

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université Ferhat Abbas – Sétif
Faculté des Sciences de l'Ingénieur
Département d'Electronique

Thèse intitulée:

**«Caractérisation électromagnétique de polymère chargé
par des mélanges de titanates et d'oxyde en utilisant la
spectroscopie en domaine temporel»**

Présentée par :

M^r. ABDALLAH BENHAMOUDA

Pour l'obtention du diplôme de Docteur es Science en Electronique

Option:
Instrumentation

Soutenue le 10 - 03 - 2010 devant le jury composé de:

Farid DJAHLI	Professeur	Université de Sétif	Président
Nacerdine BOUZIT	Professeur	Université de Sétif	Rapporteur
Djamel CHIKOUCHE	Professeur	Université de M'Sila	Examineur
Malek BENSLAMA	Professeur	Université de Constantine	Examineur
Salah SAHLI	Professeur	Université de Constantine	Examineur
Abdelaziz MERZOUKI	Professeur	Université de Sétif	Examineur

2009-2010

Remerciements

Je tiens à remercier monsieur Nacerdine BOUZIT Professeur au département d'Electronique à l'université Ferhat Abbas de Sétif pour m'avoir proposé ce sujet et encadré pendant ces années. Je tiens à le remercier aussi pour sa patience, son grand aide et pour tous ses efforts présentés pour la réussite de ce travail. Qu'il trouve ici l'expression de toute ma reconnaissance.

Mes remerciements vont également à monsieur José-Maria FORNIES-MARQUINA, professeur et directeur du laboratoire de caractérisation électromagnétique à l'université de SARAGOSSE en Espagne. Merci professeur pour votre hospitalité lors de mon séjours à SARAGOSSE, merci pour votre générosité et votre précieuse aide et conseils, ainsi que votre confiance totale en ma personne en m'ouvrant les portes de votre laboratoire à plein temps et sans aucune restriction pendant les 28 jours de mon stage. Ce stage m'était d'une grande importance dans mon sujet de thèse, puisque j'ai pu - pour la première fois - découvrir de près le banc de caractérisation par réflectométrie temporelle et de faire toutes les caractérisations et mesures nécessaires sur plusieurs séries d'échantillons. Que vous trouvez ici, monsieur Fornies, l'expression de mon grand respect et toute ma reconnaissance.

Toute ma gratitude va a monsieur le professeur Farid DJAHLI professeur à l'université Ferhat Abbas de Sétif, pour avoir accepté de présider le jury de cette thèse.

Je remercie aussi monsieur MERZOUKI Abdelaziz, professeur à l'université Ferhat Abbas de Sétif, monsieur CHIKOUCHE Djamel, professeur à l'université de M'Sila, messieurs BENSLAMA Malek et SAHLI Salah, professeurs à l'université Mentouri de Constantine, qui ont bien voulu accepter de juger mon travail, qu'il me soit ici permis de leurs exprimer toute ma reconnaissance.

Je tiens à remercier, par ailleurs, monsieur le docteur Nacerdine BOUROUBA, maitre de conférences au département d'électronique à l'université Ferhat Abbas de Sétif pour son grand aide et accompagnement pendant mon stage à SARAGOSSE ainsi que pour les résultats expérimentaux qu'il nous a ramené et dont il a assuré l'expérimentation pendant ses stages effectués à SARAGOSSE.

Je remercie aussi El Hadi BAKHTI (Ahmed) pour ses encouragements et son grand aide pendant la préparation et l'usinage de certaines séries d'échantillons.

Mes remerciements vont également au docteur Fouad KERROUR pour ces conseils, Mohamed RASLAIN et Smail MOUISSAT pour leur encouragement ainsi que toute l'équipe pédagogique du département d'électronique avec qui je travaille et avec qui je collabore.

Pour ma grande et petite famille, je tiens à leur dire : qu'Allah vous récompense pour l'aide et le soutien indispensables que vous m'avez toujours su m'apporter.

Je termine mes remerciements en s'adressant aux personnes qui m'ont aidé de près ou de loin et que je n'ai pas pu les citer faute d'espace et de temps, qu'ils trouvent ici l'expression de ma grande reconnaissance.

TABLE
DES MATIERES

Table des matières

Introduction générale	1
Chapitre 1 Physique des milieux diélectriques et lois de mélanges.....	3
1.1 Introduction	4
1.2 Les dipôles électriques	4
1.3 La polarisation diélectrique	5
1.4 Le champ électrique local	6
1.5 Les mécanismes de la polarisation diélectrique	8
1.5.1 La polarisation électronique.....	8
1.5.2 La polarisation ionique (ou moléculaire).....	9
1.5.3 La polarisation dipolaire (ou d'orientation).....	9
1.5.4 La polarisation hétérogène (ou interfaciale)	10
1.5.5 La susceptibilité diélectrique	11
1.5.6 La relation entre la permittivité et la susceptibilité diélectrique	12
1.5.7 La relation de Clausius-Mossotti	13
1.6 La modélisation fréquentielle de la permittivité diélectrique.....	13
1.6.1 L'équation de Debye	13
1.7 La permittivité diélectrique des mélanges aléatoires	16
1.7.1 Le modèle de Rayleigh	17
1.7.2 Le modèle de Böttcher	17
1.7.3 La loi de Wiener.....	17
1.7.4 La loi de Lichtenecker-Rother	18
1.7.5 La loi de Birchak.....	19
1.7.6 La loi de Bruggeman.....	19
1.7.7 La loi de Hanai.....	19
1.7.8 La loi de Maxwell-Garnett.....	20
1.8 Conclusion.....	20
Chapitre 2 Techniques de caractérisation des milieux diélectriques.....	21
2.1 Introduction	22
2.2 La propagation des ondes électromagnétiques.....	23
2.3 Démarche électrique.....	23
2.3.1 Modèle d'une ligne	23
2.3.2 Les équations de propagation.....	23

