_r(\omega) = e_s$

$$e_s = e_\infty + \tau a(0) \quad (\text{II.45})$$

Où  $e_0$  est la permittivité statique et  $e_\infty$  est la permittivité à hautes fréquences.

En portant (II.45) dans (II.26) :

$$a(t) = \frac{e_s - e_\infty}{\tau} e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (\text{II.46})$$

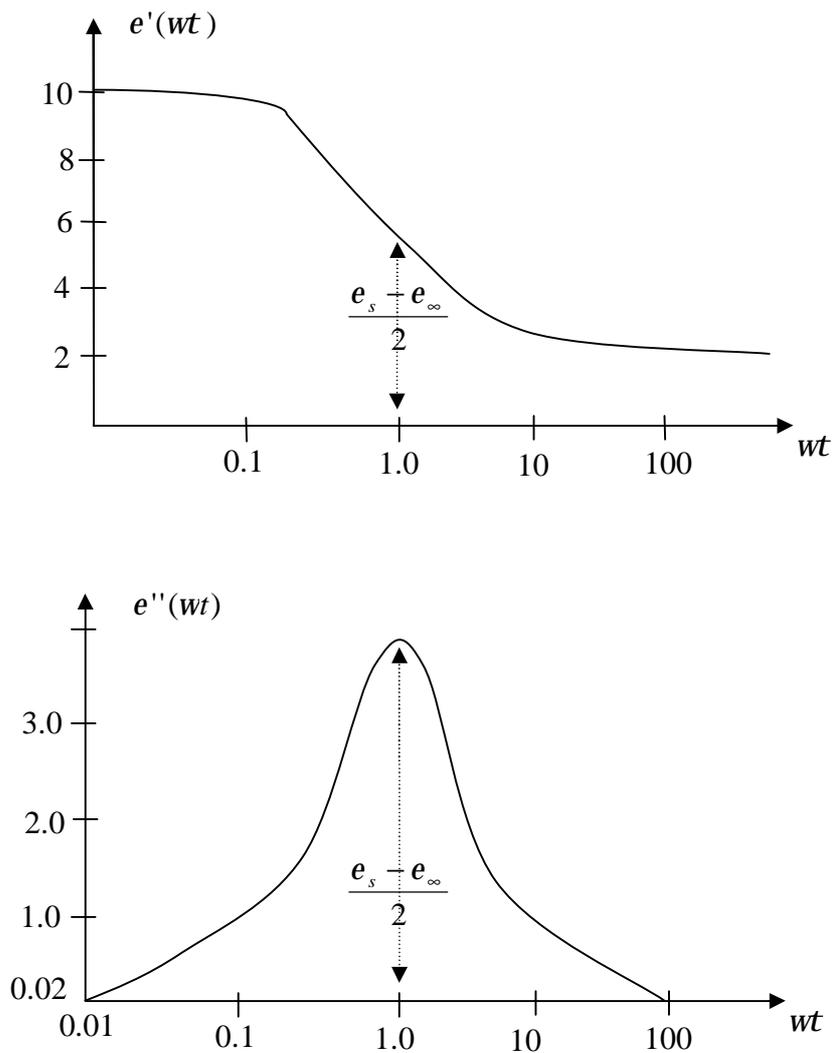
En utilisant (II.45) et (II.42) :

$$e_r(\omega) = e_\infty + \int_0^\infty \frac{e_s - e_\infty}{\tau} e^{-\frac{t}{\tau}} e^{j\omega t} dt = e_\infty + \frac{e_s - e_\infty}{1 + j\omega\tau} \quad (\text{II.47})$$

En égalant la partie réelle et la partie imaginaire, on aboutit à l'équation (II.44) :

$$\begin{cases} e' = e_\infty + \frac{e_s - e_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \\ e'' = \frac{(e_s - e_\infty)\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \end{cases}$$

Cette équation est généralement appelée l'équation de Debye. Elle est représentée sur la figure (II.4), pour des valeurs spécifiques  $e_s = 8$  et  $e_\infty = 2$ .



**Figure II.4 :** (a) Représentation de la partie réelle de  $e'$  en fonction de  $wt$ , pour  $e_s = 8$  et  $e_\infty = 2$ ,  
 (b) Partie imaginaire de  $e'$  en fonction de  $wt$ ;  $e_s = 8$  et  $e_\infty = 2$

Avec:

$$tg\delta = \frac{e''}{e'} = \frac{(e_s - e_\infty)wt}{e_s + e_\infty w^2 t^2} \quad (II.48)$$

Les équations de Debye peuvent décrire un spectre de relaxation [24;25;26]. Pour un mécanisme de relaxation unique, l'allure des courbes obtenue est représentée sur la figure (II.5). La courbe des variations de  $e'$  est appelée courbe de dispersion et celle de  $e''$  courbe d'absorption. Au maximum de cette dernière, on a la relation  $\omega t = 1$ . Dans ce cas l'abscisse maximale, obéit à la relation [20;30] :

$$\omega t = \sqrt{\frac{e_s}{e_\infty}} \quad (\text{II.49})$$

$e'$  diminue monotone de  $e_s$  au  $e_\infty$  et  $e''$  augmente de zéro jusqu'à atteint la valeur maximum  $\frac{1}{2}(e_s - e_\infty)$  quand  $\omega$  est égale au temps réciproque de Debye et diminue lentement jusqu'à zéro quand  $\omega \rightarrow \infty$  [27].

L'évaluation des données expérimentales est facile avec certaines méthodes graphiques de présentation, lesquels permet la dérivation des paramètres par construction géométrique. La méthode la plus utilisées consiste de dessiner  $e''(\omega)$  pour certain fréquences par rapport à  $e'(\omega)$  aux mêmes fréquences, en coordonnées cartésiennes ou dans un plan complexe. Ce diagramme doit appeler le diagramme de lieu géométrique complexe, et a été appliqué aux diélectriques par Cole Cole.

Ce peut se voir en réarrangeant convenablement l'équation (I.44) de Debye:

$$(e' - e_\infty)^2 + (e'')^2 = \frac{(e_s - e_\infty)^2}{1 + \omega^2 t^2} \quad (\text{II.50})$$

On aboutit à :

$$(e' - e_\infty)^2 + (e'')^2 = (e_s - e_\infty)(e' - e_\infty) \quad (\text{II.51})$$

C'est-à-dire [17,19]:

$$(e'')^2 - e'(e_s + e_\infty) + e_s e_\infty + (e'')^2 = 0 \quad (\text{II.52})$$

Finalement en aboutit à l'équation (1.45) donnée dans le premier chapitre [88].

$$\left[ e'(\omega) - \frac{e_s + e_\infty}{2} \right]^2 + [e''(\omega)]^2 = \frac{(e_s - e_\infty)^2}{4}$$

L'équation (1.44) peut être arrangée pour  $\omega t \gg 1$  pour donner:

$$e'(\omega) = \frac{e_s - e_\infty}{\omega^2 t^2} + e_\infty \quad (\text{II.53})$$

Et :

$$e''(w) = \frac{e_s - e_\infty}{wt} \quad (\text{II.54})$$

Ainsi le temps de relaxation peut être obtenu à partir de la pente d'une ligne droite joignant l'origine à un point du cercle pour lequel  $w$  est connu.

Et déduisant que approximativement de (II.53) et (II.54) :

$$|e(w)|^2 \approx e_\infty^2 + \frac{2e_\infty(e_s - e_\infty)}{w^2 t^2} + \frac{(e_s - e_\infty)^2}{w^2 t^2} \quad (\text{II.55})$$

Alors :

$$|e(w)| \approx e_\infty + \frac{e_s - e_\infty}{w^2 t^2} + \frac{(e_s - e_\infty)^2}{2e_\infty w^2 t^2} \quad (\text{II.56})$$

Cole et Cole [31 ;32 ;33 ;34 ;35], ont alors remplacé la première formule de l'expression (1.44) par une expression plus générale (II.57) avec  $0 < \alpha < 1$  et  $\tau$  est un temps de relaxation moyen:

$$e' - je'' = e_\infty + \frac{e_s - e_\infty}{1 + (j\omega\tau)^{(1-\alpha)}} \quad (\text{II.57})$$

Avec :

$$\begin{cases} e' = e_\infty + \frac{(e_s - e_\infty)[1 + (\omega\tau)^{(1-\alpha)} \cos(p(1-\alpha)/2)]}{1 + 2(\omega\tau)^{(1-\alpha)} \cos(p(1-\alpha)/2) + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)}} \\ e'' = \frac{(e_s - e_\infty)[(\omega\tau)^{(1-\alpha)} \sin(p(1-\alpha)/2)]}{1 + 2(\omega\tau)^{(1-\alpha)} \cos(p(1-\alpha)/2) + (\omega\tau)^{2(1-\alpha)}} \end{cases} \quad (\text{II.58})$$

Davidson- Cole [36], ont proposé une équation générale, avec  $0 < \beta < 1$  :

$$e' - je'' = e_\infty + \frac{e_s - e_\infty}{(1 + (j\omega\tau))^b} \quad (\text{II.59})$$

Avec :

$$\begin{cases} e' = e_\infty + (e_s - e_\infty) \cos(bq) \cos^b q \\ e'' = (e_s - e_\infty) \sin(bq) \cos^b q \\ q = \tan^{-1}(\omega\tau) \end{cases} \quad (\text{II.60})$$

L'équation présentée ci-dessous est une équation généralisée proposée par Havriliak-Negami [33 ;35], et  $0 < \beta < 1$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} e' = e_{\infty} + r^{-b/2} (e_s - e_{\infty}) \cos(bq) \\ e'' = r^{-b/2} (e_s - e_{\infty}) \sin(bq) \\ r = [1 + (wt)^{(1-a)} \sin(ap/2)]^2 + [(wt)^{(1-a)} \cos(ap/2)]^2 \\ q = \tan^{-1} \frac{[(wt)^{(1-a)} \cos(ap/2)]}{[1 + (wt)^{(1-a)} \sin(ap/2)]} \end{array} \right. \quad (\text{II.61})$$

Kolranch- Williams- Watts , ont proposé une fonction de susceptibilité ayant la forme d'une exponentielle étirée:  $x(t)ae^{(t/\tau)^{\beta}}$  ,  $\tau$  et  $\beta$  sont des paramètres qui définissent la relation, avec  $0 < \beta < 1$  .

La permittivité complexe sera donnée par :

$$e^*(w) = e_{\infty} + \Delta e [1 + (j\omega\tau)^{(1-a)}]^{-g} \quad (\text{II.62})$$

Avec:  $\Delta e = e_s - e_{\infty}$  et  $r$  est un paramètre de relaxation compris entre 0 et 1, et qui dépend de la température. Les expressions de la dispersion  $e'(w)$ , et d'absorption  $e''(w)$  se déduisent de l'équation (II.62).

$$e'(w) = e_{\infty} + P^{-\frac{g}{2}} (e_0 - e_{\infty}) \cos(gq) \quad (\text{II.63})$$

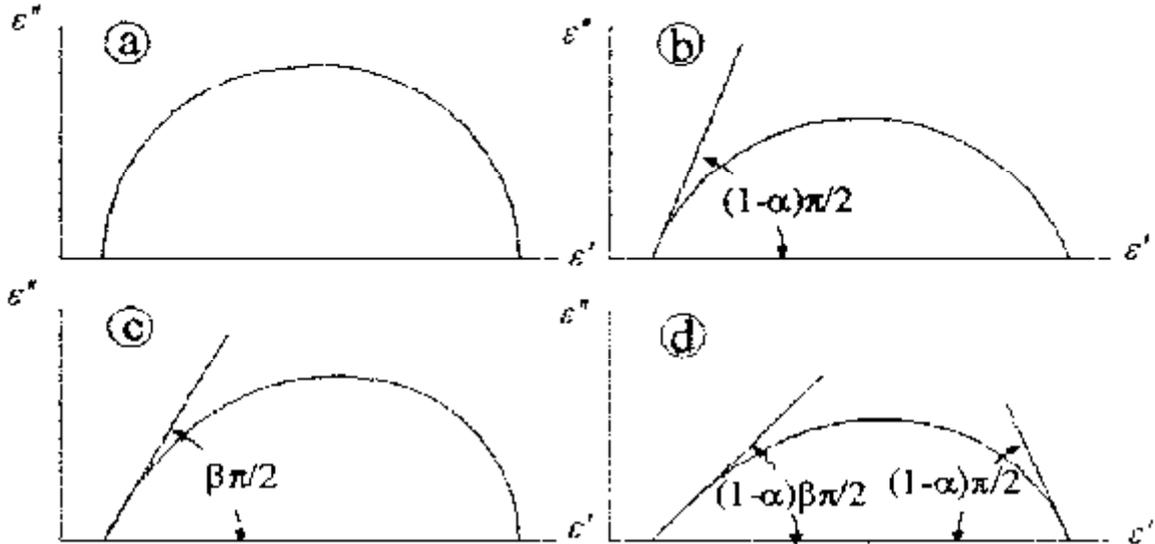
$$e''(w) = P^{-\frac{g}{2}} (e_0 - e_{\infty}) \sin(gq) \quad (\text{II.64})$$

Avec:

$$q = [1 + (wt)^{(1-a)} \sin(ap/2)]^2 + [(wt)^{(1-a)} \cos(ap/2)]^2 \quad (\text{II.65})$$

Et :

$$q = \text{Arc tan} \left[ \frac{[(wt)^{(1-a)} \cos(ap/2)]}{[1 + (wt)^{(1-a)} \sin(ap/2)]} \right] \quad (\text{II.66})$$



**Figure.II.5** : Représentation des quatre types de relaxations: (a) Debye, (b) Cole- Cole, (c) Davidson- Cole (d) Havriliak-Negami

## II.7 Ferroélectricité :

### II.7.1 Définition :

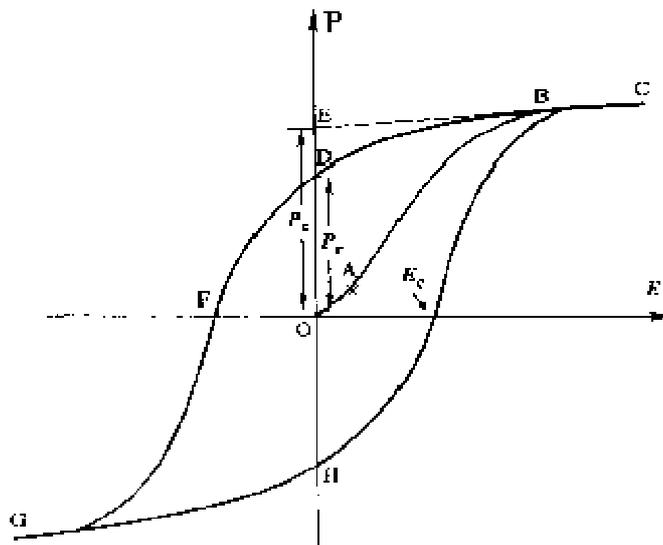
L'ensemble de ces propriétés, retrouvées depuis dans quelques certaines de substances, aurait continué à être désigné sous le terme de seignetto électricité si Müller, en 1935, n'avait proposé le terme de ferroélectricité qui rappelle l'analogie entre le comportement hystérétique de la polarisation électrique en fonction du champ électrique inducteur et celui de l'aimantation en fonction du champ magnétique dans les substances ferromagnétiques (fig. (II.6)) [37 ;15 ;17].

La ferroélectricité est le nom donné à la polarisation spontanée, dans les cristaux polaires, qui est une fonction de la température. Comme dans le cas du matériau ferromagnétique, où la polarisation ferromagnétique spontanée est révélée par la présence de « pôles magnétiques» à la surface de l'échantillon. Provenant de la polarisation spontanée, la charge de polarisation à la surface du matériau diélectrique est la plus part du temps neutralisée par des charges opposées libres, fournies soit par conduction à l'intérieur du corps du cristal, soit par une source extérieure. Cependant, le moment dipolaire d'un matériau polaire est une fonction de la température de façon telle que si la température spécimen change, la charge s'écoule vers ou à partir de la surface jusqu'à ce que la charge opposée soit ajustée à la nouvelle valeur de la polarisation, ainsi se révèle la polarisation spontané du diélectrique, le phénomène est dit effet pyroélectricité. Dans un matériau, pyroélectricité, la direction de la polarisation spontanée ne peut être renversée par application d'un champ électrique, dans le ferroélectrique, il peut d'être. Ainsi, le cristal

ferroélectrique peut se déchargé par application d'un champ et une hystérésis est associé à la décharge. Si l'on trace la polarisation en fonction du champ appliqué, on obtient un cycle d'hystérésis typique semblable au cycle **B- H** d'un ferromagnétique [17].

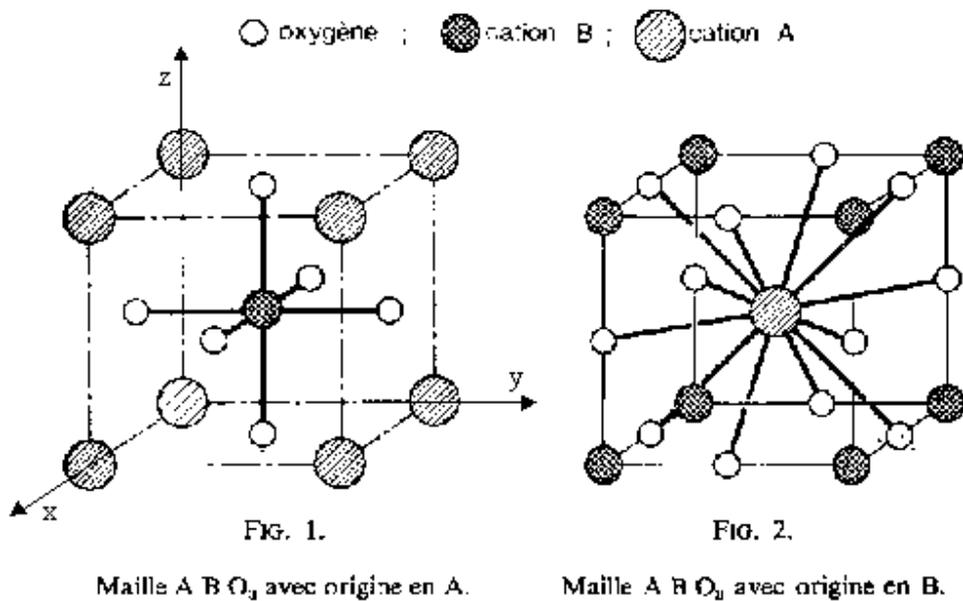
Contrairement aux diélectriques lesquels la polarisation **P** est une fonction linéaire du champ appliqué **E**, les matériaux ferroélectriques présentent une polarisation spontanée  $P_s$  qui subsiste en l'absence du champ appliqué, et peut être inversée sous l'action d'un champ d'amplitude supérieur à celle d'un champ dit coercitif  $E_c$ . Le terme ferroélectrique résulte d'une analogie entre le comportement électrique de tels diélectriques et le comportement magnétique des composés ferromagnétiques [17]. La ferroélectricité apparaît généralement en dessus d'une température spécifique, appelée point de curie pour laquelle se produit une transition de phase cristallographique qui fait passer la structure du ferroélectrique considérée d'une classe polaire à une classe non polaire. Les températures de curie des ferroélectriques s'étalent de quelques Kelvin à environ 1400K. Au dessus de cette température, l'agitation thermique est suffisante pour détruire l'ordre coopératif des dipôles qui donnent lieu à la polarisation spontanée. Ainsi la transition d'un état para électrique à un état ferroélectrique est essentiellement la transition d'une charge désordonnée à une charge ordonnée. Cette mise en ordre s'accompagne d'un changement de symétrie plus faible à l'intérieur d'une même classe. Ce sont les changements de phase essentiels, et peuvent être classés, du point de vue thermodynamique comme du premier ou du second ordre [18].

Les dipôles électriques d'un matériau ferroélectrique tendent à s'orienter selon un des deux sens d'une direction parallèle à l'axe polaire; le groupe spatial est non centrosymétrique. La ferroélectricité est en particulier inter atomique dans les liaisons ioniques entre atomes elle est très sensible aux substitutions d'atomes dans la structure [17]. Si on fait varier lentement **E** entre deux valeurs opposées, on obtient un diagramme (**P**, **E**) tout à fait comparable au cycle d'hystérésis des corps ferromagnétiques (figure (II.6)). Cette analogie de comportement est à l'origine de la dénomination ferroélectrique



**Figure.II.6:** Représentation de la polarisation en fonction du champ appliqué [17,37].

La polarisation du matériau BaTiO<sub>3</sub> est une grande partie ionique. Elle est due à la somme des polarisations internes des dipôles contenus dans chacune de ses mailles. L'ensemble des mailles possédant la même polarisation est appelé domaine. Un matériau ferroélectrique possède plusieurs domaines pouvant être de polarisation différente voir opposée et être séparés par des parois de domaines. Cette structure sous forme de domaines n'est pas encore tout à fait comprise mais reste une constante pour tous les matériaux ferroélectriques, figure (II. 7).



**Figure.II.7:** Représentation d'une surface d'un ferroélectrique structure pervoriskite.

### 111.7.2 Classifications des ferroélectriques :

Un premier type de classification concerne l'ordre de la transition à la température de curie :

Transition de second ordre, sans hystérésis thermique de  $E$  et  $P$ , à la transition, et transition: de premier ordre, avec hystérésis thermique de  $E$  et  $P$ , au voisinage de  $T_c$  ..

Un second type de classification, de type structural, et plus utile en pratique, consiste à part les ferroélectriques selon la dimension de l'espace occupé par le vecteur de polarisation de son basculement d'un état stable à l'autre [17,18].

- Les ferroélectriques à une dimension: sont ceux pour lesquels les ions déplacés du basculement décrivent des segments de droites parallèles à l'axe polaire. Le groupe ponctuel auxquels appartiennent ces ferroélectriques sont les groupes 2. mm ; 3,3 mm ; 4 mm ; 5 et 6

- mm. Les perovskites appartiennent à ce groupe.
- Les ferroélectriques à deux dimensions où les ions déplacés lors du basculement de la polarisation des lieux situés dans des plans parallèles à la direction de polarisation.
- Les ferroélectriques à trois dimensions: dans ce cas, le basculement de la polarisation entraîne des mouvements ioniques dans une direction qui n'est ni parallèle à l'axe polaire ni comprise dans un plan parallèle à l'axe polaire.

## II.8 Relation entre la permittivité et la température dans les ferroélectriques :

La permittivité totale des diélectriques normaux décroît avec la température. Dans les matériaux ferroélectriques, la permittivité et la susceptibilité croissent quand la température décroît au dessus du point de curie [101]. Au-delà de  $T_c$  la susceptibilité  $x$  est donnée par [20] :

$$x = \epsilon_r - 1 = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} - 1 = \frac{c}{\epsilon_0(T - T_c)} \quad (\text{II.67})$$

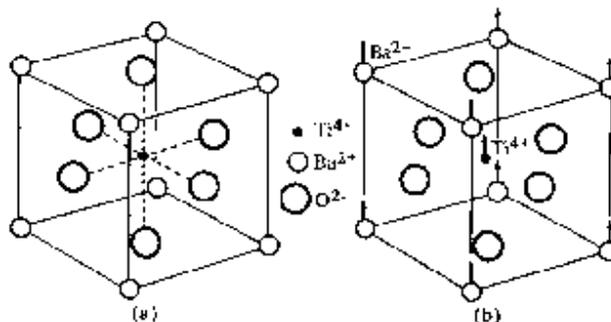
Avec  $T > T_c$ , où  $T_c$  température de curie et  $C$  s'appelle constante de curie, elle est propre à un ferroélectrique donné. La susceptibilité  $x$  diverge à  $T_c$ , de même que la permittivité  $\epsilon$ ; cette dépendance hyperbolique de  $x$  avec la température s'appelle loi de Curie. En deçà de  $T_c$ ,  $x$  est donnée selon la loi de Curie [72 ;73 ;74] :

$$x = \frac{c}{2\epsilon_0(T_c - T)} \quad (\text{II.68})$$

La permittivité élevée, typiquement de l'ordre de 1000, au point de Curie, est facilement compréhensible. A cette température, les ions sont sur le point de se déplacer vers ou hors de la position correspondante à la polarisation spontanée, en conséquence, un champ appliqué doit pouvoir produire un glissement relativement grand, avec un grand changement du moment dipolaire, correspondant à une permittivité élevée. Les ferroélectriques poly axes qui sont cubiques et isotropes au point de vue diélectrique dans la phase non polaire deviennent fortement anisotropes dans la phase polaire. La permittivité le long de l'axe de polarisation est plus basse que celle faisant avec lui un angle droit. Les comportements piézoélectriques et l'instabilité chimique ont cependant créé de grandes difficultés dans les applications pratiques. La permittivité en alternatif d'un cristal ferroélectrique varie avec la fréquence utilisée et avec la taille du cristal. Aux hautes fréquences, plus hautes que la fréquence de résonance mécanique du spécimen, la déformation piézoélectrique ne suit plus le champ appliqué. La permittivité mesurée est alors celle d'un cristal «contraint». Chez les cristaux non piézoélectriques, ces deux permittivités sont bien sûr, identiques, mais chez les ferroélectriques, elles peuvent différer de plusieurs ordres de grandeurs, la valeur « libre » étant invariablement plus élevée que la valeur « contrainte». Les fréquences de relaxation diélectrique dans les ferroélectriques paraissent dans les résultats expérimentaux, se situer dans la gamme micro-onde jusqu'à l'infrarouge lointain, ceci dépendant du matériau et de la température. En dépit de cela, de grandes valeurs de  $\epsilon''$ , c'est-à-dire de fortes pertes ont été rapportées pour des matériaux ferroélectriques variés, dans la gamme micro-onde [95].