2.3.3	La constante de propagation	25
2.3.4	L'impédance caractéristique d'une ligne de transmission	26
2.4	Démarche électromagnétique	27
2.4.1	Les équations de Maxwell	27
2.4.2	L'impédance caractéristique du milieu de propagation	29
2.5	La réflectométrie temporelle	30
2.5.1	Principe	30
2.5.2	Les méthodes expérimentales utilisées en RDT	31
2.5.3	La méthode de la première réflexion	31
2.5.4	Les méthodes des réflexions multiples	33
2.5.4.1	La méthode de la ligne court-circuitée	35
2.5.4.2	La méthode de la ligne ouverte	39
2.5.4.3	La méthode de la ligne adaptée	42
2.6	Conclusion	47
Chapitre 3	Démarche expérimentale	48
3.1	Introduction	49
3.2	Matériaux utilisés	49
3.2.1	Les Titanates	49
3.2.2	Les Oxydes	51
3.3	Détermination des fractions volumiques en fonction des poids des charges	52
3.4	Mode de préparation	53
3.5	Usinage des échantillons	54
3.6	Mesures par Réflectométrie Temporelle (TDR : Time Domain Reflectometry) ...	55
3.7	Procédure expérimentale de mesure par RDT	57
3.7.1	Traitements des signaux acquis TDR	59
3.7.2	Calcul du coefficient de réflexion	59
3.7.2.1	Extraction du signal réfléchi	59
3.7.2.2	La fonction d'appareil	60
3.7.3	Calcul de l'admittance :	61
3.7.4	Calcul de la permittivité complexe:	61
3.7.5	Calcul de la transformée de Fourier discrète (TFD)	62
3.7.5.1	Méthode de Samulon	62
3.8	Résultats bruts obtenus par RDT	65

Chapitre 4	Résultats et discussions	68
4.1	Introduction	69
4.2	Mélanges Résine, BaTiO ₃ et CaTiO ₃	69
4.2.1	Mélange binaire de titanate de Calcium et de Résine époxyde (RE/TCA)	69
4.2.2	Mélange binaire , Titanate de Baryum avec une résine époxyde (RE/TBA)	70
4.2.3	Mélange ternaire : Résine époxyde, Titanate de Baryum et de Calcium	71
4.2.4	Interprétation et discussion	74
4.3	Mélanges Résine, BaTiO ₃ et (CuO, MgO)	77
4.3.1	Mélange Résine, BaTiO ₃ et CuO [RE.BT.CuO]	78
4.3.1.1	La constante diélectrique	78
4.3.1.2	La conductivité statique	79
4.3.2	Mélange Résine, BaTiO ₃ et MgO [RE.BT.MgO]	81
4.3.2.1	La constante diélectrique	81
4.3.2.2	La conductivité statique	83
4.3.3	Conclusion	83
4.4	Mélanges Résine, CuO et (BaTiO ₃ , CaTiO ₃ et MgTiO ₃)	84
4.4.1	Constante diélectrique	84
4.4.2	Conductivité statique	84
4.4.3	Modèle théorique	85
4.4.4	Conclusion	87
4.5	Comportement diélectrique en fonction de la fréquence	87
4.5.1	Introduction	87
4.5.2	Mélange Résine, BaTiO ₃ et CuO [RE.BT.CuO]	88
4.5.3	La résine époxyde pure	92
4.5.4	Mélange Résine, BaTiO ₃ et MgO [RE.BT.MgO]	92
4.5.5	Série d'échantillons : Epoxyde, Titanates de Baryum et Oxyde de cuivre	95
4.5.6	Série d'échantillons : Epoxyde, Titanates de Calcium et Oxyde de cuivre	98
4.5.7	Série d'échantillons : Epoxyde, Titanate de Magnésium et Oxyde de cuivre	99
Conclusion générale		103
Bibliographie		106
Table des illustrations		112
Annexe 1		117
Annexe 2		122
Travaux scientifiques réalisés		123

INTRODUCTION
GENERALE

Introduction générale

L'étude et la conception de matériaux composites suscitent, depuis près d'un siècle, un grand intérêt dans les domaines multiples et variés de l'électronique hyperfréquence, compte tenu de leurs performances souvent bien supérieures à celles de matériaux homogènes. Parmi ces structures composites, nous nous intéressons plus particulièrement aux mélanges diélectriques pour des applications en micro-ondes.

L'étude que nous allons abordée, concerne la caractérisation des structures composites ternaires à base de titanates, d'oxydes et de résine, afin de déterminer leurs permittivités et conductivités. La technique de caractérisation adoptée dans notre étude est la réflectométrie temporelle. C'est une méthode de mesure hyperfréquence large bande, simple et rapide, reposant sur l'étude de la réflexion engendrée par l'interaction d'une onde électromagnétique avec l'échantillon à caractériser qui est placé dans une ligne coaxiale. L'échantillon se présente sous forme tubulaire solide ayant 7mm de diamètre externe et 3mm de diamètre interne, ce qui correspond à une impédance caractéristique de la ligne de 50Ω , l'épaisseur peut varier de quelques millimètres. Les propriétés diélectriques micro-ondes ont été mesurées selon la méthode de la ligne adaptée, en utilisant un réflectomètre en domaine de temps constituée d'un générateur d'échelon, des guides d'ondes coaxiales, de cellules de mesure et d'un oscilloscope numérique à échantillonnage.

Une analyse du comportement diélectrique des matériaux traités en fonction de la nature des inclusions et de leur concentration a été effectuée, afin de pouvoir corrélérer leurs propriétés diélectriques avec quelques lois de mélanges aléatoires appropriées. Nous avons ainsi réalisé plusieurs séries d'échantillons selon différentes compositions et concentrations. Nous les avons par la suite caractérisés par le banc de mesure en bande X au niveau du Laboratoire d'Instrumentation Scientifique (L.I.S) au département d'électronique à l'université de Sétif. Une fois les données brutes acquises, nous les avons traitées pour en extraire les paramètres diélectriques recherchés. Cette première caractérisation nous a permis d'avoir une première estimation des permittivités complexes des composites ternaires.

Suite à ce premier travail, nous avons pris les mêmes échantillons que nous avons d'abord élaborés sous forme de parallélépipèdes de section deux millimètres carré et d'épaisseurs variées, dont nous avons extrait les formes tubulaires exigées par le banc de réflectométrie temporelle composé d'un oscilloscope à échantillonnage numérique HP54120B associé au générateur d'échelon HP 54121. Une fois les mesures effectuées, nous avons commencé le traitement des données expérimentales.

Cette thèse est composée de quatre chapitres. Dans le premier chapitre, nous commençons par une brève présentation de la physique des milieux diélectriques afin d'exposer clairement les mécanismes qui régissent le comportement diélectrique des matériaux et qui déterminent ainsi leur permittivité et conductivité. Nous abordons le phénomène de polarisation et d'interaction champs électrique et matière, la naissance de dipôles induits et la notion de permittivité effective qui est présentée à la fin de ce chapitre à travers quelques lois de mélanges les plus usuelles dans le cas des milieux matériels hétérogènes à distribution aléatoire.

Nous avons commencé notre deuxième chapitre par l'étude analytique de la propagation d'onde électromagnétique à l'intérieur d'un guide coaxial. Cette étude est faite

selon deux démarches complémentaires; la première est purement électrique qui aboutit aux équations dites de télégraphistes et la deuxième est purement électromagnétique et qui permet d'exprimer les paramètres électromagnétiques, qui sont dans notre cas la permittivité et la conductivité, à partir des équations de Maxwell et en passant par la réflexion normale. Nous avons aussi présenté la technique de réflectométrie temporelle et ses différentes méthodes en partant de la méthode de la première réflexion, puis par celle du court circuit, en passant par la ligne ouverte et en terminant par celle de la ligne adaptée que nous avons adoptée comme technique de caractérisation pour nos échantillons, vu qu'elle répond parfaitement aux contraintes imposées par la forme des échantillons et par les propriétés recherchées.

Dans le troisième chapitre, tous les aspects relatifs à la mise en œuvre expérimentale sont décrits, qu'il s'agisse de l'élaboration des échantillons, ou des équipements de caractérisation. Nous présentons la procédure expérimentale employée en commençant par le mode de préparation des échantillons, en passant par la méthode de caractérisation par le banc de réflectométrie temporelle et en arrivant à l'exposé des résultats bruts obtenus.

L'analyse et la discussion des différents résultats ont fait l'objet du dernier chapitre où nous traitons cas par cas les différentes séries d'échantillons présentées au cours de cette étude, en donnant les propriétés en statiques puis en fonction de la fréquence.

Nous terminons ce travail par une conclusion générale suivie de quelques recommandations pour de futures études.

CHAPITRE 1

Physique des milieux diélectriques et lois de mélanges

1.1 Introduction

L'étude de la matière solide fut l'objet d'une longue recherche par une multitude de chercheurs depuis les premiers jours de la physique de la matière. L'intérêt majeur de cette étude se résume dans la compréhension des différents mécanismes et processus qui déterminent les propriétés de la matière. Dans notre cas, on s'intéresse à un certain type de matériaux diélectriques à l'état solide. Pour mieux les comprendre et voir leur interaction avec le champ électrique, on va aborder quelques notions fondamentales sur la physique de ce type de matériaux.

1.2 Les dipôles électriques

L'état solide de la matière est défini lorsque les atomes constituant la matière possèdent des positions relatives fixes [1]. Un matériau diélectrique est une substance dont la propriété électromagnétique fondamentale est d'être polarisable dans un champ électrique. Il est caractérisé par son aptitude à emmagasiner l'énergie électrique. Il est considéré comme idéal si cette énergie reste conservée indéfiniment. Il est caractérisé d'un point de vue électrique par sa permittivité. En réalité, il est difficile de trouver des diélectriques parfaits mais ceux qui existent déjà offrent des propriétés et des caractéristiques pratiques plus ou moins satisfaisantes pour répondre aux différentes applications en électronique. Cependant, les recherches n'ont pas cessé depuis des décennies pour améliorer ces propriétés et atteindre les besoins technologiques qui sont toujours en croissance continue, particulièrement avec l'ère des télécommunications et du tout numérique.

A l'intérieur de ces milieux matériels il existe des porteurs de charges électriques qui ne participent pas dans la conduction électrique. Toutefois, en présence d'un champ électrique externe ils vont être excités et vont manifester un certain déplacement. Ce dernier va créer une nouvelle configuration électrique due à une modification de la répartition des charges (positives et négatives) dans le matériau, ce qui conduira à la naissance de ce qu'on appelle : dipôles électriques.

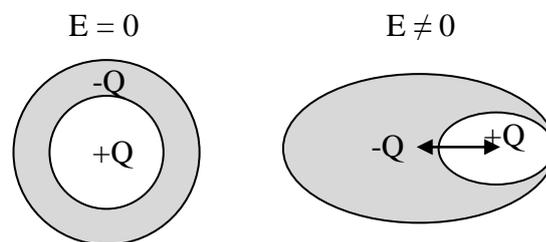


Figure 1-1: Déplacement des barycentres des charges positives et négatives en présence d'un champ électrique externe.