### II.8.1 Etude cristallographique du BaTiO<sub>3</sub> : [18 ; 63]

Les matériaux ferroélectriques de type ABO<sub>3</sub> structure perovskite ont été largement utilisés dans l'industrie en microélectronique due à leurs constantes diélectriques élevées et au faible courant de fuite. L'exemple le plus important des ferroélectriques est le BaTiO<sub>3</sub> [32]. Le titanate de baryum de masse moléculaire de 233,4, présente à température ambiante une structure tétragonale. Les vecteurs primitifs correspondants aux axes cristallins sont :  $a=b=3.9988 \text{ \AA}$  et  $c=4.01808 \text{ \AA}$ , conduisant à un volume de la maille cristalline  $V=64.2813 \text{ \AA}^3$ , avec  $Z=1$ , où  $Z$  représente le nombre de motifs élémentaires dans la maille [1]. Les ions de  $Ba^{2+}$  entourés de douze oxygènes tandis que l'atome de titane est lié à six oxygènes. Sa coordination est octaédrique de même que l'oxygène qui est lié à quatre cations  $Ba^{2+}$  et deux cations  $Ti^{4+}$  figure (II.8).



**Figure II.8 :** Structure cristalline du titanate de baryum. (a) : maille cubique (état paraélectrique) ; (b) : structure tétragonale (état ferroélectrique).

### II.8.2 Etude cristallographique du CaTiO<sub>3</sub> : [18 ; 38 ; 39]

La première étude cristallographique réalisée sur le titanate de calcium de masse moléculaire 135,98 conduisait à une structure monoclinique, cependant, il a été rapidement montré par [139, 140, 142], il cristallisait suivant un réseau orthorhombique (qui pouvait dériver du système monoclinique) dans le groupe spatial *Pcmm* et ce n'est que plus récemment que l'on a définitivement admis le système orthorhombique et le groupe spatial *Pbnm* [42 ; 43, 44] avec  $Z = 4$ , bien que quelques différences apparaissent dans la détermination des paramètres primitifs ainsi que nous pourrions le constater à partir des valeurs données dans le tableau II.1.

Références	a (Å)	b (Å)	c (Å)	V (Å <sup>3</sup> )
[38]	5,37961	5,44233	7,64015	223,681
[39]	5,3881	5,4471	7,6541	224,631

**Tableau II.1:** paramètres primitifs de la maille du CaTiO<sub>3</sub>

## **II.9 Conclusion :**

Afin de mieux comprendre notre travail , et avant d'aborder l'expérimentation , nous avons présenté dans ce chapitre quelque théories du milieu effectif qui sont la base de tous les lois de mélange qu'on l'exposer dans le prochain chapitre liants les propriété diélectriques macroscopique du milieu hétérogène aux celles de leurs phases constituants, l'approche théorique de la permittivité effective des mélanges diélectriques appelle au calcul des polarisabilités et les phénomènes physiques peuvent avoir dans le matériau : des phénomènes de transport et de la polarisation permettant de caractériser , d'une manière phénoménologique ;le comportement d'un milieu donné ,leur description permet d'établir des lois phénoménologique s qui décrivent le comportement fréquentiel macroscopique des grandeurs électriques. Enfin une étude cristallographique des deux titanates que nous voulions caractériser est présentée pour mieux connaître leurs structures et afin de mieux appréhender l'origine structurelle de la différence obtenue entre les permittivités.

# CHAPITRE III:

# LOIS DE MELANGES

### III-1 Introduction :

Très nombreuses lois sur les mélanges ont jusqu'à présent été proposées afin de pouvoir modéliser le comportement diélectrique des matériaux hétérogènes à partir des caractéristiques diélectriques de leurs constituants. Mais ces lois restent néanmoins limitées soit par leur domaine de validité en fonction de la fraction volumique des charges incluses soit par leurs insuffisances à prévoir le comportement diélectrique de certains composites. En effet, la loi de Lichtenecker correspond à un cas particulier de la loi de Bottreau où cette loi semble très générale car elle traduit de façon satisfaisante le comportement diélectrique des matériaux composites.

### III-2 Mélange hétérogène :

Un mélange hétérogène [102] est un agrégat formé de grains d'un ou plusieurs corps purs (inclusions), répartis dans un milieu continu (matrice), un tel agrégat est caractérisé par sa compacité qui présente le rapport du volume de grains, au volume total de l'agrégat :

$$p = \frac{V_{grains}}{V_{agrégat}}$$

Les milieux entrant dans la composition de ces mélanges ne doivent évidemment pas interagir entre eux (réactions chimiques).

#### III-2-1 Types de mélanges:

La permittivité d'un tel mélange dépend de la permittivité propre des constituants, leurs proportions en volume, la forme des grains et leurs orientations. Les mélanges peuvent être classés en deux catégories [45] :

##### Mélanges réseaux :

Ce sont des mélanges formés de grains ayant la même forme, même dimension et la même orientation. Pour que les interactions restent faibles il faut que la forme des grains soit simple et les mélanges soient suffisamment dilués, ces milieux présentent un bénéfice purement théorique.

##### Mélanges statistiques:

Ce sont des mélanges dans lesquels les grains sont de forme et de dimension quelconque et ils sont répartis au hasard, ces mélanges présentent un intérêt très intéressant dans presque toutes les références qu'on a consultés suivant la caractérisation des matériaux à étudier.

#### III-2-2 Approximation du milieu effectif généralisé:

Les lois de mélange sont toutes basées sur l'hypothèse du milieu effectif [16 ;46 ;47 ;48] qui suppose que les propriétés diélectriques d'un corps hétérogène peuvent être représentées par un constant diélectrique effectif  $\epsilon_{eff}$  d'un matériau fictif.

Dans ce qui suit, nous noterons  $\epsilon_1$  la constante diélectrique relative de la matrice hôte dans laquelle sont incluses des particules de constante diélectrique  $\epsilon_2$  (phase dispersée).

### III-2-2-1 Modèle de Alpha (Lichtenecker) [45 ;49 ;50 ;51]:

Lichtenecker considère que la permittivité effective est donnée par une fonction G des différentes permittivités de chaque constituant et de leur fraction volumique. Dans le cas d'un mélange à **N phases** :

$$\epsilon_{eff} = G(\epsilon_1, \epsilon_2, \dots, \epsilon_N, V_1, V_2, \dots, V_N)$$

Le but de Lichtenecker est de déterminer la forme de G, il a trouvé deux formes possibles pour cette fonction.

$$\begin{aligned} \epsilon_{eff} &= G(\epsilon_1, \epsilon_2, V_1, V_2) \\ \epsilon_{eff} &= \epsilon_1^{V_1} \epsilon_2^{V_2} \\ \epsilon_{eff}^a &= (V_1 \epsilon_1^a + V_2 \epsilon_2^a)^{1/a} \quad \text{avec } -1 \leq a \leq 1 \end{aligned} \quad (\text{III.1})$$

La généralisation à un mélange de N phases conduit :

$$\begin{aligned} \epsilon_{eff}^a &= \sum_{i=1}^N V_i \epsilon_i^a \quad \text{avec } -1 \leq a \leq 1 \\ \epsilon_{eff} &= \prod_{i=1}^N \epsilon_i^{V_i} \end{aligned} \quad (\text{III.2})$$

#### Démonstration de la loi :

C'est en 1924, à la suite d'une série de travaux sur la conductivité des agrégats naturels, que Lichtenecker a proposé une loi logarithmique aléatoire, l'expression différentielle s'écrit :

$$\frac{1}{F^{1-a}} \frac{\partial F(x_1, x_2, V_1)}{\partial V_1} = g(x_1, x_2)$$

L'intégration de cette équation conduit à deux expressions suivant les valeurs de  $\alpha$ :

Pour  $\alpha \neq 0$

$$\frac{1}{a} F^a(x_1, x_2, V_1) = V_1 g(x_1, x_2) + h(x_1, x_2)$$

$h(x_1, x_2)$  est une constante d'intégration

Les conditions aux limites,  $F^a(x_1, x_2, 0) = x_2$  et  $F^a(x_1, x_2, 1) = x_1$

$$\text{Alors : } F^a(x_1, x_2, V_1) = x^a = V_1 x_1^a + (1 - V_1) x_2^a$$

Pour les matériaux diélectriques:  $x_1 = e_1$ ,  $x_2 = e_2$  et  $V_1 = p$

$$e^a = p e_1^a + (1 - p) e_2^a$$

p: c'est la probabilité pour que l'événement se produise.

Pour  $\alpha = 1$  et  $p = V_1$  l'expression précédente devient :

$$e = V_1 e_1 + V_2 e_2 \quad \text{Loi de Wiener directe ;}$$

Pour  $\alpha = -1$

$$e^{-1} = V_1 e_1^{-1} + V_2 e_2^{-1} \quad \text{Loi de Wiener inverse}$$

Pour  $\alpha = 1/2$

$$e^{1/2} = V_1 e_1^{1/2} + V_2 e_2^{1/2} \quad \text{Loi de Birchak ;}$$

Pour  $\alpha = 1/3$

$$e^{1/3} = V_1 e_1^{1/3} + V_2 e_2^{1/3} \quad \text{Loi de Looyenga.}$$

L'intégration de la fonction F pour  $\alpha = 0$ , conduit a:

$$\text{Ln}[F(x_1, x_2, V_1)] = \text{Ln}(x) = V_1 \text{Ln}x_1 + V_2 \text{Ln}x_2$$

Pour les milieux diélectriques :

$$\text{Lne} = V_1 \text{Ln}(e_1) + V_2 \text{Ln}(e_2)$$

C'est la loi logarithmique Lichtenecker, cette loi est valable pour les milieux diélectriques et les milieux magnétiques.

### III-2-2-2 Modèle de modélisation de Bottreau [22] :

Certaines composites diélectriques qui ont le phénomène de percolation ou structure non sphériques ne répondaient pas à la loi de Lichtenecker, pour cette raison Bottreau a fait une représentation graphique du logarithme de la permittivité en fonction non pas de la fraction volumique de la charge, mais en fonction de son logarithme d'une part et de celui de la matrice d'autre part, il a basé sur de très nombreuses mesures, il a d'abord proposé de prendre  $\text{Ln}V_i$ , comme origine, avec  $V_i$  est la fraction volumique de la charge au point d'inflexion. Les courbes obtenues s'apparentent à des tangentes hyperboliques à la condition d'utiliser d'une part, dans le premier cas  $\text{Ln}(V_2/V_i)$  et d'autre part, dans le seconde cas  $\text{Ln}(1-V_i/V_1)$ , alors il effectue un nouveau changement d'origine il obtient dans ces conditions, les abscisses définitives, servant de base à son travail, qui deviendront des fonctions de  $\text{Ln}(V_2/V_i)$  :

$$\text{Ln} \frac{V_2}{V_1} - \text{Ln} \sqrt{\frac{V_2 V_1}{V_1(1-V)_i}} = \text{Ln} \sqrt{\frac{V_2(1-V_i)}{V_1 V_i}}$$

Alors qu'en fonction de  $\text{Ln} \frac{1-V_i}{V_1}$ , on a :  $\text{Ln} \frac{1-V_i}{V_1} - \text{Ln} \sqrt{\frac{V_2 V_1}{V_i(1-V)_i}} = \text{Ln} \sqrt{\frac{V_2(1-V_i)}{V_1 V_i}}$

Les deux abscisses seront donc identiques, ce qui permettra de traiter les signaux dans leurs ensembles en utilisant le même système d'axe. Cette variable est posé égale à  $\text{Ln}V_N$ , variable normalisée, il suffit ensuite de normaliser les variations de  $\text{Lne}$  entre  $\pm 1$ . La suite une tangente hyperbolique est obtenue dont nous devons néanmoins déterminer la pente à l'origine que Bottreau l'appelé  $\alpha$ , en obtient alors la relation définitive de la modélisation de Bottreau qui s'exprime par :

$$\text{Lne}_N = \frac{2\text{Lne} - \text{Lne}_1 e_2}{\text{Ln} \frac{e_2}{e_1}} = \text{Tanh} \left( \frac{\alpha}{2} \text{Ln}V_N \right) \quad (\text{III.3})$$

Avec

$$V_N = \frac{V_2(1-V_i)}{V_1 V_i} \quad \text{qui conduit à : } \text{Lne}_N = \frac{V_N^a - 1}{V_N^a + 1} \quad \text{il s'ensuit que : } V_N^a = \frac{\text{Lne} - \text{Lne}_1}{\text{Lne}_2 - \text{Lne}}$$

après le développement nous obtenons :  $\text{Lne} = p_1 \text{Lne}_1 + p_2 \text{Lne}_2$ ,  $p_1$  et  $p_2$  sont les probabilités des constants :

$$P_1 = \frac{\left( \frac{V_1}{1-V_i} \right)^a}{\left[ \left( \frac{V_2}{V_i} \right)^a + \left( \frac{V_1}{1-V_i} \right)^a \right]} = \frac{1}{1+V_N^a}$$

$$P_2 = \frac{\left(\frac{V_2}{V_i}\right)^a}{\left[\left(\frac{V_2}{V_i}\right)^a + \left(\frac{V_1}{1-V_i}\right)^a\right]} = \frac{V_N^a}{1+V_N^a}$$

Nous remarquons que pour  $V_i = 0,5$  et  $\alpha = 1$ , nous retrouvons la loi de logarithme de Lichtenecker à :  $\epsilon_i^2 = \epsilon_1 \epsilon_2$

### a) Application de la loi de Bottreau : [16 ; 32 ]

Comme on a vu ; cette loi de Bottreau est utilisée pour vérifier la valeur de la constante diélectrique réelle et imaginaire et il suffit de déterminer ces paramètres ( $\alpha$  ;  $V_i$  et  $\epsilon_2$  de la charge si elle est inconnue) pour avoir un modèle mathématique complet ; donc l'application de cette loi est facile. Dans un premier temps, il suffit de tracer les variations de  $\text{Ln}(\epsilon)$  en fonction de  $\text{Ln}\left[\frac{1}{2}\left(\frac{V_2}{V_1}\right)\right]$  qui permettront de déterminer le point d'inflexion, en cas de difficulté, on pourra

toujours chercher la courbe dérivée de  $\text{Ln}(\epsilon)$  qui sera maximum en ce point ou encore la courbe dérivée seconde qui passera par zéro pour une certaine valeur de  $V_2$  ; en ce point,  $V_2$  sera égale à  $V_i$ , l'abscisse de la courbe en ce point sera telle que:

$$\text{Ln}\frac{1}{2}\left(\frac{V_2}{V_1}\right) = \text{Ln}\left[\frac{1}{2}\frac{V_i}{(1-V_i)}\right] \quad (\text{III.4})$$

$V_i$  étant connue, la variable normalisée  $V_N$  est donc déterminée puisque:

$$V_N = \frac{V_2}{V_1} \left[ \frac{1-V_i}{V_i} \right] \quad (\text{III.5})$$

et connaissant la permittivité  $\epsilon_i$  au point d'inflexion nous pouvons déterminer  $\epsilon_2$ .

Connaissant  $\epsilon_1$  et même si besoin était, la valeur de  $\epsilon_1$  puisque la représentation en arc tangente tend vers "-1" et celle de  $\text{Ln}(\epsilon_N)$  vers  $\text{Ln}(\epsilon_1)$  quand  $V_2$  tend vers zéro.

Nous pouvons donc connaissant tous ces éléments, tracer la loi de modélisation:

$$\text{Ln}(\epsilon_N) = F\left[\frac{1}{2}\text{Ln}(V_N)\right] \quad (\text{III.6})$$

Dont la pente à l'origine sera égale à  $\alpha_0$ . La fonction de corrélation  $\alpha$ , pourra éventuellement être établie à partir de la courbe dérivée de  $\text{Ln}(\epsilon_N)$ .

**b) Généralisation de la loi de modélisation de Bottreau à N phase:**

Pour aboutir à la formule générale de la loi de modélisation de Bottreau qui contient N constituants, on procède par N-1 homogénéisation, la formule pour quatre phases devient:

$$\ln e_{1234} = p_{123}^{(4)} \ln e_{123} + p_4^{(4)} e_4 \text{ Avec}$$

$$p_{123}^{(4)} = \left( \frac{\frac{V_1 + V_2 + V_3}{1 - V_{i4}}}{\frac{V_1 + V_2 + V_3 + V_4}{1 - V_{i4}} + \frac{V_4}{V_{i4}}} \right) \text{ et } p_4^{(4)} = \left( \frac{\frac{V_4}{V_{i4}}}{\frac{V_1 + V_2 + V_3 + V_4}{1 - V_{i4}} + \frac{V_4}{V_{i4}}} \right)$$

$e_{123}$  : Permittivité de mélange entre les trois constituants

$V_{i4}$  : Point d'inflexion du mélange de constituant 4

$$p_{123}^{(4)} + p_4^{(4)} = 1$$

Par substitution on aboutit à:

$$\ln e_{1234} = p_{123}^{(4)} \ln e_1 + p_2^{(4)} \ln e_2 + p_3^{(4)} \ln e_3 + p_4^{(4)} \ln e_4$$

$$p_1^{(4)} = p_1^{(3)} p_{123}^{(4)} = p_1^{(2)} p_{123}^{(4)} p_{12}^{(3)}$$

$$p_2^{(4)} = p_2^{(3)} p_{123}^{(4)} = p_2^{(2)} p_{123}^{(4)} p_{12}^{(3)}$$

$$p_3^{(4)} = p_3^{(3)} p_{123}^{(4)}$$

$$p_4^{(4)} = p_4^{(4)}$$

Pour  $V_4 = V_{i4}$ ,  $p_1^{(4)} = p_2^{(4)} = p_3^{(4)} = p_4^{(4)} = \frac{1}{4}$ , on a:

$$\ln e_i = \frac{1}{4} \ln(e_1 e_2 e_3 e_4) = \frac{1}{4} \ln\left(\prod_{j=1}^4 e_j\right)$$

Le nouveau, matériau suppose constituer une seule phase homogène ensuite on ré applique la formule de modélisation de Bottreau avec la cinquième phase:

$$\begin{aligned} \ln e_{1 \rightarrow 5} &= p_{1 \rightarrow 4}^{(5)} \ln e_{1 \rightarrow 4} + p_5^{(5)} e_5 \\ &= p_1^{(5)} \ln e_1 + p_2^{(5)} \ln e_2 + p_3^{(5)} \ln e_3 + p_4^{(5)} \ln e_4 + p_5^{(5)} \ln e_5 \end{aligned}$$

Avec:

$$\begin{cases} p_1^{(5)} = p_{1 \rightarrow 4}^{(5)} p_{1 \rightarrow 3}^{(4)} p_{12}^{(3)} p_1^{(2)} \\ p_2^{(5)} = p_{1 \rightarrow 4}^{(5)} p_{1 \rightarrow 3}^{(4)} p_{12}^{(3)} p_2^{(2)} \\ p_3^{(5)} = p_{1 \rightarrow 4}^{(5)} p_{1 \rightarrow 3}^{(4)} p_3^{(3)} \\ p_4^{(5)} = p_{1 \rightarrow 4}^{(5)} p_4^{(4)} \\ p_5^{(5)} = p_5^{(5)} \end{cases}$$

Pour  $V_4 = V_{i4}$ ,  $p_1^{(5)} = p_2^{(5)} = p_3^{(5)} = p_4^{(5)} = p_5^{(5)} = \frac{1}{5}$ , on a:

$$\ln e_i = \frac{1}{5} \ln(e_1 e_2 e_3 e_4 e_5) = \frac{1}{5} \ln\left(\prod_{j=1}^5 e_j\right) \text{ avec}$$

$$p_{1 \rightarrow 4}^{(5)} = \left( \frac{\frac{\sum_{j=1}^5 V_j}{1 - V_{i5}}}{\frac{\sum_{j=1}^4 V_j}{1 - V_{i5}} + \frac{V_5}{V_{i5}}} \right) \text{ et } p_5^{(5)} = \left( \frac{\frac{V_5}{V_{i5}}}{\frac{\sum_{j=1}^4 V_j}{1 - V_{i5}} + \frac{V_5}{V_{i5}}} \right)$$

Dans le cas général de N constituants avec  $a = 1$  pour chaque étape il vient:

$\ln e_{1 \rightarrow N} = p_{1 \rightarrow N-1}^{(N)} \ln e_{1 \rightarrow N-1} + p_N^{(N)} \ln e_N$ , en développant par récurrence les valeurs de

$\ln e_{1 \rightarrow N}$  Jusqu'à l'obtention des fonctions de  $\ln e_1, \ln e_2, \dots \rightarrow \ln e_N$  on a:  $\ln e_{1 \rightarrow N-1} = \sum_{i=1}^N P_i^{(N)} \ln e_i$

avec une manière générale:

$$p_{N-1}^{(N)} = \left( \frac{\frac{\sum_{j=1}^{N-1} V_j}{1 - V_{iN}}}{\frac{\sum_{j=1}^{N-1} V_j}{1 - V_{iN}} + \frac{V_N}{V_{iN}}} \right) \text{ et } p_N^{(N)} = \left( \frac{\frac{V_N}{V_{iN}}}{\frac{\sum_{j=1}^{N-1} V_j}{1 - V_{iN}} + \frac{V_N}{V_{iN}}} \right) \quad (\text{III.7})$$

Dans le cas de Lichtenecker la probabilité doivent être remplacées les fonctions volumiques:

$$\ln e_{1 \rightarrow N} = \sum_{j=1}^N V_j \ln e_j.$$

Après qu'on présenté les deux lois de probabilité où nous sommes les appliqués dans notre étude ; nous voulons présentés quelques lois essentiels utilisables dans les labos.

### III-2-2-3 loi de Glausius-Mossotti:

Puisque tout corps est hétérogène, le champ local qui agit effectivement sur une particule est différent de ce champ. Mossotti [103] a proposé un modèle permettant d'exprimer le champ local des diverses grandeurs définissent le système. Le champ local  $E_1$  est la somme du champ appliqué  $E$  et du champ de Mossotti  $E_z$  :

$$E_1 = E + \frac{P}{3e_0}, \text{ Avec } P : \text{ le vecteur de polarisation.}$$

La polarisation et par définition le moment dipolaire par unité de volume. Or le moment dipolaire d'une inclusion est:

$P = N a E_1$ , avec  $E_1$ : le champ électrique local qui agit sur l'inclusion;  $N$  : le nombre de moment dipolaire par unité de volume;  $a$  : la polarisabilité.

La susceptibilité diélectrique est définie par:

$$c = e - 1 = \frac{P}{e_0 E}$$

A partir des relations précédentes, nous tirons la relation de Glausius-Mossotti

$$\frac{e - 1}{e + 2} = \frac{N a}{3e_0}$$

### III-2-2-4 loi de Rayleigh [103]:

La polarisabilité d'une sphère de constante diélectrique  $e_2$  placé dans le vide a pour expression.  $a = 4\pi e_0 r_0^3 \frac{e_2 - 1}{e_2 + 2}$ , Avec  $r_0$ : Diamètre de Sphère. Nous reportons cette équation

dans la formule précédente et en utilisant :  $N = \frac{3V_2}{4\pi r_0^3}$

Avec  $V_2$ : la fraction volumique des inclusions, nous obtenons l'expression de Rayleigh proposée aussi par Maxwell-Garnett [79] :

$$\frac{e - 1}{e + 2} = V_2 \frac{e_2 - 1}{e_2 + 2}$$

### III-2-2-5 Formalisme de Reynold et Hough [16,53,54]:

Il existe différentes composantes de champ interne  $E$  qui se présente dans un ellipsoïde de phase  $i$ , la projection de ce champ s'écrit :

$$E_d = \left( \sum N_k \cos^2(a_k) \right) E_0$$

Ou:

$$N_k = \sum_{k=1}^3 \frac{\cos^2 a_k}{1 + N_k \left( \frac{e_l - 1}{e_0} \right)} \quad (\text{III.8})$$

Avec :

$N_i$ , le facteur de dépolarisation de la phase  $i$ ;

$N_t$  : Coefficient de dépolarisation ;

$a_k$  : Angle entre les axes de l'ellipsoïde et le champ ;

$$\sum_{k=1}^3 \cos^2 a_k = 1$$

L'induction électrique  $D_i$  a pour expression :

$$D_i = e_i \left( \sum_{k=1}^3 N_k \cos^2 a_k \right) E_0$$

Considérons maintenant un mélange de  $N$  phases, chacune étant constituée d'un certain nombre d'ellipsoïdes de même orientation, chaque phase est en concentration volumique  $V_i$  dans le mélange homogène, le champ et l'induction moyens résultant sont donnés par les formules suivantes :

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{E} \rangle &= \left[ \sum_{i=1}^N V_i N_i \right] (\mathbf{E}_0) \\ \langle \mathbf{D} \rangle &= \left[ \sum_{i=1}^N V_i N_i e_i \right] (\mathbf{E}_0) \end{aligned}$$

Finalement, la permittivité effective est définie par :  $\langle \mathbf{D} \rangle = e_{eff} \langle \mathbf{E} \rangle$  s'exprime par la relation

$$e_{eff} = \frac{\langle \mathbf{D} \rangle}{\langle \mathbf{E} \rangle} = \frac{\sum_{i=1}^N V_i e_i N_i}{\sum_{i=1}^N V_i N_i} \quad (\text{III.9})$$

Qui peut aussi être écrite sous la forme:  $\sum_{i=1}^N V_i (\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_o) N_i = 0$  afin de calculer la permittivité effective du mélange. Ce formalisme a été utilisé de manière explicite ou implicite dans les formules classiques développées dans la suite de ce chapitre. Nous avons :

$\mathbf{e}_c$  : C'est la permittivité du milieu en tournant les inclusions, la valeur qu'elle peut prendre a été discuter par De Loor, elle peut être prise égale à la permittivité de l'une des phases constituant le mélange, cette phase sera considérée comme phase continue, les autres phases étant dispersées à l'intérieur. Ce modèle est appelé Non consistant, il est valable quant les autres phases sont en faible concentration dans la phase continue. On peut attribuer à  $\mathbf{e}_c$  la valeur de la permittivité effective du milieu.

Ce modèle dénommé Auto consistant, permet de tenir compte des interactions entre les différentes inclusions.

En général, la permittivité du milieu en tournant les inclusions a une valeur intermédiaire entre celle de la permittivité du diélectrique et la valeur effective du milieu. Les coefficients de dépolarisation pour chaque phase  $i$  du mélange sont déterminés à partir de la forme des inclusions, dans le cas des sphéroïdes, la relation entre ces facteurs est :

$$N_2 = N_3 = \frac{1}{2} |1 - N_1| \text{ , trois cas particuliers existent :}$$

$N_1 = 0$  Pour des inclusions en forme de disques ;

$N_1 = 1/3$  Pour des inclusions en forme sphériques

$N_1 = 1$  Pour des inclusions en forme des lamelles ou cylindriques. Les angles que font les axes des ellipsoïdes avec du champ appliqué :

$$\langle \cos^2 a_1 \rangle = \langle \cos^2 a_2 \rangle = \langle \cos^2 a_3 \rangle = 1/3$$

### III-2-2-6 Modèle non consistant:

C'est le cas ou la phase continue est considérée une des phases de mélange [77,78.79]. Nous détaillons dans la suite les relations les plus classiques :

#### a) Maxwell, bornes de Wagner: [53; 55]

Maxwell considère que le milieu est constitué d'une phase continue de permittivité  $\mathbf{e}_1$  dans laquelle est dispersée une deuxième phase de permittivité  $\mathbf{e}_2$ , sous forme d'inclusions sphériques figure III-2, cela correspond à déduire à partir de l'équation (III-8) l'expression des facteurs de dépolarisation. Pour ce modèle nous avons :

$$\mathbf{e}_c = \mathbf{e}_1$$

$$\langle \cos^2 a_1 \rangle = \langle \cos^2 a_2 \rangle = \langle \cos^2 a_3 \rangle = 1/3$$

$$N_2 = N_3 = N_3 = 1/3$$

Ce qui donne :

$$N_1 = 1$$

$$N_2 = \frac{1}{1 + \frac{1}{3} \left( \frac{e_2}{e_1} - 1 \right)} = \frac{3e_1}{e_2 + 2e_1}$$

La substitution des valeurs de  $N_1$  et  $N_2$  dans la formule (III-9), permet l'obtention de la relation de Maxwell :

$$\mathbf{e}_{eff} = \frac{V_1 \mathbf{e}_1 + V_2 \mathbf{e}_2 \frac{3e_1}{e_2 + 2e_1}}{V_1 + V_2 \frac{3e_1}{e_2 + 2e_1}}$$

Elle s'écrit aussi :

$$\frac{\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_1}{\mathbf{e}_{eff} - 2\mathbf{e}_1} = V_2 \frac{\mathbf{e}_2 - \mathbf{e}_1}{\mathbf{e}_2 - 2\mathbf{e}_1} \quad \text{(III-10-a)}$$

Si nous permutons le rôle de deux phases, nous obtenons l'expression suivante :

$$\frac{\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_2}{\mathbf{e}_{eff} - 2\mathbf{e}_2} = V_1 \frac{\mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_2}{\mathbf{e}_1 - 2\mathbf{e}_2} \quad \text{(III-10-b)}$$

Ces deux dernières formules sont appelées bornes de Wagner, Sillars étendit la loi de Maxwell Wagner valable à plus forte fraction volumique, il aboutit à l'expression explicite de la permittivité d'un composite :

$$\mathbf{e}_{eff} = \frac{\mathbf{e}_1(1 - V_2)(1 - N) + \mathbf{e}_2(V_2 + N(1 - V_2))}{\mathbf{e}_2 - N(1 - V_1)(\mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_2)} \quad \text{(III-11)}$$

$N$ : Facteur de dépolariation ;

$V_1, V_2$ : Fractions volumiques des constituants ;

$e_1, e_2$  : Permittivités des constituants.

Alors que Frick a généralise ce dernier modèle à des ellipses aléatoirement orientées.

**b) Bornes de Hashin et Shtrikman:**

La formule de Maxwell peut être étendue à N phases de permittivités  $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_3, \dots, \epsilon_N$  et de fractions volumiques  $V_1, V_2, V_3, \dots, V_N$ . Si la phase j est la phase continue dans la quelle des inclusions sphériques des autres phases sont dispersées, la permittivité effective s'écrit :

$$\epsilon_{eff} = \epsilon_j + \frac{N_j}{1 - \frac{N_j}{3\epsilon_j}}$$

Avec

$$N_j = \sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^N \frac{V_i}{\frac{1}{\epsilon_i - \epsilon_j} + \frac{1}{3\epsilon_j}}$$

On peut aussi l'écrire :

$$\frac{\epsilon_{eff} - \epsilon_j}{\epsilon_{eff} - 2\epsilon_j} = \sum_{i=1}^N V_i \frac{\epsilon_i - \epsilon_j}{\epsilon_i - 2\epsilon_j} \quad \text{(III-12)}$$

**c) Formule dans le cas non consistant:**

Dans ce qui précède, on a considéré des inclusions sphériques ( $N_i=1/3$ ). Pour généraliser le cas précédent, on se limite au cas où les coefficients de forme pour les différentes phases sont les mêmes, on peut obtenir la forme générale de Fricke:

$$\frac{\epsilon_{eff} - \epsilon_j}{\epsilon_{eff} - u\epsilon_j} = \sum_{i=1}^N V_i \frac{\epsilon_i - \epsilon_j}{\epsilon_i - u\epsilon_j} \quad \text{(III-13)}$$

Avec

$$0 \leq u \leq \infty \quad \text{et} \quad u = \frac{1}{N_i} - 1$$

$N_i$  : Facteur de forme moyen équivalent.

Le facteur u peut prendre les cas particuliers suivants:

1.  $u = 0$ , l'équation (III-13) devient:

$$(\mathbf{e}_{eff})^{-1} = \sum_{i \neq 1}^N \left( \frac{V_i}{\mathbf{e}_1} \right)^{-1}$$

Cette nouvelle formule correspond à la borne de Wiener inférieure (Wiener inverse)

2.  $u \rightarrow \infty$ , l'équation précédente devient :

$$\mathbf{e}_{eff} = \sum_{i \neq 1}^N V_i \mathbf{e}_i$$

Ce qui correspond à la borne de Wiener supérieure (Wiener directe).

3.  $u=2$ , alors nous obtenons la formule suivante :

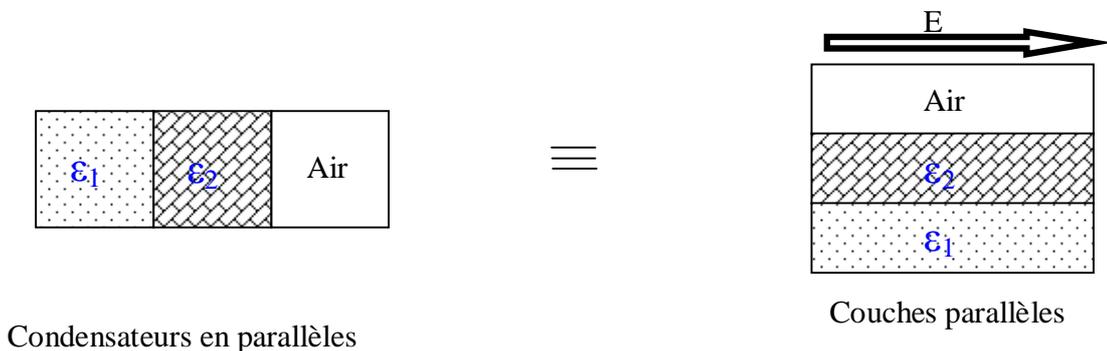
$$\frac{\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_j}{\mathbf{e}_{eff} - 2\mathbf{e}_j} = \sum_{i=1}^N V_i \frac{\mathbf{e}_i - \mathbf{e}_j}{\mathbf{e}_i - 2\mathbf{e}_j}$$

Cette expression correspond à l'expression de Maxwell à  $N$  phases, elle est aussi appelée dans le littérature Maxwell-Deloor ou Maxwell Lewin.

### III-2-2-7 Modèle auto consistant [16 ;56 ;57 ;58] :

#### a) Bornes de Wiener:

Wiener à modéliser un milieu hétérogène par une association de condensateurs en parallèle et en série, le premier cas c'est le cas d'une organisation de mélange en couches parallèles de différentes phases figure III-1-a, la permittivité dépend de la direction du champ électrique appliqué.



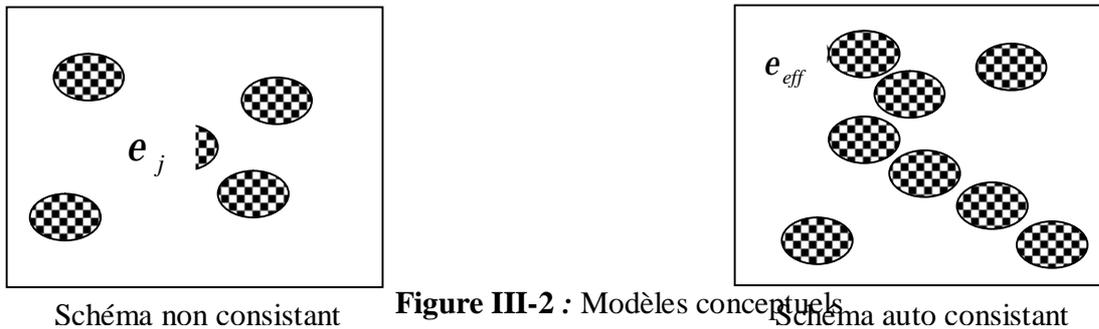
**Figure III-1-a** : Borne de Wiener supérieure

La figure III-1-b montre le cas d'une association de condensateurs en série



**Figure III-1-b : Borne de Wiener inférieure"**

Les formules de Wiener directe et inverse encadrent la permittivité effective d'un mélange. Mais dans le cas où celui-ci est isotrope, ce sont les bornes de Hashin et Shtrikman qui constituent le meilleur encadrement de la permittivité effective.



**Figure III-2 : Modèles conceptuels**

On peut obtenir plusieurs expressions de la permittivité du mélange suivant la forme et l'orientation des inclusions, Böttcher a développé le cas des inclusions sphériques. Polder et Van Santen ont développé le cas le plus général d'inclusions ellipsoïdales. Nous remplaçons dans la formule de Wiener directe  $e_j$  par  $e_{eff}$ , nous obtenons la formule :

$$\sum_{i=1}^N V_i \frac{e_i - e_{eff}}{e_i - u e_{eff}} = 0 \quad (III-14)$$

Pour  $u=2$ , C'est la formule de Böttcher ou Polder et Van Santen.

### III-2-2-8 Modèle de Bruggemann symétrique [59]:

Bruggemann, symétrisant le rôle des milieux hôtes et inclusions, aboutit à la relation suivante :

$$V_2 \frac{e_2 - e_{eff}}{e_2 - 2e_{eff}} + (1 - V_2) \frac{e_1 - e_{eff}}{e_1 - 2e_{eff}} = 0 \quad (\text{III-15})$$

De l'approximation du milieu effectif EMA [104]. On arrive à la relation de permittivité (ou de conductivité) :

$$V_2 \frac{e_2 - e_{eff}}{e_2 - Be_{eff}} + (1 - V_2) \frac{e_1 - e_{eff}}{e_1 - Be_{eff}} = 0$$

Avec :  $B=d-1$ ,  $D$  : Les Dimensions (2 pour la surface et 3 pour réseau cubique).

### III-2-2-9 Modèle de Hanaï [59,60] :

Considérons un milieu hétérogène constitué de particules sphériques de constante diélectrique  $e_2$  dispersées dans une matrice hôte de la constante diélectrique  $e_1$ , Hanaï propose la loi suivante:

$$1 - V_2 = \left| \frac{e_{eff} - e_2}{e_1 - e_2} \right| \left| \frac{e_1}{e_{eff}} \right|^{1/3} \quad (\text{III-16})$$

Certains auteurs signalent que cette loi n'est pas symétrique. Suite aux travaux de Boned et Peyrelasse sur la formulation de Hanaï, avec des ellipses parallèles, proposent sur un très large domaine de fraction volumique la formule générale :

$$1 - V_2 = \left| \frac{e_{eff} - e_2}{e_1 - e_2} \right| \left| \frac{e_1}{e_{eff}} \right|^{1/N}$$

On remarquera que pour  $N=1/3$  correspond bien au cas d'inclusions sphériques.

### III-2-2-10 Modèle de Bruggeman Hanaï [83, 87,88, 106] :

Nous venons de voir dans ce qui précède deux modèles conceptuels du milieu hétérogène (modèle non consistant et auto consistant), le modèle de Bruggeman-Hanaï se situe entre ces deux modèles. Soit un mélange de deux phases de permittivités  $e_1$  et  $e_2$  si  $V_2$ , (la fraction volumique de la phase 2) est faible et  $e_{eff}$  a valeur intermédiaire. Si nous appliquons la relation de Wiener inverse nous obtenons l'équation suivante :

$$V_2 = \frac{(e_2 + ue_1)(e_{eff} - e_1)}{(e_{eff} + ue_1)(e_2 - e_1)} \quad (\text{III-17})$$

Le mélange obtenu étant considéré homogène, on y ajoute une fraction volumique et on applique de nouveau la relation de Weiner inverse et on effectue les changements suivants dans l'équation précédente :

$$V_2 = \frac{dV_2}{1-V_2}$$

$$\mathbf{e}_{eff} = \mathbf{e}_{eff} + d\mathbf{e}_{eff}$$

$$\mathbf{e}_i \rightarrow \mathbf{e}_{eff}$$

On obtient alors l'équation différentielle suivante :

Dont  $\frac{(\mathbf{e}_2 + u\mathbf{e}_{eff})d\mathbf{e}_{eff}}{(1+u)(\mathbf{e}_2 + u\mathbf{e}_{eff})\mathbf{e}_{eff}} = \frac{dV_2}{1-V_2}$  son intégrale donne la relation de Bruggeman-Hanai

$$1 - V_2 = \left| \frac{\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_2}{\mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_2} \right| \left| \frac{\mathbf{e}_1}{\mathbf{e}_{eff}} \right|^{\frac{1}{1+u}} \quad (\text{III-18-a})$$

Si on permute le rôle des deux phases, on aboutit à :

$$V_2 = \left| \frac{\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_1}{\mathbf{e}_2 - \mathbf{e}_1} \right| \left| \frac{\mathbf{e}_2}{\mathbf{e}_{eff}} \right|^{\frac{1}{1+u}} \quad (\text{III-18-b})$$

Ces deux expressions correspondent aux bornes généralisées de Bruggeman-Hanai.

### 111-2-2-11 Modèle de Birchak [61] :

Birchak et ses collaborateurs proposent d'égaliser la constante de propagation de mélange à la somme pondérée des constantes de propagation des matériaux constituant le mélange, ils obtiennent:

$$\mathbf{e}_{eff}^{1/2} = (1 - V_2) \mathbf{e}_1^{1/2} + V_2 \mathbf{e}_2^{1/2} \quad (\text{III-19})$$

### III-2-2-12 Modèle de Looyenga [61,62] :

Looyenga a été conduit à proposer la loi suivante :

$$e_{eff}^{1/3} = (1-V_2) e_1^{1/3} + V_2 e_2^{1/3} \quad (III-20)$$

Cette loi est symétrique pour les " deux constituants.

Looyenga lui-même, Dube et Parshad (1970), Davies (1974), Boyle (1985) et Bâyeysi (1986) proposèrent une extension des lois de Landau-Lifshitz et de Looyenga, en tenant compte également de l'anisotropie A.

$$e_{eff}^{1-2A} = (1-V_2) e_1^{1-2A} + V_2 e_2^{1-2A} \quad (III-21)$$

### III-2-2-13 Modèle de Mc Lachlan [56] :

Mc Lachlan utilise le paramètre B et l'exposant t pour rendre compte de la percolation d'une inclusion conductrice d'indice 2 dans une matrice *isolante*, d'indice 1.

$$V_2 = \frac{(e_2^{1/2} - e_{eff}^{1/2})}{e_2^{1/2} - B e_{eff}^{1/2}} + (1-V_2) \left( \frac{e_1^{1/2} - e_{eff}^{1/2}}{e_1^{1/2} - B e_{eff}^{1/2}} \right) = 0 \quad (III.22)$$

Avec :

$$B = \frac{1-V_c}{V_c} \quad , \quad t = \frac{V_c}{L_f} \quad , \quad e_2 \mathbf{f} e_1$$
$$B = \frac{V_c}{1-V_c} \quad , \quad t = \frac{V_c}{1-L_f} \quad , \quad e_2 \mathbf{p} e_1$$

$V_f$  : Fraction volumique critique (seuil de percolation) ;

$L_f$  : Fraction dépolarisant.

### III-3 Généralisation des différentes approches :

Le tableau suivant montre les formules des lois de mélange à N phases [16 ;63] :

Dénomination	Formules générales
Reynolds et Houg	$\sum_{i=1}^N V_i (e_{eff} - e_i) N_i = 0$
Modèle non consistant : Bornes de Maxwell-Wagner	$\frac{e_{eff} - e_1}{e_{eff} - 2e_1} = \sum_{i=1}^N V_i \frac{e_i - e_1}{e_i - 2e_1}$ $\frac{e_{eff} - e_2}{e_{eff} - 2e_2} = \sum_{i=2}^N V_i \frac{e_i - e_2}{e_i - 2e_2}$
Bornes de Hashin et shtrikman	$\frac{e_{eff} - e_j}{e_{eff} - 2e_j} = \sum_{i=2}^N V_i \frac{e_i - e_j}{e_i - 2e_j}$
Cas non consistant	$\frac{e_{eff} - e_j}{e_{eff} - ue_j} = \sum_{i=2}^N V_i \frac{e_i - e_j}{e_i - ue_j}$ <p><math>u \rightarrow 0</math> wiener inverse</p> <p><math>u \rightarrow \infty</math> wiener directe</p>
Birchak	$e_{eff}^{1/2} = \sum_{i=1}^N V_i e_i^{1/2}$
Looyenga	$e_{eff}^{1/3} = \sum_{i=1}^N V_i e_i^{1/3}$
Bruggman	$\sum_{i=2}^N \frac{V_i (e_i - e_{eff})}{(e_i + 2e_{eff})} = 0$
Lichtenecker	$e_{eff} = \prod_{i=1}^N e_i^{V_i}$
Modélisation de Bottreau	$e_{eff} = \prod_{i=1}^N e_i^{p_i}$

**Tableau III-1** : Généralisation de quelques lois de mélange.

### **III .4Conclusion:**

Dans ce chapitre, nous avons exposé un ensemble de modèle simplifiés fondés sur la théorie du milieu effectif qui présume que les propriétés diélectriques d'un corps hétérogène peuvent être représentées par une constante diélectrique  $\epsilon_{eff}$  d'un matériau homogène fictif.

Le but des lois de mélange est l'estimation du comportement diélectrique de la totalité d'un matériau composite, connaissant les propriétés des différentes phases qui le constituent. Les différentes expressions liant la permittivité avec les fractions volumiques des constituants ont été développées pour différents modèles ; on a constaté que la loi Lichtenecker est un cas particulier de la loi de Bottreau.

# CHAPITRE IV:

# ASPECT THEORIQUE

## IV.1 Introduction :

Dans ce chapitre nous voulons exposer d'une manière générale tous les aspects théoriques qu'on a utilisé dans le chapitre 5 ; nous commençons par la technique de mesure qui fait la base des données qu'on a obtenues, ensuite la méthode d'optimisation utilisés dans la modélisation des grands systèmes chimiques ((systèmes non linéaire)) en utilisant la méthode de Nelder-Mead, enfin on présente la méthode de réseau neurone de la modélisation du comportement des composites.

## IV.2 Principe de mesure : [18 ;64-69]

Dans les techniques de réflectométrie en domaine temporel, nous faisons propager dans une ligne supposée sans pertes ; un signal qui est un échelon de tension de temps de montée très bref dont nous étudions les caractéristiques lorsqu'il rencontre un matériau quelconque placé dans cette ligne.