Un dipôle électrique est donc une entité physique qui désigne un ensemble de deux charges électriques de signes différents, espacée l'une de l'autre par une distance d [2, 3]. C'est

ce déplacement qui est à l'origine de l'énergie stockée. La figure ci-dessous montre un dipôle composé de deux charges $+q$ et $-q$.

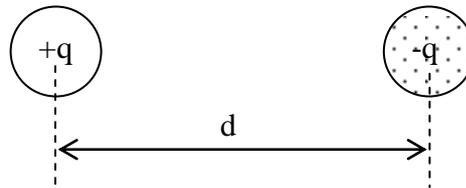


Figure 1-2: Dipôle électrique.

En réalité, il en existe deux types : permanents et induits. Les dipôles dits « permanents » sont toujours présents même à l'état de repos (absence d'excitation externe). Ils sont dus à la dissymétrie qui existe au niveau moléculaire de certains matériaux, et qui aboutit au non coïncidence des barycentres des charges positives et négatives. Les dipôles induits n'apparaissent que sous l'effet d'un champ électrique externe appliqué sur le matériau diélectrique.

Chaque dipôle électrique est caractérisé par son moment dipolaire \vec{m} donné par :

$$\vec{m} = q \cdot d \cdot \vec{r} \quad (1-1)$$

où \vec{r} est un vecteur unitaire dirigé de $-q$ vers $+q$.

1.3 La polarisation diélectrique

Un matériau diélectrique, et grâce à ses dipôles, est capable de stocker l'énergie électrique lorsqu'un champ électrique externe lui est appliqué; ce phénomène s'appelle : polarisation.

L'estimation de cette grandeur physique est calculée en comptant le nombre de moments dipolaires par unité de volume. La polarisation désigne l'aptitude du diélectrique à se laisser influencer par le champ électrique en déplaçant ses barycentres de charges positives et négatives.

Soit un champ électrique uniforme \vec{E}_{ext} appliqué sur un échantillon de forme ellipsoïdale. Ce champ produit une polarisation uniforme :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \cdot \chi \cdot \vec{E}_{ext} \quad (1-2)$$

Dans l'équation (1-2), χ désigne la susceptibilité diélectrique.

Cette polarisation est en fait le résultat de la contribution de plusieurs mécanismes coexistant qu'on va aborder au cours de ce chapitre.

1.4 Le champ électrique local

Soit un point matériel M qui forme avec un dipôle ponctuel D de moment polaire \vec{m} un vecteur \vec{r} .

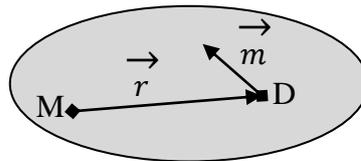


Figure 1-3: Induction d'un dipôle sur un point matériel M .

Le champ électrique sur ce point du à la présence du dipôle est défini par:

$$\vec{E}(\vec{r}) = \frac{3(\vec{m} \cdot \vec{r})\vec{r} - r^2 \cdot \vec{m}}{4\pi\epsilon_0 \cdot r^5} \quad (1-3)$$

Dans le cas de la présence de n dipôles entourant ce point matériel et caractérisés chacun par son moment dipolaire \vec{m}_i et son vecteur \vec{r}_i .

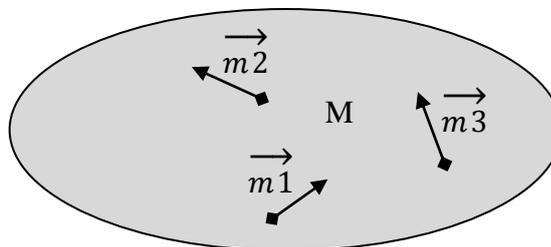


Figure 1-4: Représentation d'un point matériel M entouré par 3 dipôles ponctuels.

Le champ total appliqué sur le point M sera:

$$\vec{E}_{dip\acute{o}les} = \sum_{i=1}^n \frac{3(\vec{m}_i \cdot \vec{r}_i)\vec{r}_i - r_i^2 \cdot \vec{m}_i}{4\pi\epsilon_0 \cdot r_i^5} \quad (1-4)$$

Supposant maintenant qu'un champ électrique externe est appliqué, ce point matériel sera alors sous l'effet de deux sources de champ électrique: l'une causée par les dipôles permanents, l'autre par le champ externe. Le champ affectant le point matériel est celui résultant des deux sources. On l'appelle : champ électrique local. Il est la somme du champ externe \vec{E}_{ext} et du champ $\vec{E}_{dip\acute{o}les}$ créé par les différents dipôles qui l'entourent.

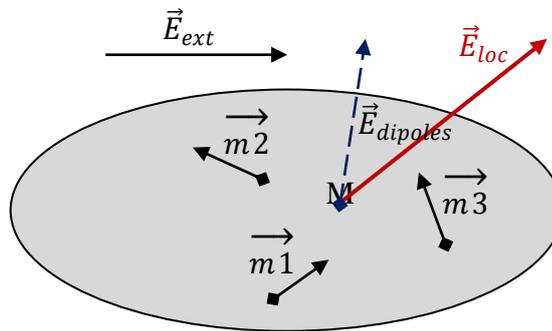


Figure 1-5: Application d'un champ externe sur un point matériel M entouré de 3 dipôles.

On peut écrire:

$$\vec{E}_{loc} = \vec{E}_{ext} + \vec{E}_{dip\acute{o}les} \quad (1-5)$$

Ceci est vrai surtout pour les milieux matériels à moyenne et haute densité où les particules sont assez proches. Dans le cas des milieux peu denses (gaz), les distances qui séparent les différentes particules sont importantes, par conséquent l'influence de ces particules sur un point donné sera négligeable devant l'effet qu'exerce un champ externe sur ce point. Le champ local se réduit dans ce cas au champ appliqué: $\vec{E}_{loc} \approx \vec{E}_{ext}$.