Avec comme caractéristiques:

$$\begin{aligned}V(t) &= 0 \text{ pour } t \leq 0 \\V(t) &= \frac{V_i}{\tau} t \text{ pour } 0 \leq t \leq \tau \\V(t) &= V_i \text{ pour } t \geq \tau\end{aligned}$$

Nous pouvons d'après les propriétés issues du théorème de Fourier, calculer l'amplitude complexe  $V(\omega)$  dans l'espace transformé du domaine des fréquences:

$$V(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} V(t)e^{-j\omega t} dt = \int_0^{+\infty} V(t)e^{-j\omega t} dt = -\frac{V_i}{\tau} \frac{1-e^{-j\omega\tau}}{\omega^2} \quad (\text{IV.1})$$

Lorsque le temps de montée  $\tau$  devient faible, nous aurons:

$$V_{\tau \rightarrow 0}(\omega) = \frac{V_i}{j\omega} \quad (\text{IV.2})$$

Cette dernière expression correspond à la transformée de Fourier de la fonction échelon dont nous pouvons également calculer la densité spectrale, il vient:

$$I(\omega) = V(\omega)V^*(\omega) = \frac{2V_i^2}{\tau^2} \left( \frac{1 - \cos(\omega\tau)}{\omega^4} \right) \quad (\text{IV.3})$$

et comme précédemment quand  $\tau$  devient faible:

$$I_{\tau \rightarrow 0}(\omega) = 2 \frac{V_i^2(\omega)}{\tau^2} \frac{\omega^2 \tau^2}{2\omega^4} = \frac{V_i^2}{\omega^2} \quad (\text{IV.4})$$

La densité spectrale qui est inversement proportionnelle au carré de la fréquence s'atténue moins rapidement vers les hautes fréquences que celle d'un signal de temps de montée fini inversement proportionnelle à la fréquence à la puissance quatre. Nous voyons donc l'intérêt de pouvoir utiliser des signaux incidents avec des temps de montée très bref ce qui est rendu possible depuis plusieurs années avec l'utilisation de diodes à pas de recouvrement rapides (step recovery diodes) qui assurent également une grande stabilité en temps permettant d'atteindre des fréquences de l'ordre de 12 GHz dans l'espace transformé[70 ;71 ;72 ;73 ;74]

Ce signal se propage donc dans une ligne d'impédance caractéristique  $Z_0$  et lorsqu'il rencontre une impédance  $Z$ , une partie du signal incident sera réfléchi. Le coefficient de réflexion à l'interface s'exprimera par:

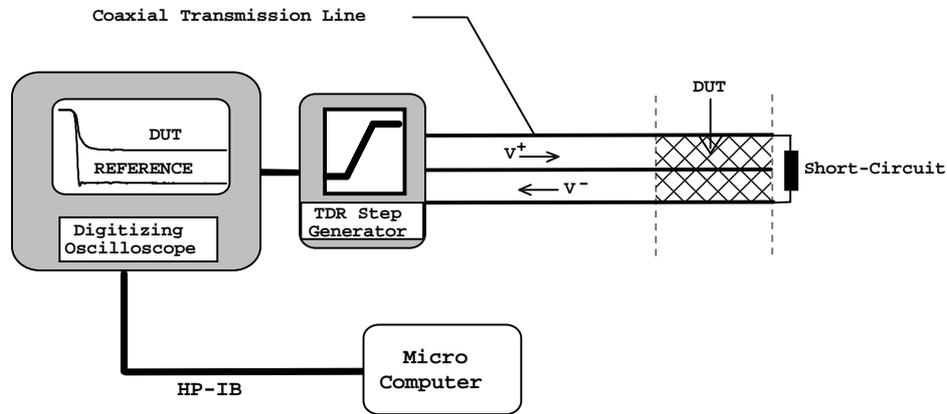
$$R = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \quad (\text{IV.5})$$

Nous pourrions donc connaissant  $R$ , obtenir  $Z$  et caractériser la nature de ce changement d'impédance: il pourra être dû à un défaut de connectique, à un changement de standard dans la propagation guidée où, dans le cas qui nous intéresse, à la présence d'un échantillon dans la ligne.

Le signal ainsi obtenu doit être traité pour le rendre compatible avec l'algorithme de transformée de Fourier (rapide ou discrète) utilisé et ainsi pouvoir passer dans le domaine des fréquences dans lequel il sera analysé et éventuellement interprété.

### **IV.3 Le dispositif expérimental : [18 ; 38 ; 64 ; 74 ; 75]**

La détermination expérimentale de la permittivité diélectrique complexe a fait à partir d'un système de réflectométrie en domaine du temps constitué par un générateur de tension avec une amplitude 200 mv et temps de montée de 35 ps (HP 54121), un oscilloscope d'échantillonnage HP 84120B. le signal de tension échelon est guidé dans une ligne coaxial APC-7 d'impédance caractéristique de 50  $\Omega$ . . Ce dernier est relié par une interface RS 232 à un PC qui assurera le traitement informatique définitif de ces signaux. (Traitement harmonique, du coefficient de réflexion et résolution des équations transcendantes permettant d'obtenir la permittivité).



**Figure IV-1:** Dispositif expérimental utilisé en spectroscopie temporelle

Lorsque l'échelon de tension se propage dans une ligne d'impédance caractéristique  $Z_0$  et rencontre une impédance  $Z$  une partie du signal incident sera réfléchi. Son coefficient de réflexion est donné par:  $R = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0}$ .

Nous pouvons alors connaissant  $R$  et  $Z_0 = 50 \Omega$  obtenir  $Z$  et par conséquent caractériser la cause de ce changement d'impédance. Il peut être due, ainsi que nous l'avons déjà signalé, à un changement de standard du guide, à un défaut de la ligne ou à la présence d'un échantillon dans la ligne

Nous pouvons alors, déterminer les caractéristiques électromagnétiques [diélectriques ( $\epsilon'$ ,  $\epsilon''$ ), électrique ( $\sigma$ ) et éventuellement magnétiques ( $\mu'$  et  $\mu''$ )] d'un matériau en fonction de la fréquence, en traitant soit le coefficient de réflexion  $R(\omega)$ , soit en passant par l'intermédiaire de l'admittance caractéristique du milieu  $Y(\omega)$  (ou de son impédance  $Z(\omega) = \frac{1}{Y(\omega)}$ ) par la résolution inverse des équations transcendentes obtenues à partir des relations de propagation en lignes coaxiales.

Nous avons vu précédemment que l'expérimentation nécessite en plus de la mesure du signal temporel en présence de l'échantillon, celle donnée par la charge étalon (court-circuit) qui permettra de déconvoluer la réponse échantillon et ainsi s'affranchir de la fonction d'appareil.

La première partie du signal correspond à l'échelon incident, mais la partie intéressante pour l'analyse de la nature du matériau est contenue dans la partie du transitoire réfléchi. Nous notons que la fenêtre d'observation temporelle correspond à la visualisation de l'écran de l'oscilloscope.

Nous devons ensuite choisir, en analysant la fenêtre d'observation spectrale, à partir de quelle valeur le signal a atteint sa valeur asymptotique, de manière à pouvoir le traiter par la méthode de la courbe dérivée, et le rendre compatible au traitement de Fourier.

#### IV.4 Expression du coefficient de réflexion :[54 ;60]

Nous allons ici étudier la réponse d'un échantillon à partir des coefficients de réflexion aux interfaces en individualisant chaque réflexion, ce qui se produit dans l'échantillon. En effet dans notre dispositif de réflectométrie temporelle, elles arrivent échelonnées dans le temps. Nous calculerons ensuite les coefficients de réflexion globaux par une méthode généralement utilisée par les opticiens et les micros ondinismes. Si nous considérons une lame diélectrique d'épaisseur  $d$  et le constant diélectrique  $\epsilon_2$  disposée entre deux milieux différents de longueurs infinies et de permittivité relatives  $\epsilon_1$  et  $\epsilon_3$ , nous avons de façon générale:

$$\rho_i = \frac{Z_{i+1} - Z_i}{Z_{i+1} + Z_i} = \frac{n_i - n_{i+1}}{n_i + n_{i+1}} \quad (\text{IV.6})$$

avec  $n_i = \sqrt{\epsilon_i}$ .

Nous aurons sur la première interface du coté amont:

$$\rho_1 = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_2 + Z_1} = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \quad (\text{IV.7})$$

alors que du coté aval nous aurons:

$$\rho_2 = \frac{Z_2 - Z_3}{Z_2 + Z_3} = \frac{n_2 - n_3}{n_2 + n_3} \quad (\text{IV.8})$$

On peut alors établir les relations suivantes entre les expressions des champs [29 ;76 -79]:

$$\begin{aligned} E_2 &= (1 + \rho_1) E_1 - \rho_1 E'_2 \exp(-\gamma_2 d) \\ E_3 &= (1 + \rho_2) E_2 \exp(-\gamma_2 d) \\ E'_2 &= \rho_2 E_2 \exp(-\gamma_2 d) \\ E'_1 &= \rho_1 E_1 + (1 - \rho_1) E'_2 \exp(-\gamma_2 d) \end{aligned} \quad (\text{IV.9})$$

Nous déduisons à partir de ce système d'équations linéaires les expressions générales du coefficient de réflexion global R et du coefficient de transmission global T:

$$R = \frac{E'_1}{E_1} \quad \text{et} \quad T = \frac{E_3}{E_1} \quad (\text{IV.10})$$

soit pour le coefficient de réflexion:

$$R = \frac{E'_1}{E_1} = \frac{\rho_1 + \rho_2 \exp(-2\gamma d)}{1 + \rho_1 \rho_2 \exp(-2\gamma d)} \quad (\text{IV.11})$$

alors que le coefficient de transmission s'exprime par:

$$T = \frac{E_3}{E_1} = \frac{(1 + \rho_1)(1 + \rho_2) \exp(-2\gamma d)}{1 + \rho_1 \rho_2 \exp(-2\gamma d)} \quad (\text{IV.12})$$

Ces deux relations fondamentales vont nous servir à définir les principaux protocoles expérimentaux que l'on peut mettre en œuvre en spectroscopie en domaine de temps. Lors de

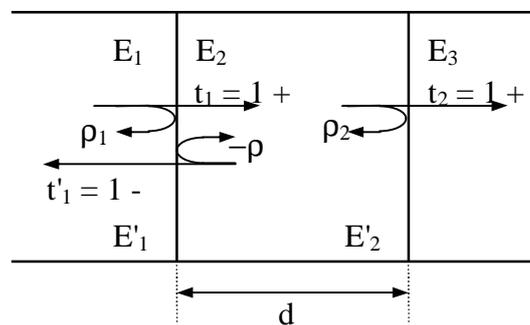
leurs présentations nous donnerons leurs avantages et leurs inconvénients. Nous indiquerons également ceux que nous avons retenus dans le cadre de cette thèse en justifiant le choix fait.

Les méthodes présentées peuvent se diviser en deux catégories: la méthode de la première réflexion et les méthodes faisant intervenir les réflexions multiples.

#### IV.5 Les méthodes de multi réflexions :[18 ;80 -87]

Nous supposons qu'en amont de l'échantillon l'onde se propage dans une ligne à air parfaite.

Dans ce cas, par rapport à la méthode précédente, il n'est pas nécessaire d'utiliser des échantillons longs afin de pouvoir les caractériser. Nous allons présenter plusieurs protocoles expérimentaux qui permettent de définir les paramètres électromagnétiques du matériau en considérant à chaque fois son épaisseur  $d$ , sa permittivité  $\epsilon$  et son impédance terminale de charge  $Z_t$ . Pour chacun d'eux, nous ferons une étude critique sur leurs domaines d'application pour des matériaux magnétiques ou non, conducteurs ou non afin de faire un choix sur la méthode la mieux adaptée dans le cadre de nos travaux.



**Figure IV-2:** Représentation globale des multi réflexions dans un diélectrique

Nous définirons les grandeurs suivantes:

$\gamma_2$ : constante de propagation dans le diélectrique étudié

$E_1$ : champ incident sur le premier dioptre

$E'_1$ : champ total réfléchi au niveau du premier dioptre

$E_2$ : champ total sur le premier dioptre à l'intérieur du diélectrique

$E'_2$ : champ total réfléchi au niveau du second dioptre et à l'intérieur du diélectrique

$E_3$ : champ total transmis

$\rho_1$ : coefficient de réflexion sur le premier dioptre

$t_1$ : coefficient de transmission au niveau du premier dioptre

$\rho_2$ : coefficient de réflexion sur le second dioptre

$t_2$ : coefficient de transmission au niveau du second dioptre

### IV.5.1 La méthode de la ligne adaptée ( $z_t = z_0$ ) : [4 ; 18 ;64 ;88 ;89 -92]

Le matériau est placé dans une ligne à air, terminée par son impédance caractéristique  $Z_0$  (50 Ohms), dans ce cas l'onde globale transmise à travers l'échantillon ne pourra revenir sur celui-ci. Nous donnons sur la figure IV-3 ci-dessous la configuration expérimentale utilisée.

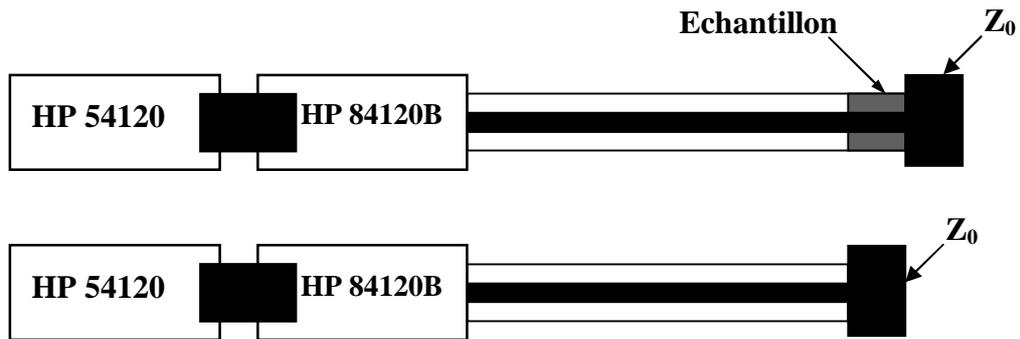


Figure IV 3: Représentation du dispositif de mesure d'une ligne adaptée [18,64]

Les signaux correspondants sont schématisés ci-dessous pour la transmission  $T_{ca}$  et la réflexion  $R_{ca}$ :

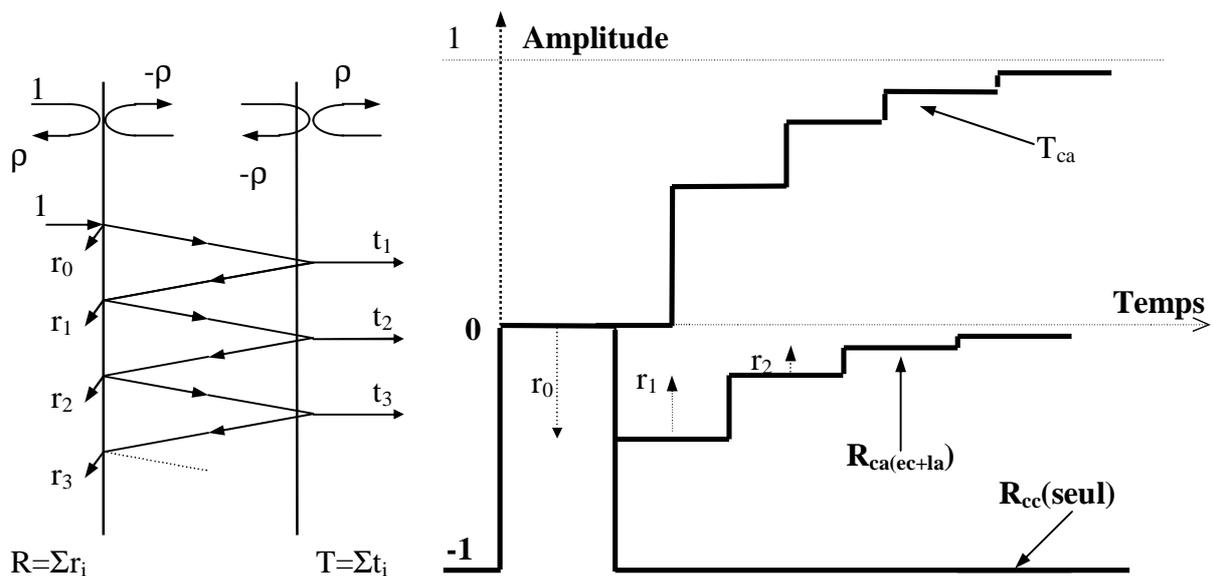


Figure IV-4: Représentation des multi réflexions pour la méthode de la ligne adaptée [18]

## IV.6 Méthode d'optimisation:

### IV.6.1 Méthode du polytope de Nelder-Mead : [40.93]

C'est une méthode d'optimisation locale qui est fréquemment utilisée. Cette méthode déterministe est dite "directe" : elle tente de résoudre le problème en utilisant directement la valeur de la fonction objectif, sans faire appel à ses dérivées. Cette méthode est surtout appréciée pour sa robustesse, sa simplicité de programmation, sa faible consommation de mémoire (peu de variables) et son faible temps de calcul. Cet algorithme est robuste car il est très tolérant aux bruits dans les valeurs de la fonction objective. En conséquence, la fonction n'a pas besoin d'être calculée exactement et il est possible d'avoir recours à une approximation de la valeur de la fonction.

Contrairement aux autres méthodes qui démarrent à partir d'un point initial, la méthode de Nelder-Mead utilise un "polytope" de départ. Un polytope est une figure géométrique de  $(n+1)$  points,  $n$  étant la dimension du problème. Le polytope de départ est obtenu par le tirage aléatoire d'un point  $x_1$  dans l'espace solution, les autres points  $x_i$  sont choisis de manière à former une base [50 ; 51], généralement une base orthogonale :

$$x_i = x_1 + \lambda e_i \quad (\text{IV.13})$$

Où  $e_i$ ,  $i = 2, \dots, n+1$  sont des vecteurs unitaires linéairement indépendants, et  $\lambda$  est généralement une constante, adaptée à la caractéristique du problème (domaine de variation des différentes composantes). On peut choisir des  $\lambda_i$  différents pour chaque vecteur de direction. Mais généralement, pour définir une base orthonormée, on prend un seul  $\lambda_i$  égal à l'unité, et le produit scalaire entre deux vecteurs unitaires  $e_i$  est nul. Le polytope  $P_0$  défini par les sommets  $x_1, x_2, \dots, x_{n+1}$ , est noté  $P_0 = \langle x_1, x_2, \dots, x_{n+1} \rangle$ .

A chaque itération de l'algorithme du polytope,  $n+1$  points sont utilisés pour déterminer un pas d'essai. Les points  $x_i$  sont ordonnés de manière à avoir  $f(x_1) < f(x_2) < \dots < f(x_{n+1})$ . Des points de test sont obtenus en utilisant de très simples opérations algébriques, qui se traduisent par des transformations géométriques élémentaires (réflexion, contraction, expansion, et multi contraction appelée aussi rétrécissement), et ces points sont acceptés ou rejetés en fonction de la valeur de la fonction objectif. Le polytope se transforme, il s'étend, se contracte, à chaque mouvement. Ainsi il s'adapte à l'allure de la fonction, jusqu'à ce qu'il s'approche de l'optimum. Pour déterminer la transformation adéquate, la méthode utilise uniquement la valeur de la fonction objective aux points considérés. A chaque transformation, le plus mauvais point courant  $x_h$  est remplacé par le nouveau point déterminé.

Les conditions d'arrêt de l'algorithme dépendent de la différence de valeur de la fonction objective entre le meilleur et le plus mauvais point : aussitôt que cette différence est inférieure à un certain seuil, l'algorithme est interrompu.

Soit  $\bar{x}$  le centre de gravité des points  $x_i$ , avec  $i = 1, \dots, n+1$ , formant le polytope  $P$  et nous écrivons  $[x_i, x_j]$  pour définir la distance de  $x_i$  à  $x_j$

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (\text{IV.14})$$

Un exemple d'application de l'algorithme du polytope à une fonction à 3 variables est donné sur la figure IV.5a,  $\bar{x}$  est centre de gravité du triangle formé par le triplet  $(x_1, x_2, x_3)$ . Le schéma des différents pas pour un polytope formé de 4 points  $P = \langle x_1, x_2, x_3, x_4 \rangle$  est donné dans la figure 1.4, et le pseudo code de l'algorithme est présenté dans la figure 1.5. Le point réfléchi  $x_r$  est déterminé en calculant le symétrique, par rapport au centre de gravité, du plus mauvais point  $x_{n+1}$  du polytope, et il est obtenu en utilisant la relation suivante :

$$x_r = (1 + a)\bar{x} - ax_{n+1} \quad (\text{IV.15})$$

Où  $a$  est une constante positive, généralement égale à 1, appelée *constante de réflexion*. Ainsi le point  $x_r$  se trouve, sur la droite joignant  $x_{n+1}$  et  $\bar{x}$ , tel que  $[x_r, \bar{x}] = [x_{n+1}, \bar{x}]$  (voir Figure IV.5.b).

Le point réfléchi est accepté si  $f(x_1) < f(x_r) < f(x_n)$ , et à l'itération suivante on réitère la réflexion avec le nouveau polytope défini par  $\langle x_1, x_2, \dots, x_n, x_r \rangle$ . On note que  $x_r$  n'est pas ordonné par rapport aux autres  $x_i$ . Si la valeur de la fonction objectif au point réfléchi est inférieure à celle au point  $x_1$ , i.e.  $f(x_r) < f(x_1)$ , alors l'essai précédent a produit un "bon" point, et on continue dans cette direction par une expansion du pas. L'expansion représentée par la figure IV.5.c est déterminée par :

$$x_e = gx_r + (1 - g)\bar{x} \quad (\text{IV.16})$$

La constante d'expansion  $g$ , dont la valeur est supérieure à l'unité, désigne le rapport de la distance  $[x_e, \bar{x}]$  à la distance  $[x_r, \bar{x}]$ . Le point ainsi obtenu  $x_e$  est accepté si  $f(x_e) < f(x_1)$ , sinon seul le point réfléchi  $x_r$  est accepté, et le point  $x_e$  est rejeté. On ordonne le nouveau polytope ainsi obtenu (les points  $x_i$ ), et on réitère le procédé.

Si le point réfléchi  $x_r$  est moins bon que  $x_n$ , i.e.  $f(x_n) < f(x_r)$ , alors un pas de contraction est à effectuer avec le meilleur point :  $x_r$  ou  $x_{n+1}$ . Si le plus mauvais point  $x_{n+1}$  est au moins aussi bon que le point réfléchi  $x_r$ , i.e.  $f(x_{n+1}) \delta f(x_r)$ , alors la contraction interne est calculée par :

$$x_c = bx_{n+1} + (1 - b)\bar{x}, \quad (\text{IV.17})$$

Sinon, la contraction, appelée contraction externe, est calculée comme suit :

$$x'_c = bx_r + (1 - b)\bar{x} \quad (\text{IV.18})$$

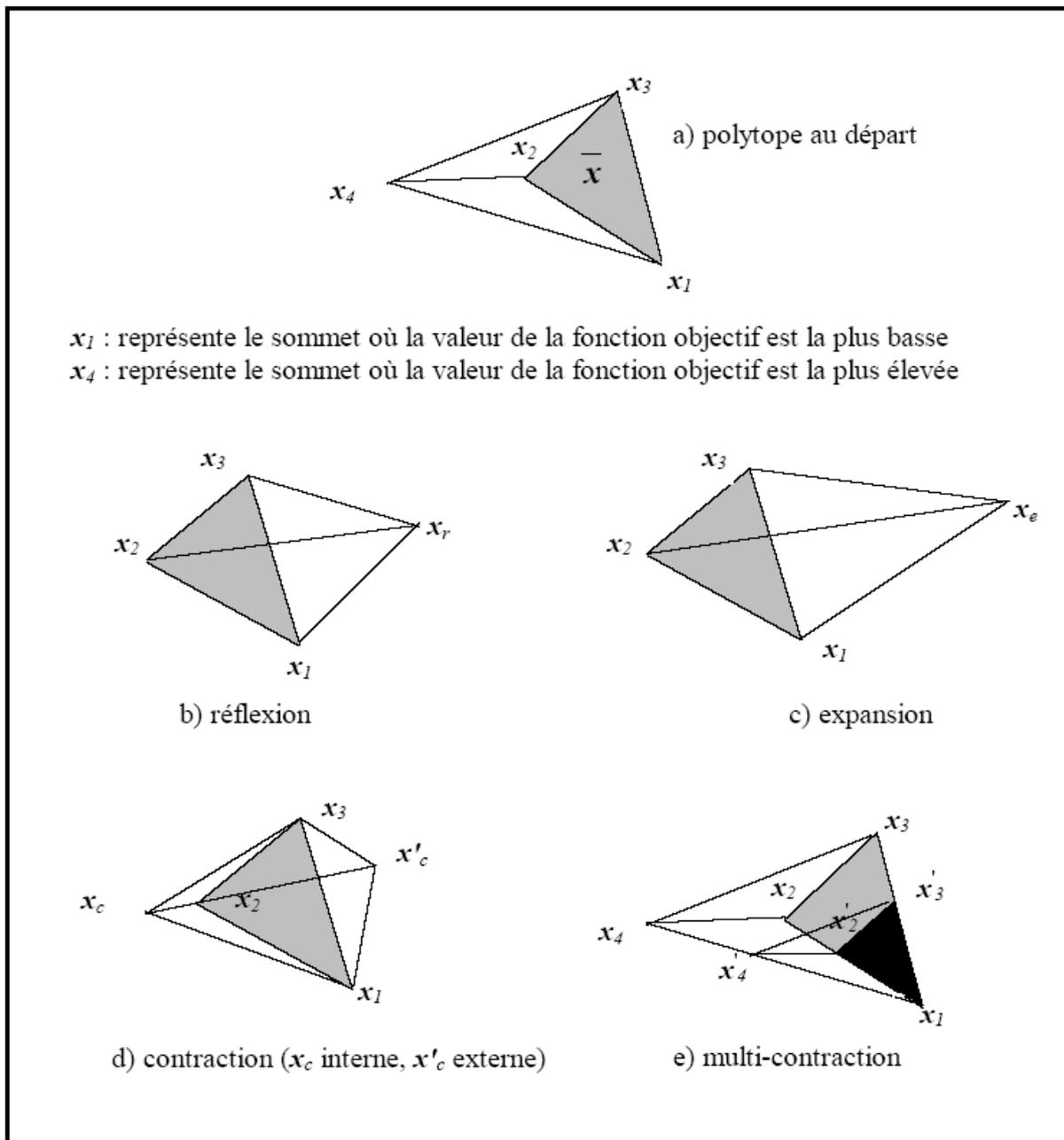
La valeur du coefficient de contraction  $\beta$  se situe entre 0 et 1, et il désigne le rapport de la distance  $[\mathbf{x}_c, \bar{x}]$  à la distance  $[\mathbf{x}_{n+1}, \bar{x}]$ . Le point ainsi obtenu  $\mathbf{x}_c$  est accepté si  $f(\mathbf{x}_c) < f(\mathbf{x}_{n+1})$ . Les deux types de contractions sont illustrés sur la figure IV.5.d.

Pour chaque contraction rejetée, i.e. ( $f(\mathbf{x}_{n+1}) < f(\mathbf{x}_c)$ ), on remplace tous les  $x_i$  du polytope par  $\frac{(x_j + x_i)}{2}$ , on obtient ainsi le "rétrécissement" (ou "multi contraction") du polytope (voir figure 1.4.e) et le processus redémarre.

Le critère d'arrêt est une mesure de déplacement du polytope d'une itération  $k$  à l'itération suivante ( $k+1$ ). L'algorithme s'arrête lorsque :

$$\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left\| x_i^k - x_i^{k+1} \right\|^2 < \epsilon \quad (\text{IV.19})$$

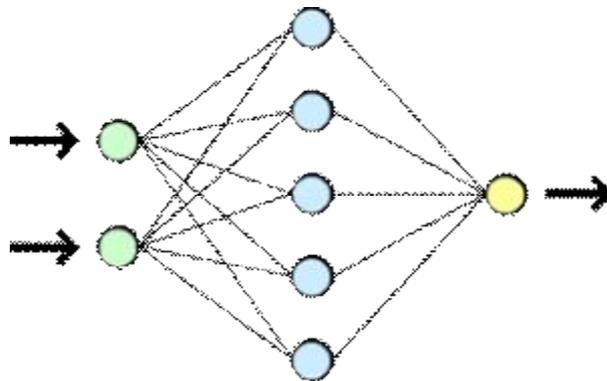
Où  $\mathbf{x}_{k+1}$  est le sommet remplaçant le sommet  $\mathbf{x}_k$  à l'itération ( $k+1$ ), et  $\epsilon$  est un nombre réel positif donné.



**Figure IV.5** : les mouvements possibles pour la méthode de Nelder-Mead

## IV.7 Les réseaux neurones artificiels :[94 -99]

Un réseau de neurones artificiel (ou Artificial Neural Network en anglais) est un modèle de calcul dont la conception est très schématiquement inspiré du fonctionnement de vrais neurones (humains ou non). Les réseaux de neurones sont généralement optimisés par des méthodes d'apprentissage de type statistique, si bien qu'ils sont placés d'une part dans la famille des applications statistiques, qu'ils enrichissent avec un ensemble de paradigmes permettant de générer de vastes espaces fonctionnels, souples et partiellement structurés, et d'autre part dans la famille des méthodes de l'intelligence artificielle qu'ils enrichissent en permettant de prendre des décisions s'appuyant davantage sur la perception que sur le raisonnement logique formel.



FigureIV.6 : Vue simplifiée d'un réseau artificiel de neurones

### IV.7.1 Utilité des réseaux de neurones :

Les réseaux de neurones, en tant que système capable d'apprendre, mettent en œuvre le principe de l'induction, c'est-à-dire l'apprentissage par l'expérience. Par confrontation avec des situations ponctuelles, ils infèrent un système de décision intégré dont le caractère générique est fonction du nombre de cas d'apprentissages rencontrés et de leur complexité par rapport à la complexité du problème à résoudre. Par opposition, les systèmes symboliques capables d'apprentissage, s'ils implémentent également l'induction, le font sur base de la logique algorithmique, par complexification d'un ensemble de règles déductives (ex : prolog).

Grâce à leur capacité de **classification** et de **généralisation**, les réseaux de neurones sont généralement utilisés dans des problèmes de nature statistique, tels que la classification automatique de codes postaux ou la prise de décision concernant un achat boursier en fonction de l'évolution des cours. Si le réseau de neurones fonctionne avec des nombres réels, la réponse traduit une probabilité de certitude (par exemple: 1 pour « un bon résultat », -1 pour « un mauvais résultat », 0 pour « aucune idée », 0,9 pour « presque un bon résultat »).

Le réseau de neurones ne fournit pas toujours de règle exploitable par un humain. Le réseau reste souvent une boîte noire qui fournit une réponse quand on lui présente une donnée, mais le réseau ne fournit pas de justification facile à interpréter.

Les réseaux de neurones sont réellement utilisés, par exemple:

- pour la classification ; par exemple pour la classification d'espèces animales par espèce étant donnée une analyse ADN.
- reconnaissance de motif ; par exemple pour la reconnaissance optique de caractères (OCR), et notamment par les banques pour vérifier le montant des chèques, par La Poste pour trier le courrier en fonction du code postal, etc. ; ou bien encore pour le déplacement automatisé de robots mobiles autonomes.
- approximation d'une fonction inconnue.
- modélisation accélérée d'une fonction connue mais très complexe à calculer avec exactitude ; par exemple certaines fonctions d'inversions utilisées pour décoder les signaux de télédétection émis par les satellites et les transformer en données sur la surface de la mer.
- modélisation de l'apprentissage et amélioration des techniques de l'enseignement.

#### IV.7.2 Structure du réseau :

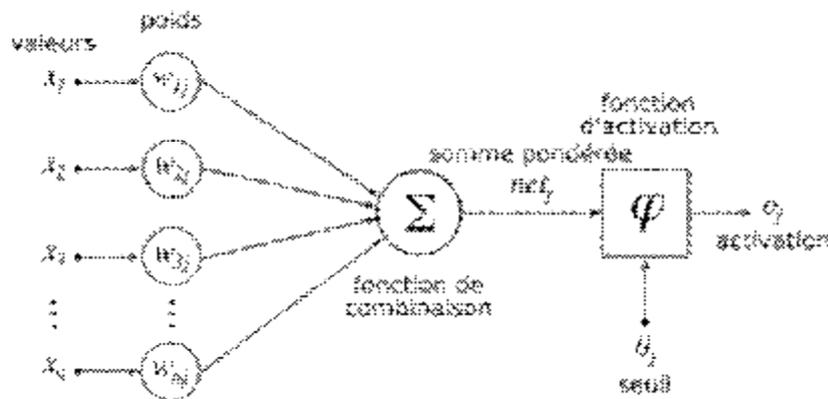


Figure IV.7: Structure d'un neurone artificiel.

Le neurone calcule la somme de ses entrées puis cette valeur passe à travers la fonction d'activation pour produire sa sortie.

Un réseau de neurone est en général composé d'une succession de couches dont chacune prend ses entrées sur les sorties de la précédente. Chaque couche (i) est composée de  $N_i$  neurones, prenant leurs entrées sur les  $N_{i-1}$  neurones de la couche précédente. À chaque synapse est associé un poids synaptique, de sorte que les  $N_{i-1}$  sont multipliés par ce poids, puis additionnés par les neurones de niveau i, ce qui est équivalent à multiplier le vecteur d'entrée par une matrice de transformation. Mettre l'une derrière l'autre la différente couche d'un réseau de neurones reviendrait à mettre en cascade plusieurs matrices de transformation et pourrait se ramener à une seule matrice, produit des autres, s'il n'y avait à chaque couche, la fonction de sortie qui introduit une non linéarité à chaque étape. Ceci montre l'importance du choix judicieux d'une bonne fonction de sortie : un réseau de neurones dont les sorties seraient linéaires n'aurait aucun intérêt.

Au delà de cette structure simple, le réseau de neurones peut également contenir des boucles qui en changent radicalement les possibilités mais aussi la complexité. De la même

façon que des boucles peuvent transformer une logique combinatoire en logique séquentielle, les boucles dans un réseau de neurones transforment un simple dispositif de reconnaissance d'inputs en une machine complexe capable de toutes sortes de comportements.

#### **IV.7.2.1 Fonction d'activation :**

La fonction d'activation (ou fonction de seuillage, ou encore fonction de transfert) sert à introduire une non linéarité dans le fonctionnement du neurone.

Les fonctions de seuillage présentent généralement trois intervalles :

1. en dessous du seuil, le neurone est non actif (souvent dans ce cas, sa sortie vaut 0 ou -1) ;
2. aux alentours du seuil, une phase de transition ;
3. au-dessus du seuil, le neurone est actif (souvent dans ce cas, sa sortie vaut 1).

Des exemples classiques de fonctions d'activation sont :

1. La fonction sigmoïde.
2. La fonction tangente hyperbolique.
3. La fonction de Heaviside.

#### **IV.7.2.2 Fonctions représentables par un perceptron :**

Un perceptron (un réseau à une unité) peut représenter les fonctions booléennes suivantes : AND, OR, NAND, NOR mais pas le XOR. Comme toute fonction booléenne est représentable à l'aide de AND, OR, NAND et NOR, un réseau de perceptron est capable de représenter toutes les fonctions booléennes.

#### **IV.7.2.3 Fonctions représentables par des réseaux de neurones multicouches acycliques :**

- Fonctions booléennes : Toutes les fonctions booléennes sont représentables par un réseau à deux couches. Au pire des cas, le nombre de neurones de la couche cachée augmente de manière exponentielle en fonction du nombre d'entrées.
- Fonctions continues : Toutes les fonctions continues bornées sont représentables, avec une précision arbitraire, par un réseau à deux couches (Cybenko, 1989). Ce théorème s'applique au réseau dont les neurones utilisent la sigmoïde dans la couche cachée et des neurones linéaires (sans seuil) dans la couche de sortie. Le nombre de neurones dans la couche cachée dépend de la fonction à approximer.
- Fonctions arbitraires: N'importe quelle fonction peut être approximée avec une précision arbitraire grâce à un réseau à 3 couches (Théorème de Cybenko, 1988).

#### **IV.7.3 Algorithme :**

La large majorité des réseaux de neurones possède un algorithme « d'entraînement » qui consiste à modifier les poids synaptiques en fonction d'un jeu de données présentées en entrée du réseau. Le but de cet entraînement est de permettre au réseau de neurones « d'apprendre » à partir des exemples. Si l'entraînement est correctement réalisé, le réseau est

capable de fournir des réponses en sortie très proches des valeurs d'origines du jeu de données d'entraînement.

Mais tout l'intérêt des réseaux de neurones réside dans leur capacité à généraliser à partir du jeu de test.

On peut donc utiliser un réseau de neurones pour réaliser une mémoire ; on parle alors de mémoire neuronale.

## **a) Apprentissage :**

### **1. Mode supervisé ou non supervisé :**

Les réseaux de neurones se divisent en deux principales classes, les réseaux à apprentissage supervisés (supervised learning) et les réseaux à apprentissage non supervisés (unsupervised learning).

Pour les réseaux à apprentissage supervisés (Perceptron, Adaline, etc. ), on présente au réseau des entrées, et au même temps les sorties que l'on désirerait pour cette entrée. Par exemple on lui présente en entrée une lettre " a " manuscrite et en sortie un code correspondant à la lettre " a " .

Le réseau doit alors se reconfigurer, c'est-à-dire calculer ses poids afin que la sortie qu'il donne corresponde bien à la sortie désirée.

Pour les réseaux à apprentissage non supervisé (Hop Field, Kohonen, etc.), on présente une entrée au réseau et on le laisse évoluer librement jusqu'à ce qu'il se stabilise.

Il existe aussi des réseaux à apprentissage dit semi supervisés (renforcement learning) qui ne tiennent compte que d'une évaluation partielle ou qualitative des sorties.

### **2. Sur apprentissage :**

Il arrive souvent que les exemples de la base d'apprentissage comportent des valeurs approximatives ou bruitées. Si on oblige le réseau à répondre de façon quasi parfaite relativement à ces exemples, on peut obtenir un réseau qui est biaisé par des valeurs erronées. Par exemple, imaginons qu'on présente au réseau des couples  $(x_i, f(x_i))$  situés sur une droite d'équation  $y=ax+b$ , mais bruités de sorte que les points ne soient pas exactement sur la droite. S'il y a un bon apprentissage, le réseau répond  $ax+b$  pour toute valeur de  $x$  présentée. S'il y a un sur apprentissage, le réseau répond un peu plus que  $ax+b$  ou un peu moins, car chaque couple  $(x_i, f(x_i))$  positionné en dehors de la droite va influencer la décision. Pour éviter le sur apprentissage, il existe une méthode simple : il suffit de partager la base d'exemples en 2 sous-ensembles. Le premier sert à l'apprentissage et le 2<sup>e</sup> sert à l'évaluation de l'apprentissage. Tant que l'erreur obtenue sur le 2<sup>e</sup> ensemble diminue, on peut continuer l'apprentissage, sinon on arrête.

### **3. Rétro propagation :**

La rétro propagation consiste à rétro propager l'erreur commise par un neurone à ses synapses et aux neurones qui y sont reliés. Pour les réseaux de neurones, on utilise habituellement la rétro propagation du gradient de l'erreur, qui consiste à corriger les erreurs selon l'importance des éléments qui ont justement participé à la réalisation de ces erreurs : les poids synaptiques qui contribuent à engendrer une erreur importante se verront modifiés de manière plus significative que les poids qui ont engendré une erreur marginale

#### **4.Élagage :**

L'élagage ("pruning", en anglais) est une méthode qui permet d'éviter le surapprentissage tout en limitant la complexité du modèle. Elle consiste à supprimer des connexions (ou synapses), des entrées ou des neurones du réseau une fois l'apprentissage terminé. En pratique, les éléments qui ont la plus petite influence sur l'erreur de sortie du réseau sont supprimés. Les deux algorithmes d'élagage les plus utilisés sont :

- Optimal Brain Damage (OBD) de Y. LeCun et al.
- Optimal Brain Surgeon (OBS) de B. Hassibi et D.G. Stork

#### **IV.7.4 Différents types de réseaux de neurones :**

L'ensemble des poids des liaisons synaptiques détermine le fonctionnement du réseau de neurones. Les motifs sont présentés à un sous-ensemble du réseau de neurones : la couche d'entrée. Lorsqu'on applique un motif à un réseau, celui-ci cherche à atteindre un état stable. Lorsqu'il est atteint, les valeurs d'activation des neurones de sortie constituent le résultat. Les neurones qui ne font ni partie de la couche d'entrée ni de la couche de sortie sont dits neurones cachés.

Les types de réseau de neurones diffèrent par plusieurs paramètres :

- la topologie des connexions entre les neurones ;
- la fonction d'agrégation utilisée (somme pondérée, distance pseudo euclidienne...) ;
- la fonction de seuillage utilisée (sigmoïde, échelon, fonction linéaire, fonction de Gauss, ...) ;
- l'algorithme d'apprentissage (rétro propagation du gradient, cascade corrélation) ;
- d'autres paramètres, spécifiques à certains types de réseaux de neurones, tels que la méthode de relaxation pour les réseaux de neurones (e.g. réseaux de Hop Field) qui ne sont pas à propagation simple (e.g. Perceptron Multicouche).

De nombreux autres paramètres sont susceptibles d'être mis en œuvre dans le cadre de l'apprentissage de ces réseaux de neurones par exemple :

- la méthode de dégradation des pondérations (weight decay), permettant d'éviter les effets de bord et de neutraliser le surapprentissage.

#### **IV.8 Conclusion :**

Dans ce chapitre nous exposons le principe de la mesure de la constante diélectrique qui nous conduise à déterminer les caractéristique des composites et pour cela il est nécessaire de disposer une méthode parmi les méthodes existantes, une qui est assuré et facile à mettre en œuvre pour effectuer une bonne caractérisation du matériau. Donc parmi les méthodes de multi réflexions, la méthode de la ligne adaptée, favorable à l'étude des matériaux diélectrique [18] ; et nous avons présenté aussi l'algorithme de la méthode d'optimisation qui peut optimiser de façon facile les paramètres de Bottreau et enfin nous avons exposé une introduction au réseau de neurone qui était utilisé pour la modélisation dans le dernier chapitre.

# CHAPITRE V:

# RESULTATS ET SIMULATIONS

## V.I Introduction :

Des nombreuses études expérimentales ont été publiées sur la détermination des paramètres diélectriques des composites (conductivité, epsilon prime, seconde et temps de la relaxation) en fonction de différents facteurs (fréquence, température, fraction volumique....etc.)

Dans ce travail nous sommes proposé de caractériser un matériau hétérogène solide ; en effet est un mélange ternaire constituant une matrice hôte (la résine) et la charge (titanate de baryum et titanate de calcium) ; la technique de mesure SDT sur une fréquence fixe qu'on a utilisé et a été choisi dans le [chapitre 4], nous a permis de déterminer les permittivités de chaque constituant des échantillons qui ont été préparés par la résolution inverse de l'équation transcendante du coefficient de réflexion par le programme qu'on réalisé sous mathematica V5.0.

Donc nous exposons les résultats effectués pour différentes valeurs de fraction volumique de la charge et nous montrons que nos résultats confirment bien les mesures publiées auparavant par différents auteurs pour cela nous avons simulé des lois de mélange (Lichtenecker et Bottreau). Et nous devons modéliser par la méthode de réseau de neurone ce comportement.

## V.2. Préparation des échantillons [18,64].

Pour l'élaboration des matériaux, il existe plusieurs procédés de fabrication, le premier, est le cas où le composite est constitué d'air et de particules plus ou moins sphériques, pastilles compressées sous grande pression; mais leur réalisation, peut présenter des défauts d'homogénéité. Le second procédé, concerne également un bi constituant où tri constituant, la matrice de base est une résine polyester qui servira de liant et que l'on chargera par différents titanates. Cela revient alors, si le matériau est bien réalisé, à remplacer l'air inclus dans le premier type de matériau par la résine. Sur le plan de la réalisation et de la préparation des échantillons on voit immédiatement les difficultés que nous avons eu à résoudre pour traiter le phénomène de rétraction, les défauts de sédimentation granulométrique lors de la polymérisation et l'introduction des micros bulle pouvant persister dans le mélange.

L'étude du comportement des matériaux diélectriques est déterminé les propriétés électromagnétiques est particulièrement la constante diélectrique  $\epsilon$  où La constante diélectrique complexe est donnée par :

$$\epsilon^* = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1 + j\omega\tau} - j \frac{S_s}{\omega\epsilon_0} \quad (V.1)$$

Et on peut tirer :

$$\epsilon'' = \frac{S_s}{\omega\epsilon_0} \quad (V.2)$$

Cette dernière équation nous donne l'information sur le comportement ohmique et la conductivité statique du composite en basse fréquence.

Au début nous allons étudier les mélanges binaires (titanate est la charge et la résine époxyde est la hôte) à l'objet de mieux comprendre le comportement des mélanges ternaires constitués par les deux titanates et la résine.

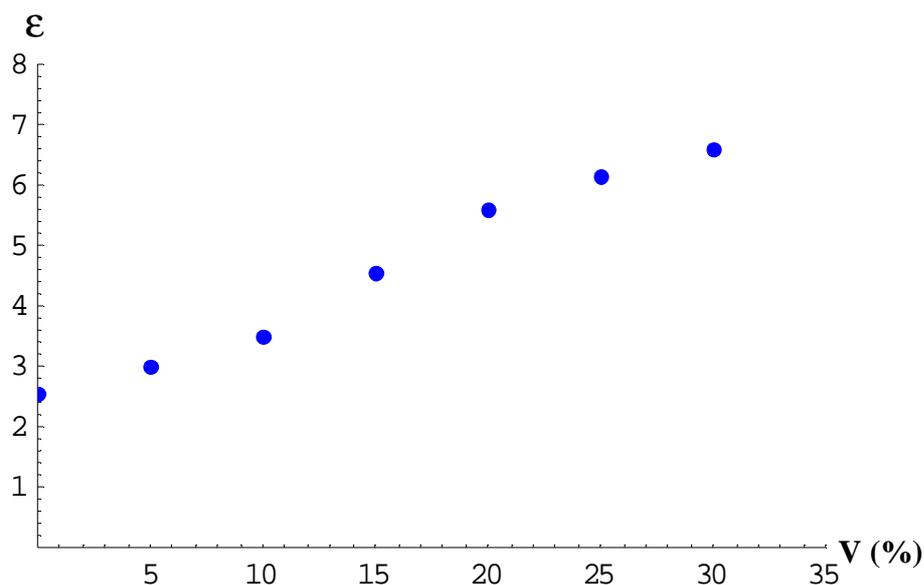
## V.2.Mélange binaire :

### V.2.1Mélange binaire titanate de Calcium et Résine époxyde (RE/TCA) :

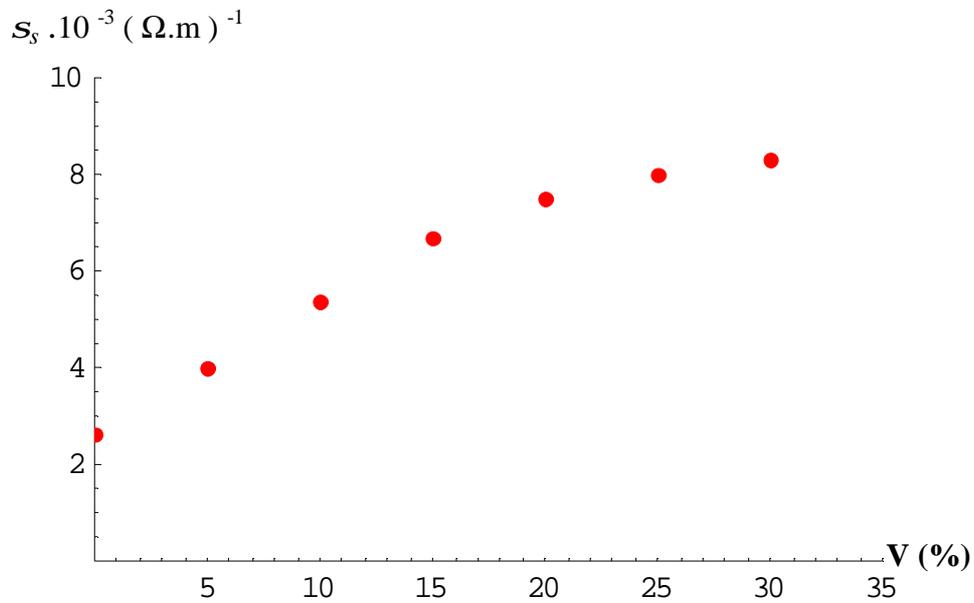
le tableau ci-dessous donne les résultats qu'on a obtenue par l'expérience les valeurs de la permittivité réelle et les valeurs de la conductivité en variant la fraction volumique de ( $\text{CaTiO}_3$ ) de 0 à 30 % pour une fréquence fixé 500Mhz (des valeurs statiques), telle que leur représentation graphique .