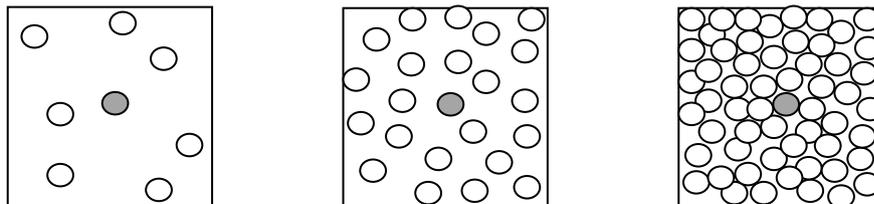


Figure 1-6: Représentation des distances inter-particules dans le cas de trois milieux matériels à différentes densités.

Pour un milieu cristallin linéaire, homogène et isotrope, le champ local est donné par l'expression :

$$\vec{E}_{loc} = \vec{E}_{ext} + \frac{\vec{P}}{3\epsilon_0} \quad (1-6)$$

où $\frac{\vec{P}}{3\epsilon_0}$ est le champ créé par les dipôles et qu'on appelle: champ de Lorentz.

1.5 Les mécanismes de la polarisation diélectrique [1-11]

On a déjà vu lorsqu'on a défini la polarisation que cette grandeur physique est souvent générée par plusieurs mécanismes. Il en existe quatre principaux et dont l'effet de chacun dépend essentiellement de la fréquence du champ appliqué. L'origine physique de la polarisation vient essentiellement de la contribution de ces différents mécanismes de polarisation.

Ces quatre types de polarisations sont: la polarisation électronique, la polarisation ionique (ou moléculaire), la polarisation dipolaire (ou d'orientation) et la polarisation hétérogène (ou inter faciale). Ces mécanismes n'apparaissent pas tous en même temps mais selon la fréquence d'excitation du champ extérieur appliqué.

1.5.1 La polarisation électronique

Lorsque la matière est au repos (pas d'excitation), le nuage électronique est théoriquement centré autour du noyau de l'atome. Ce nuage commence à dévier de sa position d'équilibre sous l'effet d'un champ électrique externe. Cette déviation est fonction de l'intensité du champ appliqué et des forces d'attractions entre les charges positives du noyau et celles négatives dans le nuage.

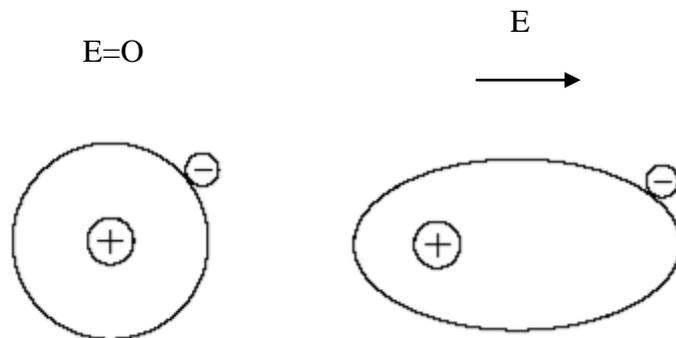


Figure 1-7: Mécanisme de la polarisation électronique

Les barycentres des deux types de charges ne coïncident plus, il y a donc naissance d'un dipôle induit, et par conséquent d'un moment dipolaire.

Grâce à la relative petite masse des électrons, ce type de polarisation s'établit en un temps très court et il reste en contribution jusqu'à des fréquences très élevées. Cette polarisation est notée:

$$\vec{P}_e = N \cdot \alpha_e \cdot \vec{E}_{loc} \quad (1-7)$$

N est le nombre de particules par unité de volume.

1.5.2 La polarisation ionique (ou moléculaire)

Elle apparaît dans les matériaux qui contiennent des ions positifs et négatifs. Ces ions et en présence d'un champ électrique externe vont se déplacer pour s'aligner avec le champ appliqué.

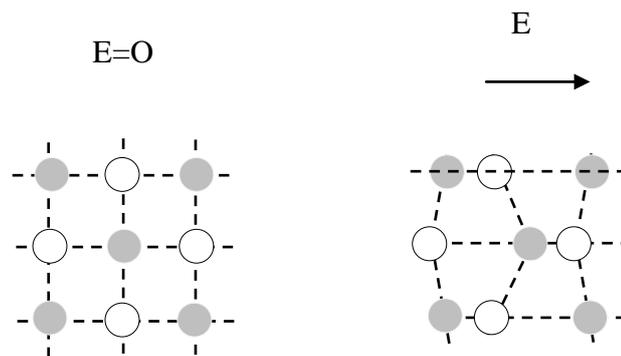


Figure 1-8 : Mécanisme de la polarisation ionique

Il y a donc naissance de dipôles induits. Cependant, ce mécanisme devient imperceptible aux fréquences micro-ondes à cause de la relative grande masse des ions qui augmente le temps d'établissement et à cause aussi des fortes liaisons ioniques. Cette polarisation est donnée par:

$$\vec{P}_i = N \cdot \alpha_i \cdot \vec{E}_{loc} \quad (1-8)$$

1.5.3 La polarisation dipolaire (ou d'orientation)

Ce type de polarisation intervient dans le cas des milieux matériels qui possèdent des molécules polaires (tel que l'eau) et par conséquent des dipôles permanents. L'orientation de ces dipôles est aléatoire dans l'absence d'une excitation. Lorsqu'on applique un champ

électrique externe, ils s'alignent avec ce dernier. Dans ce cas il n'y a pas un déplacement mais tout simplement une orientation des dipôles.