T de calcium (%)	$\epsilon_s$	$S_s \cdot 10^{-3} (\Omega \cdot m)^{-1}$
0	2.567	2.661
5	3.027	3.997
10	3.505	5.398
15	4.572	6.687
20	5.603	7.522
25	6.174	8.012
30	6.603	8.342

**Tableau V.1:** la variation de la permittivité réelle et la conductivité du (RE/TCA) en fonction de la fraction volumique du  $\text{CaTiO}_3$ .



**Figure V.1:** la variation de la permittivité réelle du (RE/TCA) en fonction de la fraction volumique  $\text{CaTiO}_3$ .



**FigureV.2:** la variation de la conductivité du (RE/TCA) en fonction de la fraction volumique du CaTiO<sub>3</sub>.

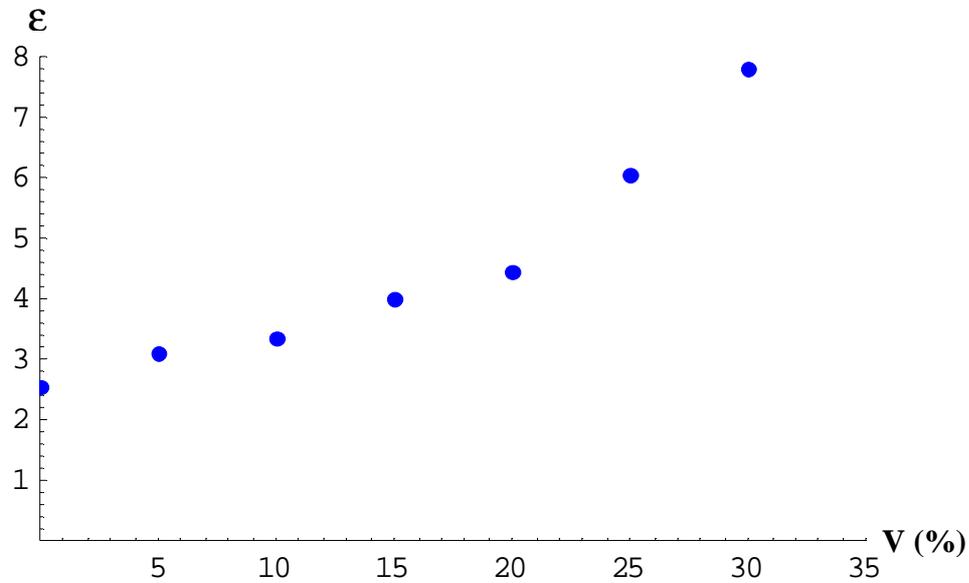
D'après la représentation graphique de la permittivité réelle et la conductivité, nous constatons que la constante diélectrique augmente de façon sigmoïde jusqu'à 15 % où elle change le comportement dont l'augmentation est moins faible par rapport au début, de ce fait le point 15 % est un point d'inflexion ; par contre la conductivité est augmentée graduellement.

### V.2.2Mélange binaire titanate de Baryum et Résine époxyde (RE/TBA) :

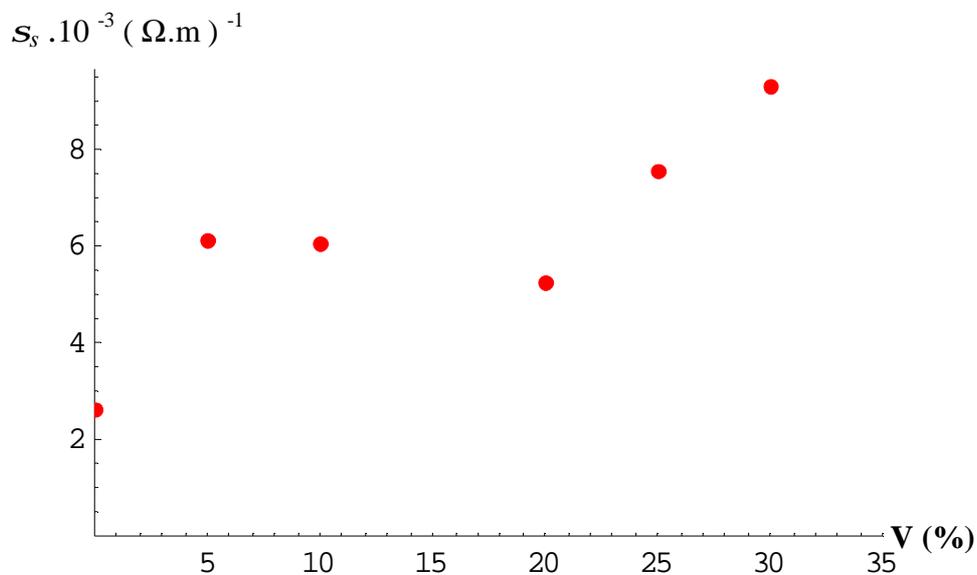
On présente dans la table 2 les valeurs numériques de la constante statique  $\epsilon_s$  et la conductivité  $S_y$  telle que leur représentation graphique aussi.

T de baryum (%)	$\epsilon_s$	$S_y \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$
0	2.567	2.661
5	3.095	6.127
10	3.356	6.057
20	4.436	5.251
25	6.031	7.532
30	7.815	9.323

**TableauV.2 :** la variation de la permittivité réelle et la conductivité du (RE/TBA) en fonction de la fraction volumique BaTiO<sub>3</sub>.



**FigureV.3:** la variation de la permittivité réelle du (RE/TBA) en fonction de la fraction volumique BaTiO<sub>3</sub>.



**FigureV.4:** la variation de la conductivité du (RE/TBA) en fonction de la fraction volumique BaTiO<sub>3</sub>.

Pour la représentation graphique de la constante diélectrique, on peut dire que sa variation en concentration de la charge est composé en deux manières qui sont linéaires de manière de 0 à 17 % a une pente de 0.079 et de 17 à 30 % a une pente de 0.4072 qui se interprété également dans la conductivité de laquelle le minimum statique est observé pour une concentration de 17%, et on remarque dans la figure, que dans ce point une évolution où un changement radical par rapport au précédant comportement, un changement quasi-percolation

### V.2.3.La simulation :

D'après les courbes des composites binaires nous voulons voir leurs comportements en les vérifiant par deux lois de mélanges sont :

La loi de BOTTREAU et la loi de LICHTENECKER.

Comme on a vu dans le chapitre 3 l'application de la loi de Bottreau ; Ces paramètres de la loi de modélisation demandent beaucoup de traçage des courbes et en même temps beaucoup de calculs malgré sa simplicité, à cette raison on va appliquer une méthode d'optimisation utilisée fréquemment dans les problèmes compliqués chimiques en utilisant la méthode de Nelder-Mead.

Pour optimiser la loi de Bottreau dont déterminer ces paramètres, nous avons cherché le minimum de la solution d'une des sept équations des points expérimentaux  $y=fct(\alpha; V_i; \epsilon_2)$  et les autres équations déterminent le domaine d'utilisation (jouent le rôle des conditions à vérifier) et la même chose pour les intervalles de la variation de ( $\alpha$  et  $\epsilon_2$ ).

La détermination de ces paramètres est faite par un programme réalisé sous logiciel mathematica V5.0, suivant la loi de la modélisation de Bottreau.

Et voici les paramètres qu'on a trouvés par cette méthode :

La charge	Alpha	$V_i$	Eps2 ( $\epsilon_2$ )
BaTiO <sub>3</sub>	0.991	0.495	70.10
CaTiO <sub>3</sub>	0.98	0.506	79.05

**Tableau V.3 :** détermination des paramètres de Bottreau par la méthode d'optimisation.

Ces valeurs ne sont pas vraiment significatives de la même manière que les expriment expérimentalement, sont dépend de l'erreur et le domaine que les détermine par l'algorithme précédent.

Cette méthode d'optimisation est utilisée aussi pour déterminer la valeur de la constante diélectrique dans la loi de Lichtenecker.

La loi de Lichtenecker est un cas particulier de la loi de modélisation de Bottreau dont ( $\alpha = 1; V_i = 0.5$ ) donc :

$$e_{eff} = e_1^{v_1} * e_2^{v_2} \quad (V.3)$$

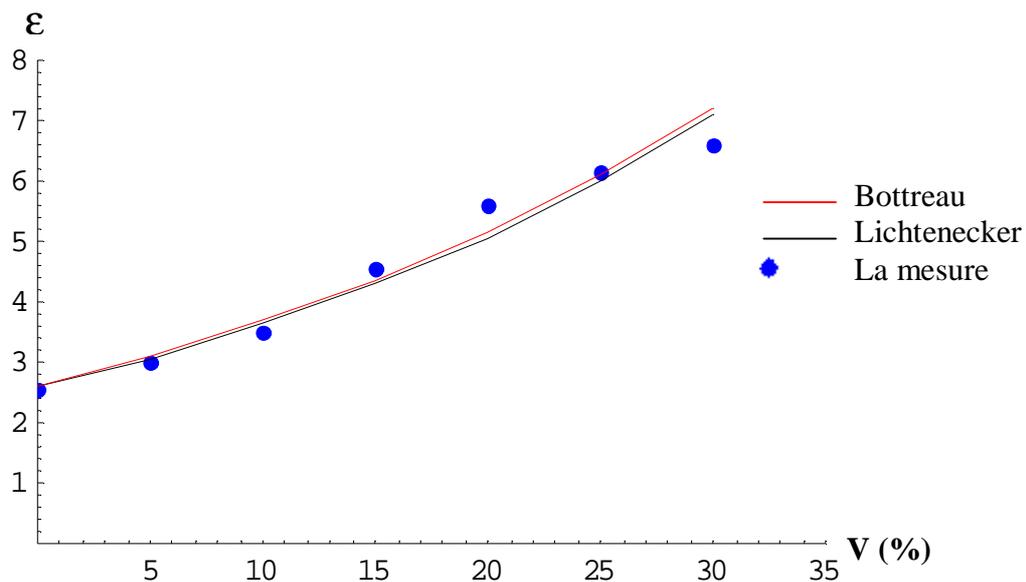
Où  $v_1$  et  $v_2$  sont les fractions volumiques des constituants.

La charge	$\alpha$	$V_i$	Eps2 ( $\epsilon_2$ )
BaTiO <sub>3</sub>	1	0.5	73.28
CaTiO <sub>3</sub>	1	0.5	79.50

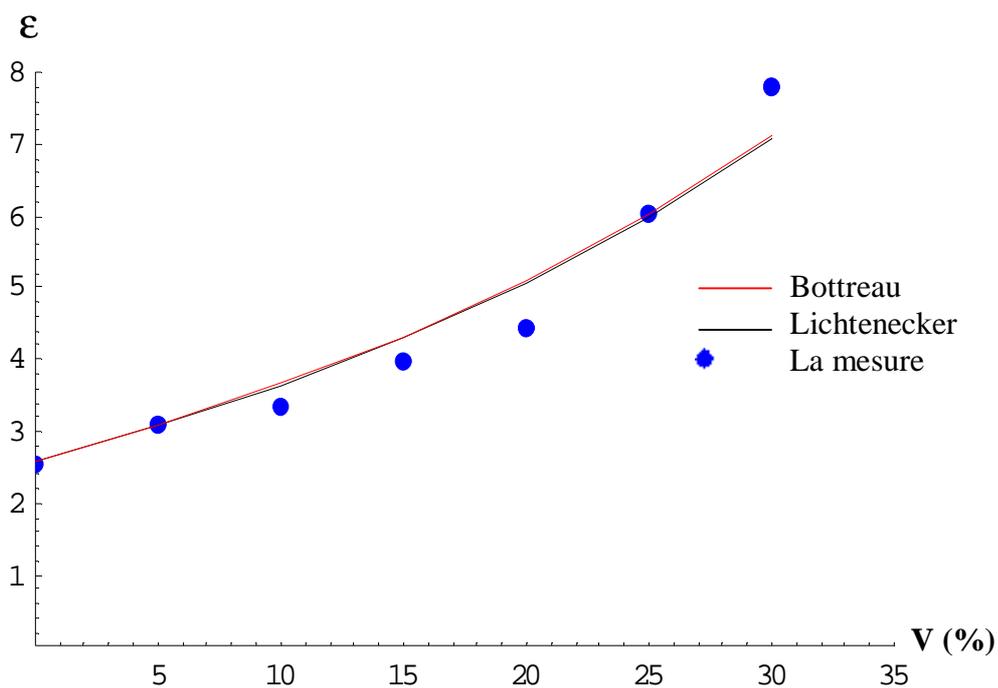
**Tableau V.4 :** détermination des paramètres de Lichtenecker par la méthode d'optimisation.

#### V.2.4. comparaison des résultats :

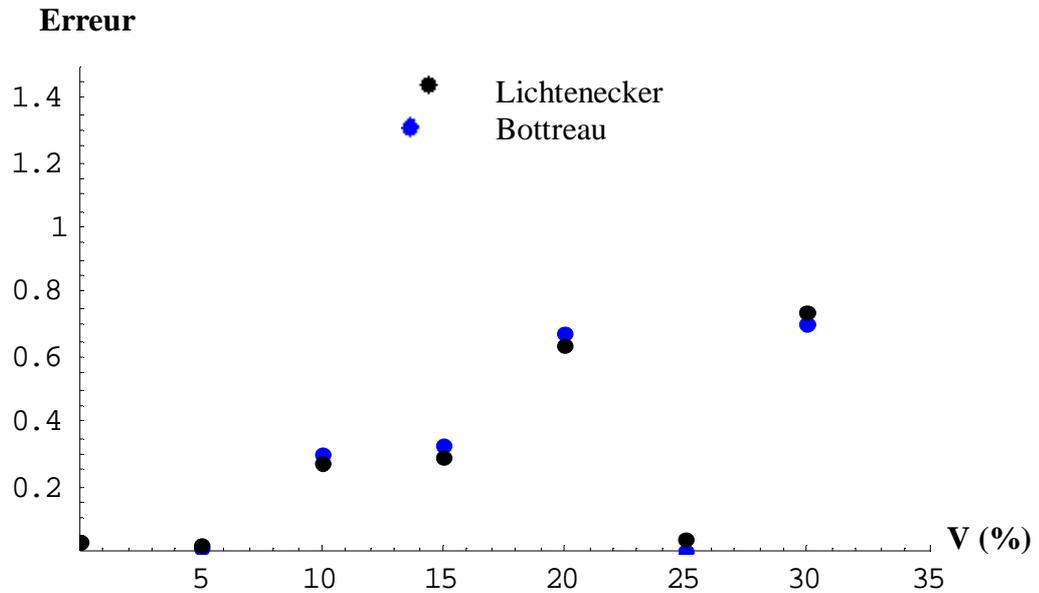
Nous avons assemblé les résultats expérimentaux et les résultats de simulation la loi de Bottreau et Lichtenecker afin de faciliter la compréhension entre les deux lois.



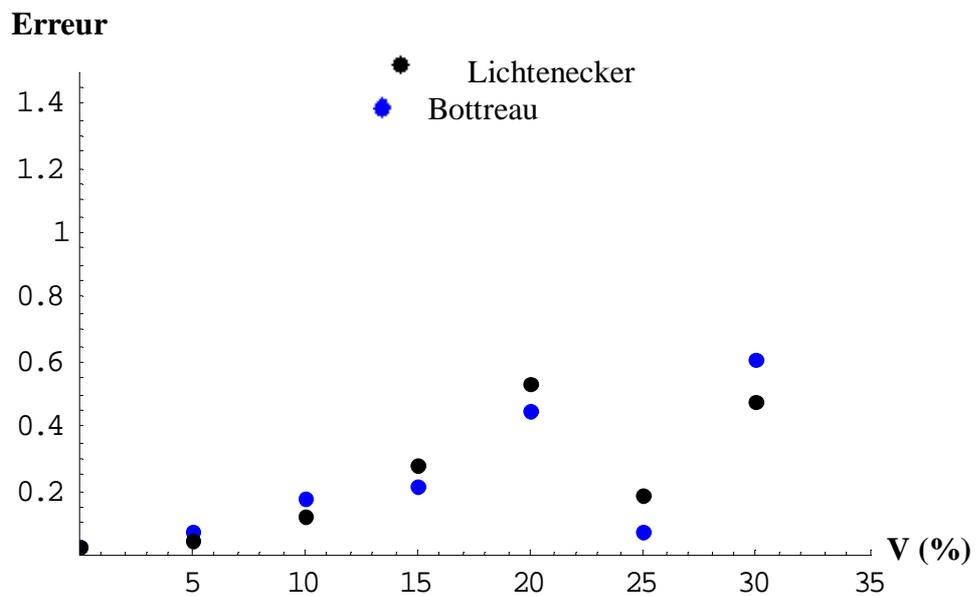
FigureV.5 : comparaison les résultats expérimentaux et la simulation pour (RE/TCA).



FigureV.6: comparaison les résultats expérimentaux et la simulation pour (RE/TBA).



**FigureV.7** : comparaison de l'erreur de la simulation par rapport aux résultats expérimentaux pour (RE/TCA).



**FigureV.8** : comparaison de l'erreur de la simulation par rapport aux résultats expérimentaux pour (RE/TBA).

Dont la valeur moyenne est :

Constituant	Bottreau	Lichtenecker
RE/ BaTiO <sub>3</sub>	0.29	0.294
RE/CaTiO <sub>3</sub>	0.231	0.24

**Tableau V.5** : représentation la valeur moyenne de l'erreur de la simulation par rapport aux résultats expérimentaux.

On peut tirer les observations suivantes :

- Les courbes de simulation de Bottreau et Lichtenecker sont des courbes genres exponentiels.
- Les modèles de Bottreau et Lichtenecker confirme qu'ils suivent bien les résultats, il suffit de déterminer ces paramètres pour bien résoudre le problème.
- D'après les courbes de l'erreur de la loi Bottreau et la loi et Lichtenecker, les paramètres de Bottreau donnent une grande précision pour suivre les résultats expérimentaux ; même si n'a pas une grande différence entre eux.

Après qu'on a déterminé le modèle qu'on veut l'utiliser, on peut faire encadrer tous les points qu'on a pas déterminé ainsi les valeurs compris entre les valeurs des fractions volumiques d'un côté et les valeurs de la permittivité de chaque constituant d'un autre côté .

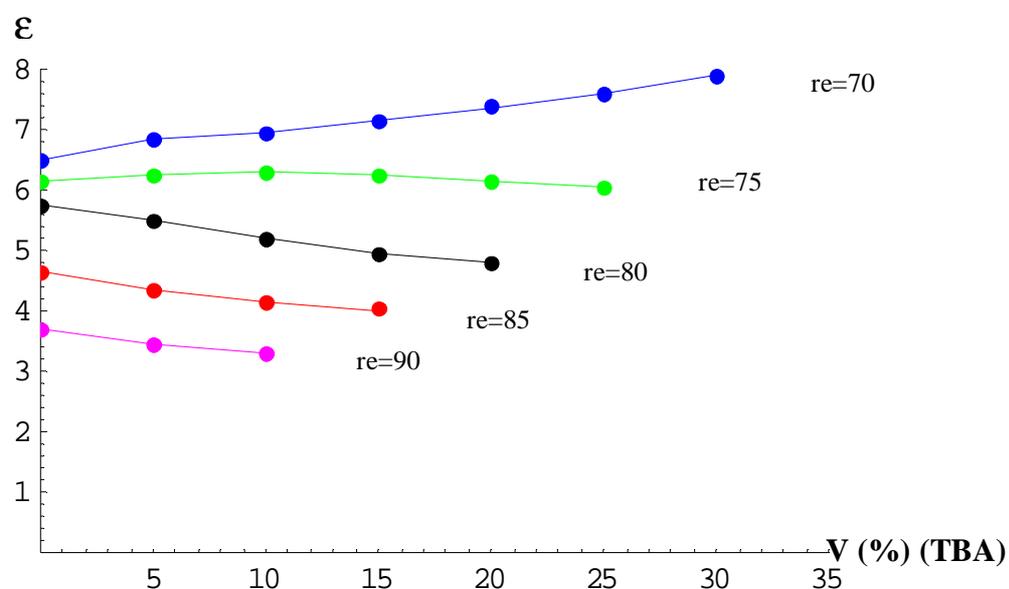
### V.3 Mélanges ternaires :

L'étude sur les mélanges ternaires la résine époxyde, titanate de Baryum et titanate de Calcium (RBC) à permet d'analyser la variation de la constante diélectrique statique du composite en fonction de la fraction volumique de la charge (titanate de Baryum et titanate de Calcium). Dans la table 4 nous montrons les résultats expérimentaux qu'on a trouvés à partir de la résolution inverse de l'équation transcendante du coefficient de réflexion ; et sont représentés par la fixation de la résine et nous varions (TCA) et (TBA).

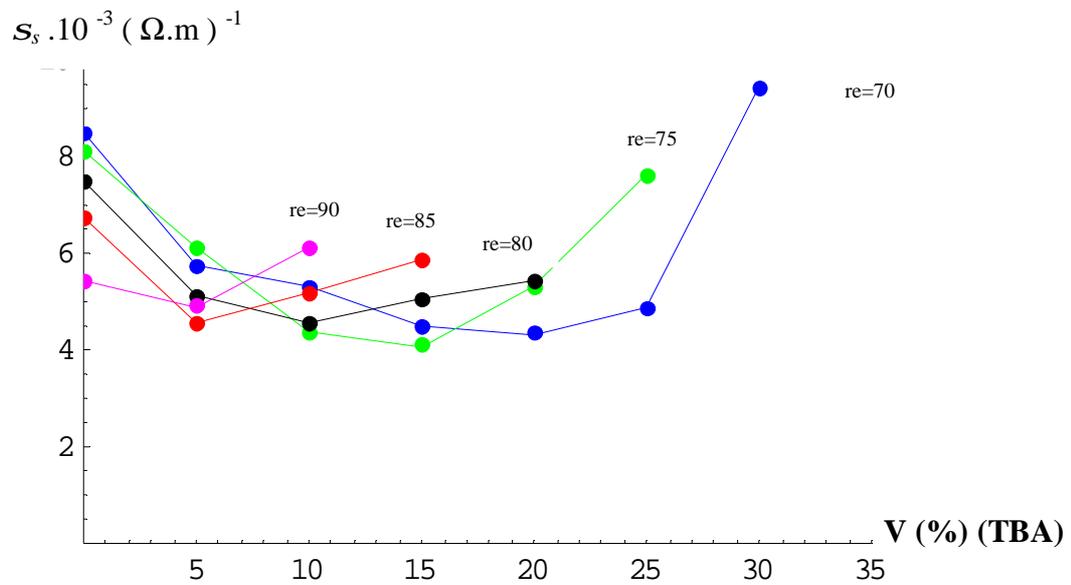
RE	TCA	TBA	$\epsilon_s$	$s_s \cdot 10^{-3} (\Omega \cdot m)^{-1}$
70	30	00	6.61	8.49
70	25	05	6.78	5.76
70	20	10	6.94	5.29
70	15	15	7.15	4.5
70	10	20	7.37	4.35
70	05	25	7.62	4.9
70	00	30	7.9	9.45
75	25	00	6.19	8.11
75	20	05	6.24	6.13
75	15	10	6.27	4.40
75	10	15	6.23	4.10

75	05	20	6.17	5.34
75	00	25	6.03	7.60
80	20	00	5.6	7.5
80	15	05	5.54	5.15
80	10	10	5.29	4.56
80	05	15	5.06	5.06
80	00	20	4.58	5.45
85	15	00	4.57	6.74
85	10	05	4.50	4.58
85	05	10	4.30	5.19
85	00	15	3.75	5.87
90	10	00	3.63	5.45
90	05	05	3.56	4.91
90	00	10	3.21	6.11

**TableauV.6 :** la variation de la permittivité réelle et la conductivité du (RE/TCA/TBA) en fonction de la fraction volumique de mélange.



**FigureV.9:** la variation de la permittivité réelle du (RE/TCA/TBA) en fonction de la fraction volumique (TBA)



**Figure V.10:** la variation de la conductivité du (RE/TCA/TBA) en fonction de la fraction volumique (TBA)

Pour la composition ternaire on a fixé la fraction volumique de la résine et on fait varier la fraction volumique des deux titanates ; nous remarquons que la permittivité réelle du composite augmente avec l'augmentation de la fraction volumique de titanate de calcium et la diminution avec l'augmentation de la fraction volumique de titanate de baryum ça pour tous les composites et nous pensons que ceci est due principalement à l'écart entre l'ordre de la permittivité des deux titanates (TBA=73,28 et TCA=79,50) ; sauf pour le mélange où la résine est de 70% dont l'augmentation est avec l'augmentation de titanate de baryum ainsi pour 75% mais jusqu'à 10% de (TBA) après sera le même comportement comme les autres mélanges .

Le comportement de la conductivité du composite se commence par une diminution avec l'augmentation de la fraction volumique de (TBA) et la diminution de la fraction volumique de (TCA) jusqu'à les fractions volumique suivants (RE/TCA/TBA) : 70.10.20 ; 75.15.15 ; 80.20.10 ; 85.25.5 ; 90.25.5 où la conductivité augmente brusquement Ce fait mit en évidence l'influence du titanate de baryum dans le processus de conduction électrique à basse fréquence car il crée des connexions où devient des amas conducteurs localisé et après une fraction volumique bien déterminé dans notre étude ; cette fraction est critique (5 pour RE=90et 85,10 pour 80,15 pour 75 et 25 pour 70%) devient les amas conducteur continues. Autrement la variation de la conductivité varie suivant une fonction presque carrée  $(S - S_c)^2$  à partir de  $V = V_c$ . Ce phénomène a une influence inverse sur le comportement de la constante diélectrique dans le même point.

$V_c$  : est la fraction volumique critique.

Les minimums de la conductivité se trouvent autour de  $4.40 \times 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$  pour les différentes pourcentages de la résine époxyde.

### V.3.1.Simulation des lois de mélanges :

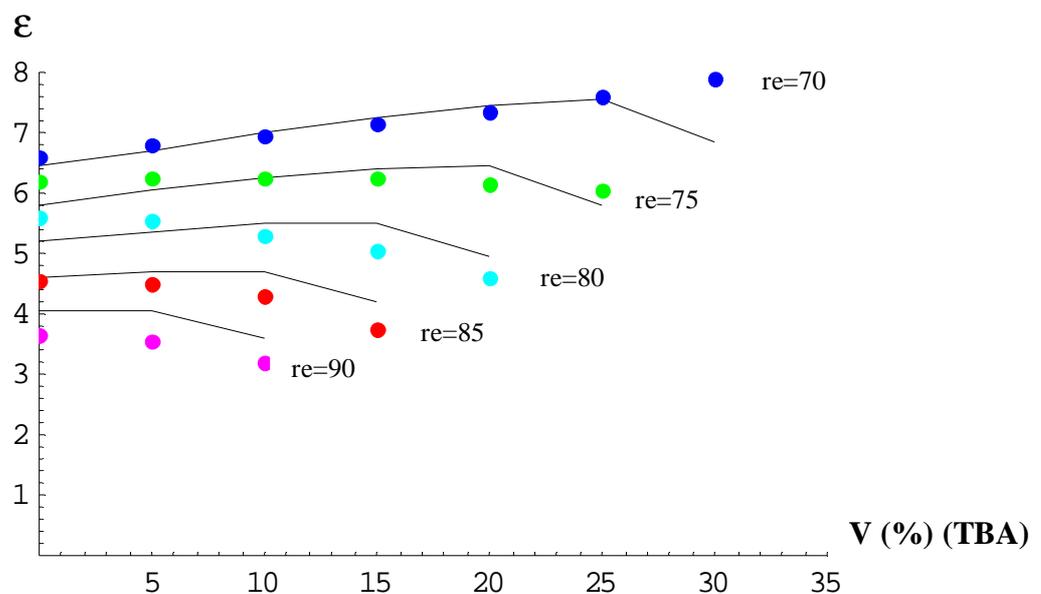
Afin de bien comprendre le comportement de ce composite ternaire (RE/TCA/TBA), nous le simulons par les lois de mélange Lichetenecker et Bottreau, pour la loi de Bottreau on a appliqué le même algorithme la méthode d'optimisation de Nelder-Mead afin de déterminer ces paramètres et on a suivi les mêmes étapes de la généralisation de la loi de Bottreau à N phases où N=3 dans notre étude, au début on a considéré qu'on un mélange binaire composé de (RE/TCA) qui supposera homogène ensuite en ré applique la formule de la loi pour un mélange binaire aussi (RE/TCA)/TBA afin de confirmer la validité la loi de Bottreau pour les valeurs de SDT pour le composite :

Résine ( $\epsilon_1$ ),  $\text{CaTiO}_3$  ( $\epsilon_2$ ) et  $\text{BaTiO}_3$  ( $\epsilon_3$ ) nous avons obtenu :

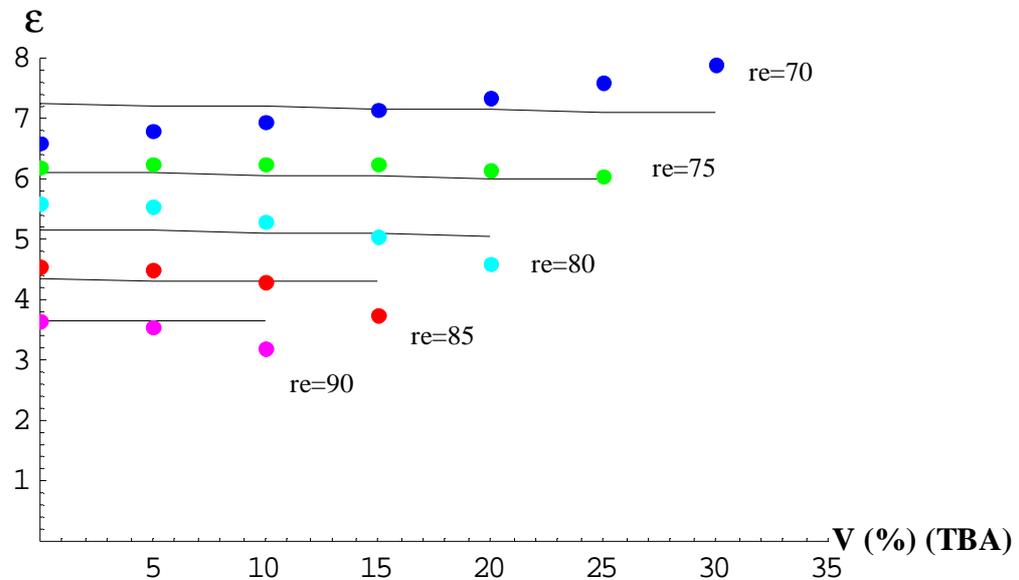
$$\epsilon_1=2.6; \quad \epsilon_2=79.50; \quad \epsilon_3=73.28;$$

$$V_{i1}=0.506; \quad \alpha_1=0.98; \quad V_{i2}=0.668; \quad \alpha_2 = 0.6583;$$

Les résultats de confrontation entre les mesures et la simulation des principales lois de mélange sont présentés sur les figures suivantes :



**Figure V.11** : confrontation les résultats expérimentaux et la simulation par la loi de Bottreau pour (RE/TCA/TBA) en fonction de la fraction volumique (TBA).



**Figure V.12** : confrontation les résultats expérimentaux et la simulation par la loi de Lichtenecker pour (RE/TCA/TBA) en fonction de la fraction volumique (TBA).

Au début qu'on a simulé sur un composite binaire on n'a pas trouvé une différence entre la loi de Lichtenecker et Bottreau par contre au composite ternaire la différence est claire par rapport au composite binaire et on peut dire qu'il y a un bon accord entre les résultats expérimentaux et la simulation par la loi de Bottreau et ça grâce à la variation des paramètres qui donnent une possibilité d'avoir une adéquation ; par contre la loi de Lichtenecker nous donne moins de précision par rapport au Bottreau ainsi un mauvais accord pour RE=70 où il y a un comportement différent avec les résultats expérimentaux.

Pour la loi de Bottreau on peut voir que la permittivité augmente pour tous les fractions volumiques jusqu'au point où sera diminué, en parallèle la conductivité à ce point augmente dont le matériau est changé de l'état (d'isolant au conducteur) ce changement peut s'expliquer par la théorie de percolation et on peut constater aussi qu'à la concentration du TBA à 30 % un mauvais accord par rapport au résultat expérimental ce que veut dire qu'on ne peut pas dépasser 25%.

D'après les références qu'on a consulté [18 ;63] pour l'utilisation de la loi de Bottreau qui était la meilleure approche par rapport aux autres approches même si pour dans notre étude (mélange binaire surtout) ; et en plus est une généralisation de la loi de Lichtenecker nous voulons savoir la différence entre les deux où le rôle d'amélioration ; ensuite on va créer un modèle compliqué non mathématique pour bien comprendre l'influence des paramètres où des propriétés des matériaux sur les différents modèles mathématiques.

### V.3.2.La modélisation par réseau neurone :

Dans les deux modèles mathématiques précédents de Litchenecker et Bottreau montrent que chacun a une identification du comportement des matériaux de sa façon et l'influence des paramètres des composites, donc notre système d'identification est un réseau de neurones type MLP dont les entrées sont les paramètres choisis comme suit :

- la permittivité de matériaux ( $\text{CaTiO}_3$ ) et sa fraction volumique ( $e_2$  ;  $v_1$ ).
- la permittivité de matériaux ( $\text{BaTiO}_3$ ) et sa fraction volumique ( $e_3$  ;  $v_2$ ).
- la permittivité de la résine et sa fraction volumique ( $e_1$  ;  $1-v_1-v_2$ ).
- la sortie : est la permittivité effective du composite ( $e_{eff}$ ).

#### V.3.2.1.L'apprentissage des réseaux de neurones :

##### Préparation des couples d'exemples :

L'ensemble de couples d'exemples utilisés pour l'apprentissage d'un réseau constitue un espace d'apprentissage. Dans cet espace chacun des couples étant constitué d'un vecteur d'entrée : la permittivité de la résine en fonction de  $(1-v_2-v_1)$ , la permittivité de titanate de baryum en fonction de  $v_2$  et titanate de calcium en fonction de  $v_1$  contenant les trente cinq valeurs appliquées aux entrées du réseau et d'un vecteur de sortie : la permittivité effectif contenant les valeurs désirées correspondantes aux sorties. Toutes ces entrées et sorties sont obtenues par l'expérience.

Il est très important que cet ensemble d'apprentissage soit suffisamment riche, il faut qu'il couvre aussi complètement que possible le domaine de fonctionnement désiré pour le réseau et que le nombre d'exemples soit grand devant le nombre de coefficients du réseaux, en effet la tâche consiste à rendre les sorties du réseaux estimées égales aux sorties désirées ou proches.

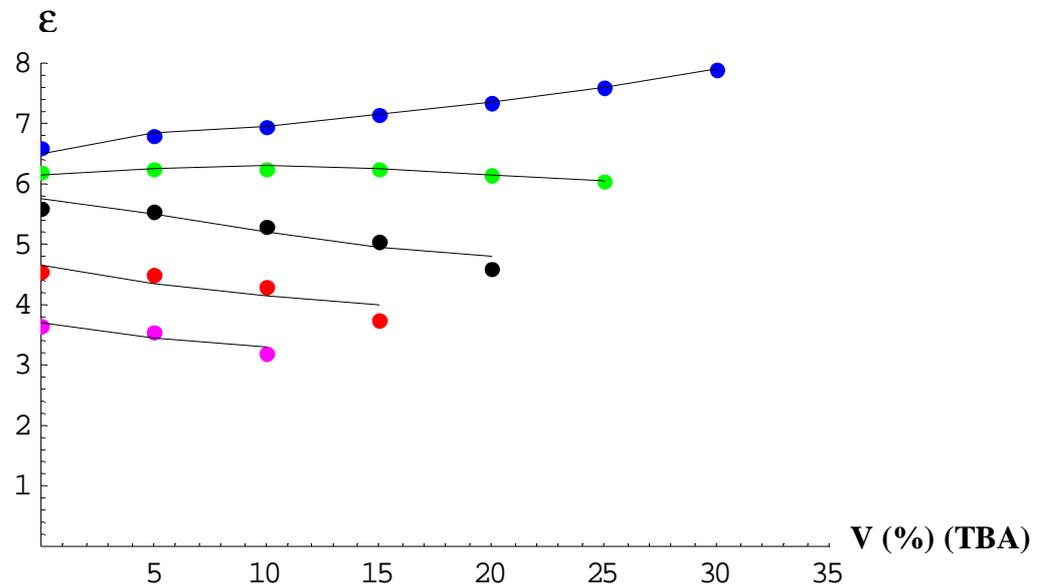
##### V.3.2.1.2Composition de la structure :

Des dizaines d'essais ont été effectués pour trouver le réseau adéquat en changeant le nombre de couches, le nombre d'époques, la fonction d'activation et le nombre de neurones pour chaque couche. Chaque essai nous changeons les entrées d'une façon à simplifier le réseau est relancé pour une nouvelle variable aléatoire de la séquence du générateur fournit par le logiciel Matlab version 6.5 (le principe try and error). La structure finale du réseau retenue est celle qui nous fournit la meilleure performance aux sens des moindres carrés.

Nous avons obtenu après ces nombreux essais et au bout de 5000 époques d'entraînement, une performance inférieure à  $3.37 \cdot 10^{-06}$ .

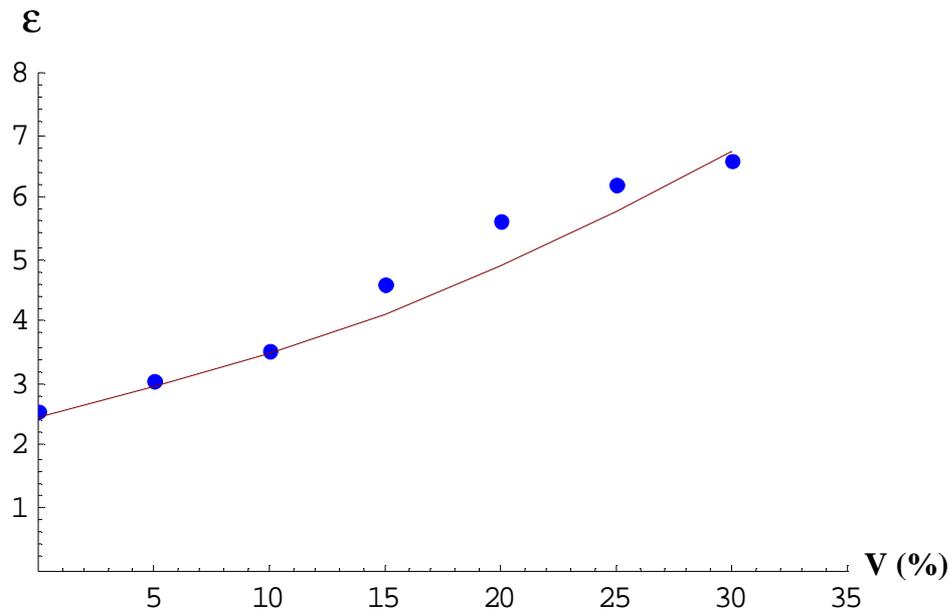
Cette structure est composé de :

- Un vecteur d'entrée constitué de trois paramètres dont  $(e_1^{1-v_1-v_2}; e_2^{v_1}; e_3^{v_2})$
- Sept couches cachées ayant chacune 3 /10/ 10/ 5/ 2 /1 neurones.
- Fonction d'activation est la tangente sigmoïde.
- Un vecteur de sortie contenant les caractéristiques à identifier la permittivité effective réelle du composite une valeur normalisé.

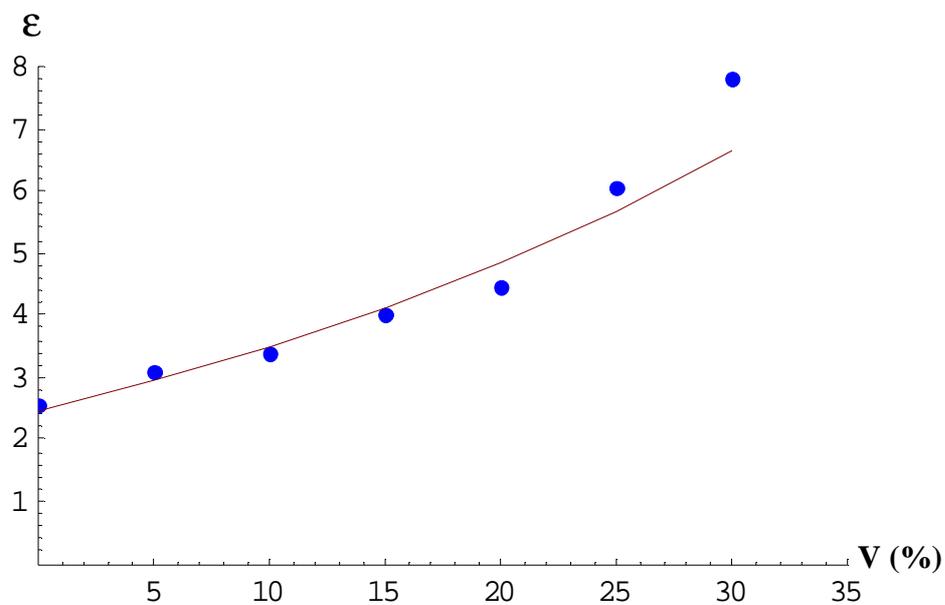


**FigureV.13** : confrontation les résultats expérimentaux et la simulation par la modélisation par réseau neurone pour (RE/TCA/TBA) en fonction de la fraction volumique (TBA).

Après on a appliqué le modèle de neurone sur les résultats du composite binaire cependant on a gardé la même influence du matériau dans le composite au niveau du classement des entrées et nous les représentons graphiquement :



**FigureV.14:** confrontation les résultats expérimentaux et la simulation pour (RE/TCA).



**FigureV.15 :** confrontation les résultats expérimentaux et la simulation pour (RE/TBA).

Nous remarquons qu'il existe un bon accord entre les caractéristiques de la partie réelle de la permittivité effective obtenues par la modélisation et celles mesurées expérimentalement. L'écart très léger observé, peut être dû à la préparation des échantillons. Les courbes (V.11 ; V.13) montrent que le comportement est presque le même par la loi Bottreau.

Notre modèle montre que les lois de mélanges sont basées sur les permittivités des constituants en fonction de leurs fractions volumiques.

#### V.4 Analyse et interprétation :

Si on décompose la loi de Bottreau de la même manière que Lichtenecker où le mélange est binaire on résulte :

$$e_{eff} = e_1^{v1} * e_2^{v2} * A_B \quad (V.4)$$

$A_B$  : est un facteur de forme pour la loi de Bottreau.

$A_B = 1$  dans la loi de Lichtenecker

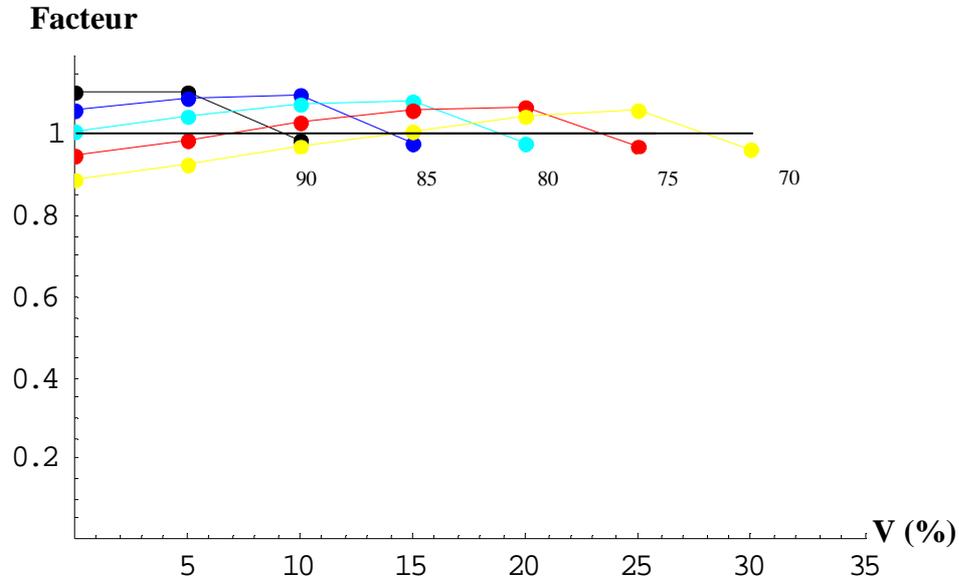
Les inclusions (particules) sont appelées formées, quand au moins deux dimensions transversales diffèrent d'une manière significative [8 ,100], comme c'est le cas des ellipsoïdes, des sphéroïdes allongés ou aplatis aux pôles, des disques ou des fissures.

$$A_B = e_1^X * e_2^Y \quad (V.5)$$

$$Y = \frac{V_1 V_N^a - V_2}{1 + V_N^a} \quad (V.6)$$

$$X = \frac{1 - V_1 - V_1 V_N^a}{1 + V_N^a} \quad (V.7)$$

Ce coefficient est déterminé par les paramètres de Bottreau ( $\alpha$  ;  $V_i$  ;  $\epsilon_1$  ;  $\epsilon_2$ ) on le présente en variant la fraction volumique de titanate de baryum pour voir l'influence de titanate de baryum sur le composite binaire (résine et titanate de Calcium) dont le rôle de la résine est d'assurer la cohésion mécanique entre les grains des charges ; son effet sur la permittivité du composite reste cependant petit.

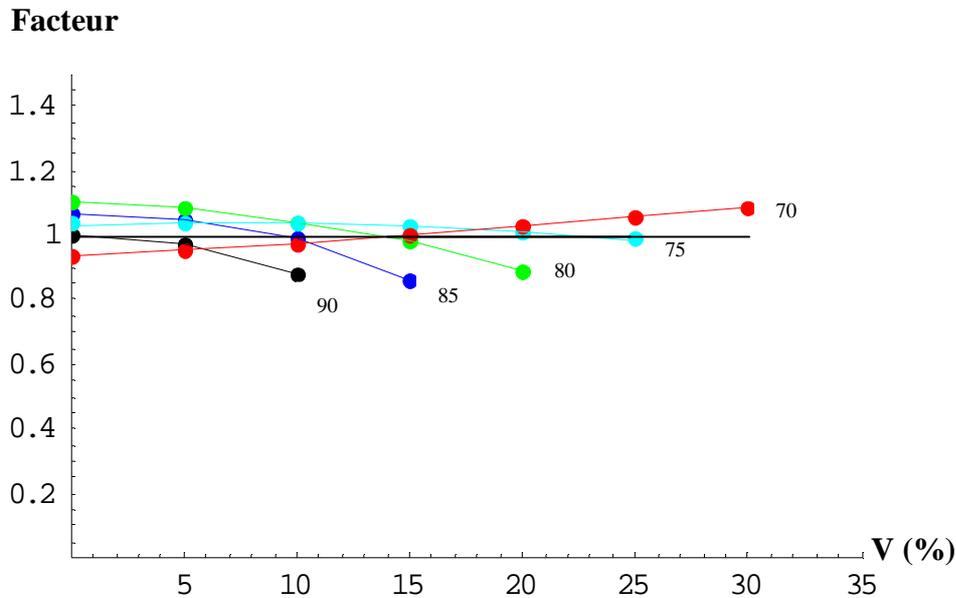


**Figure V.16:** la variation du facteur de forme en fonction de la fraction volumique (TBA) pour la loi de Bottreau dont  $RE=cte$ .