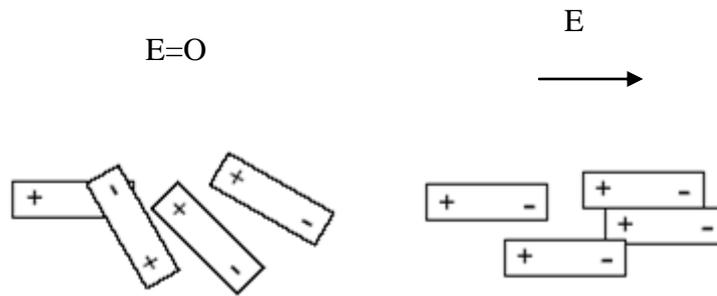


Figure 1-9: Mécanisme de la polarisation dipolaire.

Ce type de polarisation existe surtout dans les milieux liquides ou visqueux dans lesquels les dipôles peuvent se mouvoir. Il dépend fortement de la température car l'aspect aléatoire de l'orientation des dipôles est fonction des agitations thermiques [2, 12]. Le temps d'établissement de la polarisation dépend de la fréquence du champ appliqué et de la viscosité du milieu. L'expression de cette polarisation est donnée par:

$$\vec{P}_o = N \cdot \alpha_o \cdot \vec{E}_{loc} \quad (1-9)$$

1.5.4 La polarisation hétérogène (ou interfaciale)

Lorsque le milieu matériel est composé de plus d'une phase, il est dit hétérogène. L'existence de plusieurs phases implique que lorsqu'il y a des charges qui peuvent se déplacer sous l'effet d'un champ électrique externe, leur déplacement finira par les accumuler au niveau des interfaces qui existent entre les différentes phases. Le cumul de ces charges crée une polarisation dite interfaciale.

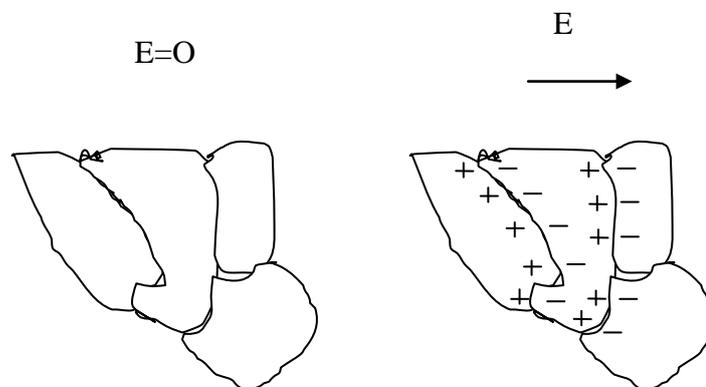


Figure 1-10: Mécanisme de la polarisation interfaciale.

Dans le cas général, la polarisation totale dans un matériau est donnée par la somme de ces quatre types:

$$\vec{P} = \vec{P}_e + \vec{P}_i + \vec{P}_o + \vec{P}_h \quad (1-10)$$

$$\vec{P} = N \cdot \alpha \cdot \vec{E}_{loc} \quad (1-11)$$

où $\alpha = \alpha_e + \alpha_i + \alpha_o + \alpha_h$ est la polarisabilité totale dans le matériau. Selon la nature du milieu matériel, et selon la fréquence de travail, cette grandeur peut se réduire soit à $(\alpha_e + \alpha_i)$ ou à $(\alpha_e + \alpha_i + \alpha_o)$.

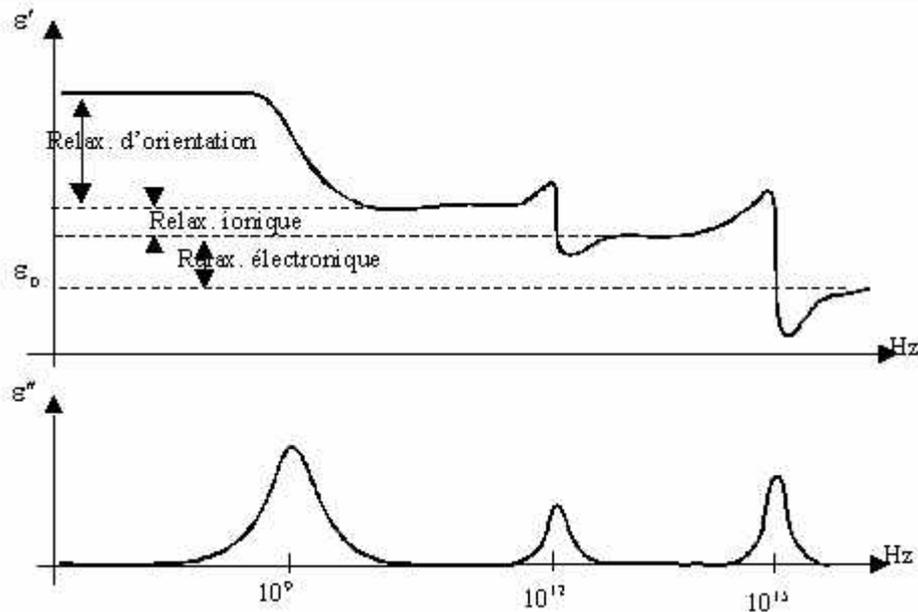


Figure 1-11: Contribution des différents mécanismes de la polarisation dans la valeur de la permittivité complexe en fonction de la fréquence d'excitation.

1.5.5 La susceptibilité diélectrique

Prenons le cas d'un milieu matériel dont les particules sont supposées de forme sphérique. Partant de la relation (1-11) $\vec{P} = N \cdot \alpha \cdot \vec{E}_{loc}$, et d'après l'équation (1-6):

$\vec{E}_{loc} = \vec{E}_{ext} + \frac{\vec{P}}{3\epsilon_0}$, en remplaçant \vec{E}_{loc} par sa valeur, on obtient :

$$\vec{P} = N \cdot \alpha \cdot \left(\vec{E}_{ext} + \frac{\vec{P}}{3\epsilon_0} \right) \quad (1-12)$$

$$\vec{P} = \frac{3\varepsilon_0 \cdot N \cdot \alpha}{3\varepsilon_0 - N \cdot \alpha} \cdot \vec{E}_{ext} \quad (1-13)$$

Et comme: $\vec{P} = \varepsilon_0 \cdot \chi \cdot \vec{E}_{ext}$

On obtient donc:

$$\varepsilon_0 \cdot \chi = \frac{3\varepsilon_0 \cdot N \cdot \alpha}{3\varepsilon_0 - N \cdot \alpha} \quad (1-14)$$

$$\chi = \frac{3N \cdot \alpha}{3\varepsilon_0 - N \cdot \alpha} \quad (1-15)$$

χ est appelée susceptibilité diélectrique qui dépend de la polarisabilité du milieu matériel et du nombre des particules par unité de volume.

1.5.6 La relation entre la permittivité et la susceptibilité diélectrique

Par définition [3, 7, 10, 13]:

$$\vec{D} = \varepsilon \cdot \vec{E}_{ext} \quad (1-16)$$

Et comme:

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \cdot \vec{E}_{ext} + \vec{P} \quad (1-17)$$

En remplaçant le vecteur de polarisation par son expression donnée par l'équation (1-2), on trouve:

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \cdot \vec{E}_{ext} + \varepsilon_0 \cdot \chi \cdot \vec{E}_{ext} \quad (1-18)$$

Ou encore:

$$\vec{D} = \varepsilon_0(1 + \chi) \cdot \vec{E}_{ext} \quad (1-19)$$

Par comparaison avec (1-16), on déduit l'expression de ε :

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \cdot (1 + \chi) \quad (1-20)$$

Le rapport entre ε et ε_0 définit la permittivité diélectrique relative:

$$\varepsilon_r = 1 + \chi \quad (1-21)$$

1.5.7 La relation de Clausius-Mossotti

D'après les équations (1-14) et (1-20), on peut aboutir à la formule:

$$\frac{\varepsilon_r - 1}{\varepsilon_r + 2} = \frac{N \cdot \alpha}{3\varepsilon_0} \quad (1-22)$$

Cette formule est connue par "la relation de Clausius-Mossotti" et qui relie la permittivité diélectrique relative ε_r à la polarisabilité α .

On remarque que plus la valeur de la polarisabilité est grande plus la permittivité du matériau est importante.

1.6 La modélisation fréquentielle de la permittivité diélectrique

Comme on l'a déjà vu dans les mécanismes de polarisation, et comme c'est le cas dans une multitude de publications [2 - 12] la permittivité diélectrique d'un milieu matériel dépend considérablement de la fréquence du champ appliqué. Le degré de dépendance diffère d'un matériau à un autre. Dans la littérature plusieurs auteurs ont proposé chacun sa propre formulation aux problèmes, néanmoins les modèles proposés par Debye [14], Cole & Cole [15] ou Cole & Davidson [16] restent les plus utilisés [5, 13, 17, 18], vu leur degré de validité pour les différents matériaux étudiés.

1.6.1 L'équation de Debye

En 1929, Debye présenta dans son article intitulé "Polar Molecules" une généralisation sur le comportement des matériaux ayant une polarisabilité d'orientation, dans la région où la polarisation diélectrique présente une relaxation [12, 17,19]. Cette relaxation se manifeste quand la période de l'onde électromagnétique est comparable au temps nécessaire à l'alignement de la molécule. En d'autres termes, lorsque la fréquence appliquée est trop grande

devant celle correspondante au temps de relaxation, la permittivité relative est appelée: la constante diélectrique relative infinie, notée ε_∞ , et qui représente la polarisation atomique (ionique) et électronique. Dans ce cas, elle n'est plus fonction de ω . Pour des fréquences assez inférieures, la permittivité relative devient la constante diélectrique relative statique qu'on note ε_s .

Afin d'établir une relation fréquentielle de la permittivité diélectrique, on doit trouver une relation de la forme:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + f(\omega) \quad (1-23)$$

où $f(\omega)$ est une fonction de fréquence qui se réduit, lorsque $\omega \rightarrow 0$, à:

$$f(0) = \varepsilon_s - \varepsilon_\infty \quad (1-24)$$

Supposant maintenant qu'un champ électrique appliqué pour aligner les molécules est supprimé. La polarisation et par conséquent le champ interne va diminuer. Debye a supposé que cette polarisation P décroît exponentiellement avec le temps par une constante de temps τ , qui représente le temps de relaxation caractéristique au moment dipolaire de la molécule. Cette polarisation est donnée par formule suivante:

$$P(t) = P_0 \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (1-25)$$

La fonction recherchée $f(\omega)$ est reliée à la polarisation par la transformée de Fourier [18] :

$$f(\omega) = K \cdot \int_0^{\infty} P(t) \cdot e^{j\omega t} \cdot dt = \frac{K \cdot P_0}{j \cdot \omega + 1/\tau} \quad (1-26)$$

où K est une constante qui assure pour $f(\omega)$ une dimension correcte.

En utilisant la condition donnée par (1-24), on obtient:

$$K \cdot P_0 \cdot \tau = \varepsilon_s - \varepsilon_\infty \quad (1-27)$$

L'équation (I-26) devient alors:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_s + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + j \cdot \omega \cdot \tau} \quad (1-28)$$

L'équation (1-28) est dite: modèle de Debye ou équation de Debye.