Nous constatons que le comportement est le même par rapport à la variation de la constante diélectrique donc le facteur de forme est un moyen qui destiné la forme du comportement des composites ; et on peut voir aussi que notre modèle a la même forme que la loi de Bottreau en plus il passe presque sur tous les point expérimentaux donc on peut crée un modèle [64] qui est mathématique ressemble à celle de Bottreau où le facteur de forme permet l'accord entre la valeur théorique et les résultats expérimentaux :

$$e_{eff} = A(e_1^{1-v_1-v_2} * e_2^{v_1} * e_3^{v_2}) \quad (V.8)$$

A : est le facteur de forme qui permet l'accord entre les résultats théoriques et expérimentaux.



**Figure V.17:** la variation du facteur de forme en fonction de la fraction volumique (TBA) pour les résultats réels dont RE=cte.

Ce qui concerne le composite binaire nous constatons que la modélisation et les deux lois sont pareil au niveau de facteur de forme qui vaut l'unité dans la plupart des points et il faut constater que pour une grande concentration des titanates (TBA et TCA) dans le mélange apparaît des notamment moyennes déviations entre la valeur théorique et l'expérimentale où le facteur de forme varie entre 0.98 à 1.03 pour (RE/TBA) et entre 0.85 à 1.08 pour (RE/TCA) au concentration 20 et 30%.

Au contraire pour le composite ternaire le facteur de forme est pris plusieurs valeurs comprises entre 0.85 à 1.5 pour la modélisation et la loi de Bottreau. Dans la modélisation le facteur de forme commence à augmenter avec l'augmentation de la concentration de TBA jusqu'au point  $V_c$  où sera diminuer sauf pour RE=70 dont le facteur augmente graduellement.

Pour que le modèle mathématique sera valable à utiliser, il faut que le facteur de forme soit en question pour expliquer la dépolarisation dans le composite donc il s'agit de trouver la forme qui peut être attribuée aux inclusions d'un système à trois phases, en se basant sur ses caractéristiques diélectriques effectives et la forme des agrégats ainsi leurs fractions volumiques.

## V.5 Conclusion :

Nous avons constaté que :

L'application des approches théoriques (la loi de Bottreau et Lichetenecker) aux composites binaires suivent bien les résultats expérimentaux par contre au composite ternaire, la loi de Lichetenecker trouve quelque difficulté à suivre l'expérimental.

L'utilisation de ces lois permet de remédier à certaines limitations posées par les lois de mélanges classiques, et nous avons confirmé que la loi de Lichetenecker a été utilisée comme un point de départ par Bottreau et dont le but de fournir une nouvelle approche.

Le facteur de forme est un moyen qui était introduit dans la loi de Bottreau afin de permet l'accord entre l'expérimentale et la théorie où il est intégré automatiquement au fraction volumique dans la loi de Lichetenecker.

Il est difficile de modéliser de façon précise la forme des échantillons expérimentaux ;cependant, la tentative que nous avons mené pour modéliser ce problème complexe et prédire la forme géométrique des particules dans le composite, en rapprochant les mesures expérimentales et les résultats de simulations numériques utilisant le réseau de neurone à sept couches cachés et à cette raison on a pas donné la formule de la constante diélectrique en intégrant le facteur de forme dans le modèle mathématique équation (V.8) [100].

## CONCLUSION GENERALE

Pour conclure ce mémoire, nous rappelons que l'objectif était une étude sur le comportement des matériaux diélectriques à fréquence fixe et la simulation des lois de mélanges tel que la loi de Bottreau et Lichtenecker pour montrer le comportement des composites polyesters chargés en titanate  $\text{BaTiO}_3$ ,  $\text{CaTiO}_3$  qui ont une structure pérovskite

Nous avons pu appliqué la loi de modélisation de Bottreau sur des mélanges binaires ensuite sur un mélange ternaire pour la généralisation à N phases. Cette loi permet avec un nombre de mesure en fonction de la fraction volumique de la charge d'illustrer et de prédire l'ensemble du comportement diélectrique du composite à caractériser et par conséquent la détermination des permittivités des charges inaccessibles à la mesure. A la fin nous avons montré que la loi de modélisation de Bottreau qui est une loi de probabilité encadre bien et de manière générale et précise le comportement des composites ternaires.

Les résultats de nos simulations de la modélisation par réseau neurone appliqués sur les différentes concentrations à une fréquence 500 MHz obtenue par SDT, sont en bon accord avec ceux de nos mesures expérimentales effectuées sur des modèles simples de matériaux composites. Nous avons montré que la modélisation permet de calculer de manière précise la permittivité effective des matériaux composites. La modélisation constitue un outil appréciable pour la détermination des caractéristiques diélectriques des matériaux composites. Elle permet une économie de moyens et de temps dans la conception et la prédiction des caractéristiques des hétéro-structures.

Nous avons constaté que les composites polyesters chargés par du  $\text{BaTiO}_3$  présentent un phénomène de quasi-percolation pour le binaire et un phénomène de percolation pur pour le ternaire où la concentration de  $\text{BaTiO}_3$  supérieur à la fraction volumique  $V_c$  ainsi ces résultats ont montré aussi un comportement complètement différent à celui des composites binaires où il n'y a qu'un seul type de titanate.

Enfin nous avons montré que le facteur de forme est le moyen qui attribut le comportement des matériaux par contre les lois de mélanges ne peuvent traduire ce facteur d'une manière précise, parce qu'elles supposent une certaine microstructure limitée des inclusions sphériques. La considération des lois est que les champs électriques créent par les particules s'annulent à l'intérieur de la cavité donc les dipôles permanents sont annulés, il est donc nécessaire de développé d'autre méthodes permettent de traitement des matériaux qui ont des inclusions de forme géométrique plus complexe par rapport au sphériques.

## REFERENCES.

- [1] H. Gie, J. P. Sarment, Electromagnetisme, Vol 2, Collection De Sciences Physiques, Lavoisier (1985)
- [2] C. Calberg, S. Blacher, F. Gubbels, F. Brouers, R. Deltour, R. Jérôme, Electrical And Dielectric Properties Of Carbon Black Filled Co-Continuous Two-Phase Polymer Blends, J. Phys. D:Appl. Phys. 32 (1999), Pp.1517-1525.
- [3] T. Zakri, Contribution A L'étude Des Propriétés Diélectrique De Matériaux Poreux En Vue De L'estimation De Leur Teneur En Eau : Modèle De Mélange Et Résultats Expérimentaux, Grenoble (1997)
- [4] In-Gann Chen, W.B. Johnson, Alternating-Current Electrical Properties Of Random Metal-Insulator Composites, Journal Of Materials Science 26, (1991), Pp 1565-1567.
- [5] M.J. Abdullah, D.K. Das-Gupta, Electrical Properties Of Ceramic/Polymer Composites, Ieee Trans. Electr. Insul. 25 (3), (June 1990), Pp. 605-610.
- [6] G. Fournet, Electromagnetisme, Masson, Paris, New York, Barcelone Milan (1979)
- [7] M. Helier, Techniques Micro Ondes, Structures De Guidage, Dispositifs Passifs Et Tubes Micro Ondes Technosup, 2001.
- [8] A.V. Vorst, D. Vanhoenacher- Janvier, Bases De L'ingenierie Micro Onde De Boeck & Larcier S.A. 1996.
- [9] F. Gardiol, Hyperfréquences, Traite D'électricité, Volume Xiii, 1987
- [10] R. Badoual, Les Micro Ondes, Tome 1 Et 2, Masson 92, 95.
- [11] A.V. Vorst, Electromagnetisme Transmission Propagation Et Rayonnement 2<sup>ème</sup> Edition, Cabay, Braire-Editeur, Louvain - La Neuve (1985)
- [12] A. Priou, Dielectric Properties Heterogeneous Materials, Pier 6, Progress In Electromagnetics Research, Elsevier 1992.
- [13] G. Vicq, Contribution A L'étude, Dans Les Bandes S Et X, Des Permittivites Des Melanges De Poudre Cristallines Et De Liant, These Bordeaux (1968).
- [14] Microwave Characterisation Of Applied Polymers, Journal Of Applied Physics, Volume 89, 15 April 2001.
- [15] S. Baazizi, Caracterisation Dielectrique Des Materiaux Solides Par Spectroscopie Frequentielle En Hyperfréquences, Application Aux Polymers Composites A Charges Conductrices These De Magister Ufas (1996)
- [16] T. Zakri, These De Doctorat De L'institut National Polytechnique De Grenoble, 1997.
- [17] A. Toumanari; B. Er-Raha; L. Lifsal, D Khatib, W. Kinase; Calcul De La Polarisation Spontanee Dans Les Phases Ferroelectriques De Batio3 ; C.R Acad .Sci .Paris ; T.2, Serie Iv, P.781-786, 2001.
- [18] N ; Bouzit .These De Doctorat : Caracterisation Dielectrique De Materiaux Heterogene Par Spectroscopie Temporelle : Application A L'étude De Composite Polyesters Charges Par Des Titanates. Universite Ufas 2002.
- [19] A. M. Nicolson Et G. F. Ross, Ieee Trans. Instrum. Meas., Im-19, 377, N° 4, (1970).
- [20] H. W. Loeb, G. M. Young, P. A. Quickenden Et A. Sugget, J. Phys. Chem., 75, 1155, (1971).
- [21] M.A. Hilhorst, New Dielectric Mixture Equation, Soil Science Society Of America Journal, 2000.
- [22] A.M. Bottreau, Caracterisation Electromagnetique De Quelques Composites Polymere Carbone 2<sup>ème</sup> Partie: Modelisation, Annales De I Universite Blaise Pascal, 1997
- [23] A. R. Von Hippel, "Les Dielectriques Et Leurs Applications", Dunod Paris (1961).

- [24] A. Balana, Modelisation Des Propriete Dielectriques De Milieu Heterogene, J .Phys. Iiii France,1994.
- [25] N .E .Frost, Effect Of Fillers On The Dielectric Properties Of Polymers, International Symposium On Electrical Insulation, 1996.
- [26] M.Takencki , Experimental On The Effective Dielectric Constant Heterogeneous Media ,Proceedings Of The 3<sup>rd</sup> International Conferences On Properties And Application Of Dielectric,1991.
- [27] S.Berthier,Anistropic Effective Medium Theories, J.Phys I France ,2000.
- [28] Laudebat ; Approche Des Phenomenes De Relaxation Dielectrique Par Realisation Diffusive ; 6<sup>eme</sup> Conferences Des Jeunes Chercheurs En Genie Electrique 2003 ;5-6 Juin Saint-Nazaire.
- [29] T. A. Whittingham, J. Phys. Chem., 74, 1824, (1970).
- [30] R.C. Singleton, Ieee Trans. Audio And Electroacoustics, Au - 17, 2, 166, (1969).
- [31] R. H. Cole, Ann. Rev. Phys. Chem., 28, 283, (1977).
- [32] A. M. Bottreau, Y. Dutuit Et J. Moreau, J. Chem. Phys., 66, 3331, (1977).
- [33] R. H. Cole, J. Phys. Chem., 79, 93, (1975).
- [34] R. H. Cole, J. Phys. Chem., 79, 1469, (1975).
- [35] R. H. Cole, Ieee Trans. Instrum. Meas., Im-25, 371, (1976).
- [36] W. L. Gans, Ecole D'ete Du Tregor, Lannion, (1978).
- [37] D.Hamzaoui Etude Par Spectroscopie En Domaine Frequentiel De L'evolution De La Permittivite Complexe En Fonction De La Charge Et La Frequence ,Application Au Polyster Charge Par Les Ceramiques : Batio3 Et Srtio3 , Memoire De Magister ; Ufas (1996).
- [38] M. J. C. Van Gemert, These D'etat Presentee A L'universite De Leiden (Hollande), (1974).
- [39] Y. Dutuit, These D'etat Presentee A L'universite De Bordeaux, (1980).
- [40] Numerical Optimisation Nelder-Mead Methods (([Http://Vig.Prenhall.Com/](http://Vig.Prenhall.Com/)))
- [41] H. F. Kay, P.C. Bailey, Acta Cryst, 10, 218-226, (1957).
- [42] H. J. Koopmans, G.M. Van De Velde, P.J. Gelling, Acta Cryst, C39, 1323-1325, (1983).
- [43] S. Sasaki, C. T. Prewitt, J. D. Bass, W. A. Schulze. Acta Cryst. C43, 1668-1674 (1987).
- [44] R. H. Buttner, E. N. Maslen, Acta Cryst. B48, 764-649 (1992).
- [45] G. Aubert, Electromagnetisme, Ed. Bordas, Paris.
- [46] T. S. Clarkson Et G. Williams, Chem. Phys. Lett., 34, 461, (1975).
- [47] Y.Rao, Dielectric Constant For Polymer Composites Based On Effective Medium Theory Ieee Transaction On Components And Packaging Technologies, 2000.
- [48] A.G.Gorriti, Permittivity Measurements And Effective Medium Approximation Consideration, 10th International Conference On Ground Penetrating Radar 2004.
- [49] K.Wakino ,Anew Proposal On Mixing Rule Of Dielectric Constant Of Mixture ,Ieee Transaction Of Geosience And Remote Sensing ,1995.
- [50] A.Sihvola;Studies Of Mixingformulate Un The Complex Plane,,Ieee Transaction Of Geosience And Remote Sensing ,1991.
- [51]E.Leroy, These De Doctorat, Institut Nationale Des Science Appliques De Layon 2000.
- [52] J. W. Cooley, F.W. Tukey, Math. Comput., 19, 297, (1965).
- [53] V.Krahimovski, Complexes Permittivity, Ieee Transaction On Micro Wave Theory An Techniques, 1971.
- [54] T.Hanai, Interfacial Polarisation For Two Phase's Mixtures, Journal Of Molecular Liquid 1962.
- [55] N,Pina ,Phd Thesis De L'universite Pierre Et Mari Curie Paris Vi,2003.
- [56] F, Henry, R .David, Approximation Du Milieu Effectif Generalise N, Conference Et Communication Orale Enscpb Bordeaux I, 1997.

- [57] Y. Rao, C.P. Wong, Self-Consistent Model For Dielectric Constant Prediction Of Polymer Composites, International Symposium On Advanced Packaging Material ;2000.
- [58] M.A. Hilhost, New Dielectric Mixture Equation .Soil Society America Journal, 2000.
- [59] R.H.S. Jansen, Master Thesis, University Of Twente, 1999.
- [60] J. W. Cooley, P.A.W. Lewis, P.D. Welch, J. Sound Vib. 12(3), 315, (1970).
- [61] S.O. Nelson, Measurement And Computation Of Mixture Permittivity, Ieee Transaction On Instrumentation Vo50, 2001
- [62] H. Looyenga, Dielectric Constant Of Heterogeneous Mixture, Physica 31, 1965.
- [63] Fatima. Djerfaf; These Magister: Modelisation Du Comportement Dielectrique Des Materiaux Composites Dans Une Large Bande De Frequence .Application Aux (Polymeres-Carbone)
- [64] N Bouzit, A Benhamouda A/ Merzouki Caracterisation Dielectrique ( ; )Des Materiaux Type Mtio3 Communication Departement D'electronique Fsi, Ufas.
- [65] B. M. Oliver, Hewlett Packard J., 15, 6, (1964).
- [66] Hewlett Packard "Time Domain Reflectometry", Application Note 62, Co, Palo Alto Californie, (1964).
- [67] F. Davis Et H. W. Loeb, Proc. I.E.E.E., 53, 1649, (1965).
- [68] Ecole D'ete Du Tregor, Theorie Et Pratique Des Mesures Temporelles, Lannion, (1978).
- [69] H. Fellner-Feldegg, J. Phys. Chem., 73, 616, (1969).
- [70] A. M. Nicolson, Electron. Lett., 9, 317, (1973).
- [71] H. A. Samulon, Proc. Ire, 39, 175, (1951).
- [72] A. Merzouki, These Presentee A L'universite De Bordeaux I (1992), Et These D'etat Es Sciences Physiques, Constantine (1993).
- [73] A. Boutaudon, These De L'universite De Bordeaux I, Decembre (1996).
- [74] J. Lifermanntheorie Et Applications De La Transformation De Fourier Rapide", Masson Paris, (1977).
- [75] J. L. Pueyo, These De 3<sup>ieme</sup> Cycle Presentee A L'universite De Bordeaux, (1983).
- [76] A. Sugget, J. Phys. E, 8, 327, (1975).
- [77] G. Raoult, "Les Ondes Centimetriques" Ed. Masson Paris (1958).
- [78] H. Fellner-Feldegg Et E. F. Barnett, J. Phys. Chem., 74, 1962, (1970).
- [79] G. A. Brehm Et W. H. Stockmayer, J. Phys. Chem., 77, 1348, (1973).
- [80] W. Cochran, J. Cooley, D. Favin, H. Helms, R. Kaenel, W. Lang, G. Maling, D. Nelson, C. Rader Et P. Welch, Proc. Ieee, 55, 10, (1967).
- [81] M. L. Forman, J. Opt. Soc. Am., 56, 978, (1966).
- [82] M. Depeyrot, "Cours Du Centre D'automatique De L'ecole Nationale Superieure Des Mines De Paris" Rept. E-11, (1968).
- [83] S. Wolfram, Mathematica, Le Systeme Informatique Pour Les Mathematiques, 2<sup>ieme</sup> Ed. Addison - Wesley (France), P:711, (1995).
- [84] G. Aubert, Electromagnetisme, Ed. Bordas, Paris.
- [85] J.A.Reynoldes, J.M.Hough, Formulate For Dielectric Constant Of Mixtures, Physica 1957.
- [86] Amenc, N., Le Sourd, V. (2002) Theorie Du Portefeuille Et Analyse De Sa Performance. Economica, Paris.
- [87] P. Calame, A. Birman, Y. Carmel, D. Gershon, B. Levush, A.A. Sorokin, V.E. Semenov, D. Dadon, L.P. Martin, M. Rosen, A Dielectric Mixing Law For Porous Ceramics Based On Fractal
- [88] M. J. C. Van Gemert Et J. G. De Graan, Appl. Sci. Res., 26, 1, (1972).
- [89] A. H. Clark, P. A. Quickenden Et A. Sugget, J. Chem. Soc. Farad. Trans. II, 70, 1847,
- [90] B. E. Springett Et T. K. Bose, Can. J. Phys., 52, 2463, (1974).
- [91] R. H. Cole, J. Phys. Chem., 78, 1440, (1974).

- [92] M. Garcia Gracia, These D'etat Espagnole Presentee A L'universite De Saragosse, (1996).
- [93] Modelisation Des Grands Systemes Chimiques Decembre 2002 Prentice-Hall Inc. Upper Saddle River, New Jersey, Usa [Http://Vig.Prenhall.Com/](http://Vig.Prenhall.Com/)
- [94] Achelis, S (2002) L'analyse Technique De A A Z. Valor Editions, Hendaye.
- [95] Amenc, N., Bonnet, S., Henry, G., Martellini, L., Weytens, A. (2004) La Gestion Alternative., Economica, Paris.
- [96] Bechu, T., Bertrand, E. (2002) L'analyse Technique (Pratiques Et Methodes), 5<sup>e</sup> Edition, Economica, Paris.
- [97] Chande, T. S. (2001) Beyond Technical Analysis (How To Develop And Implement A Winning Trading System). Second Edition, John Wiley & Sons, Inc., Usa.
- [98] Dempster, M. A. H., Jones, C. M. (1999a) Can Technical Pattern Trading Be Profitably Automated? 1. The Channel , Working Paper 11/99, Judge Institute Of Management, University Of Cambridge.
- [99] Dempster, M. A. H., Jones, C. M. (1999b) Can Technical Pattern Trading Be Profitably Automated? 2. The Head An Shoulders. Working Paper 12/99, Judge Institute Of Management, University Of Cambridge.
- [100] Sabina Orłowska, Conception Et Prediction Des Caracteristiques Dielectriques Des Materiaux Composites A Deux Et Trois Phases Par La Modelisation Et La Validation Experimentale L'ecole Doctorale Electronique, Electrotechnique, Automatique De Lion 2003.
- [101] A.K.Jonscher , Dielectric Relaxation In Solids Chelsea Dielectrics Press ;London (1983)
- [102] F.Carmona, Milieux Heterogenes, Centre De Recherche Paul Pascal ,2005.
- [103] A.Balana,These De Doctorat De L'universite De Bordeaux I,1990.
- [104] W.M.Merril, Effective Medium Theories For Artificial Materials Composed Of Multiple Size Of Spherical Inclusions In A Host Continuum, Ieee Transactions On Antennas And Propagation 1999.
- [105] E. Argence, T. Kahan, "Theorie Des Guides Et Cavites Electromagnetiques", Dunod Paris, (1972).
- [106] A. M. Bottreau, "Cours Sur La Caracterisation De Materiaux Par Techniques Temporelles", Bordeaux 3<sup>ieme</sup> Cycle Et Toulouse Sup-Aero.

# Résumé

L'objectif de ce mémoire est l'étude du comportement des matériaux diélectriques ainsi la simulation des lois de mélanges de ce comportement ; en employant la technique de mesure SDT et à fréquence fixe pour le mélange qui est constitué par la résine époxyde et deux titanates : BaTiO<sub>3</sub> et CaTiO<sub>3</sub> qui ont la structure PEROVSKITE.

Plusieurs échantillons sont préparés, afin de voir l'évolution de la permittivité diélectrique de ce composite vis-à-vis les fractions volumiques des constituants qui s'étendent de zéro à trente pour cent.

La simulation des lois de mélange de Lichtenecker et Bottreau nous a permis de comparer les résultats donnés par ces lois avec ceux obtenus expérimentalement qui montre que :

- la loi de Bottreau est une généralisation de la loi de Lichtenecker.
- La loi de Bottreau suit bien la réponse diélectrique pour ce type de mélange.

La modélisation par réseau neurone nous a montré que la connaissance de la forme des agrégats dans le mélange est la base pour modéliser le comportement de ce type de mélange.

## ملخص

الهدف من هذه المذكرة هو دراسة سلوك و خواص الخلائط العازلة ; وذلك عند استعمال تقنية القياس SDT بتواتر ثابت للخليط 500 MHZ المتكون من ((Epoxy resin و ثنائي التيتانات : ال BaTiO3 و ال CaTiO3 ذات البنية PEROVSKITE .

لغاية رؤية تدرج سماحية العزل الكهربائي لهذا الخليط فقد حضرت عدة عينات حجميه وقد طبقنا عليها قانون ليشنيكر Lichtenecker و بوترو Bottreau لإظهار هذا السلوك و المقارنة بينهما.

ومن خلال نتائج التمثيل فقد تبين أن :

قانون بوترو هو قانون معمم لليشنيكر  
انه يتجاوب مع هذا النوع من الخلائط.

ومن خلال نتائج التنبؤ بالشبكة réseau neurone تبين أن :

معرفة التركيب الحقيقية للجزيئات داخل الخلائط هو أساس العمل عل إيجاد قانون يتجاوب مع هذه الخلائط.

## Abstract

The objective of this thesis consists of studying behavior and characterization of the dielectric composites. While using SDT measuring technique with stationary frequency at 500 MHZ for composite which is constituted of a ((Epoxy resin)) charged by two titanates: the first is the CaTiO3 and the second is the BaTiO3. These titanates possess PEROVSKITE structure.

Some sample have been prepared, in order to see the evolution of the dielectric permittivity of this mixture according to the volume fractions of the constituents .We apply tow laws like Lichtenecker and Bottreau to show their such behavior and compare them.

From the results given by simulation, we notice that:

- Bottreau's modeling law is a generalization of Lichtenecker's probability law
- It follows this type of mixtures.

From the results given by modeling ((neuron network)), we notice that:

The knowledge of real structure of aggregate is basis to find model that react with this mixtures.