Si on sépare les parties réelle et imaginaire de l'expression $\varepsilon^* = \varepsilon' - j \cdot \varepsilon''$, on trouve:

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_s + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + (\omega \cdot \tau)^2} \quad (1-29)$$

$$\varepsilon''(\omega) = \frac{\omega \cdot \tau \cdot (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{1 + (\omega \cdot \tau)^2} \quad (1-30)$$

En définissant la fréquence de relaxation cyclique $\omega_r = \frac{1}{\tau}$, on peut réécrire l'équation (1-28) sous la forme:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_s + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + j \cdot \frac{\omega}{\omega_r}} \quad (1-31)$$

Pour un matériau possédant une conductivité non nulle, le terme des pertes dues à la conductivité doit être ajouté au modèle. On obtient ainsi:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_s + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + j \cdot \frac{\omega}{\omega_r}} - j \frac{\sigma}{\omega \cdot \varepsilon_0} \quad (1-32)$$

La partie imaginaire de la permittivité devient dans ce cas:

$$\varepsilon''(\omega) = \frac{\omega \cdot \tau \cdot (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{1 + (\omega \cdot \tau)^2} + \frac{\sigma}{\omega \cdot \varepsilon_0} \quad (1-33)$$

Elle représente les pertes diélectriques (premier terme) et les pertes dites de la conductivité ionique. Ces deux termes sont égaux lorsque ω est égale à :

$$\omega = \sqrt{\frac{\sigma \cdot \omega_r^2}{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \cdot \varepsilon_0 \omega_r + \sigma}} \quad (1-34)$$

1.7 La permittivité diélectrique des mélanges aléatoires

La permittivité complexe qu'on vient d'étudier dans les sections précédentes traite un milieu matériel dont les particules sont supposées identiques et constituant le même type de matériau. Dans ce cas on parle d'un milieu à une seule phase. Typiquement, les matériaux diélectriques peuvent être considérés comme des milieux à plusieurs phases à cause de l'existence de limites du grain et petites quantités des pores résiduels dans le matériau. Ils comportent souvent plus d'une phase. Dans le cas des milieux dits hétérogènes où il y a coprésence de différentes phases et plusieurs constituants, les propriétés de ces composites dépendent de l'interconnexion, la fraction du volume et les propriétés de chaque phase. La description la plus simple des propriétés d'un composite suit les lois de mélanges [2-3, 20-23].

La modélisation diélectrique des mélanges est considérée comme un outil mathématique qui permet la prédiction de la constante diélectrique d'un mélange hétérogène et aléatoire à partir des paramètres de ses constituants. Dans la littérature scientifique spécialisée, on peut trouver plusieurs modèles et lois qui traitent ce sujet selon des considérations parfois différentes; il y a ceux qui tiennent compte de l'aspect géométrique ou granulaire des inclusions, de la manière de leur dispersion dans le milieu hôte ou encore de la nature physique du mélange lui-même (gaz, liquide ou solide) [24].

Plusieurs modèles ont été proposés et utilisés pour prédire les propriétés d'un composite diélectrique. Deux hypothèses importantes ont été faites dans la majorité des modèles [25-35]. La première est que chaque phase est constante et possède les mêmes propriétés partout dans le composite. La seconde est que la troisième phase (dans le cas d'un composite à deux phases) dans le composite, tel que limites du grain, interfaces, et quelquefois même les pores peuvent être négligés. Pour les micro-composites, cette supposition est valide; cependant, ces troisièmes phases peuvent être considérables pour les nanocomposites, et ne peuvent être plus négligeable. Dans notre cas, nos matériaux composites sont des microcomposites.

Si l'échelle d'inhomogénéités dans le mélange est plus petite que la longueur d'onde à l'intérieur du mélange, on peut définir une permittivité efficace ε_{eff} . Les permittivités efficaces peuvent être définies dans un cas où le champ électromagnétique ne voit pas l'inhomogénéité dans la matière. Dans la bande de fréquence de GHz ou MHz, la longueur d'onde est mesurée dans une échelle des centimètres ou des mètres. A ces fréquences, les permittivités efficaces peuvent être définies pour tout matériau ayant des inhomogénéités microscopiques [24].

1.7.1 Le modèle de Rayleigh [36]

Ce modèle est donné par l'expression:

$$\frac{\varepsilon_m - 1}{\varepsilon_m + 2} = \sum_{i=1}^n f_i \cdot \frac{\varepsilon_i - 1}{\varepsilon_i + 2} \quad (1-35)$$

ε_m : représente la constante diélectrique du mélange.

ε_i : représente la constante diélectrique du $i^{\text{ème}}$ constituant.

f_i : représente la fraction volumique du $i^{\text{ème}}$ constituant.

1.7.2 Le modèle de Böttcher [37]

L'équation proposée par Böttcher destinée à calculer la constante diélectrique d'un mélange binaire est donnée par:

$$f_1 \cdot \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_m}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon_m} + f_2 \cdot \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_m}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon_m} = 0 \quad (1-36)$$

Les inclusions pour ce modèle sont supposées sphériques. Une forme générale de l'équation de Böttcher pour un système multi-phases, est donnée par:

$$\sum_{i=1}^n f_i \cdot \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_m}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_m} = 0 \quad (1-37)$$

1.7.3 La loi de Wiener [38]

Wiener a proposé un modèle de description de la permittivité effective d'un composite à n constituants donné par :

$$\varepsilon_m^c = \sum_{i=1}^n f_i \cdot \varepsilon_i^c \quad (1-38)$$

On remarque l'introduction d'un paramètre noté « c », appelé facteur de forme ou facteur de dépolariation. Ce paramètre est compris entre -1 et $+1$.

Deux cas limites se présentent:

$C=-1$: dans ce cas, le modèle décrit la constante diélectrique d'un composite formé par n couches disposées en série entre deux armatures planes d'un condensateur (figure 1-12-a).

$C=1$: dans ce cas, le modèle décrit la constante diélectrique d'un composite formé par n couches disposées en parallèle entre deux armatures planes d'un condensateur (figure 1-12-b).

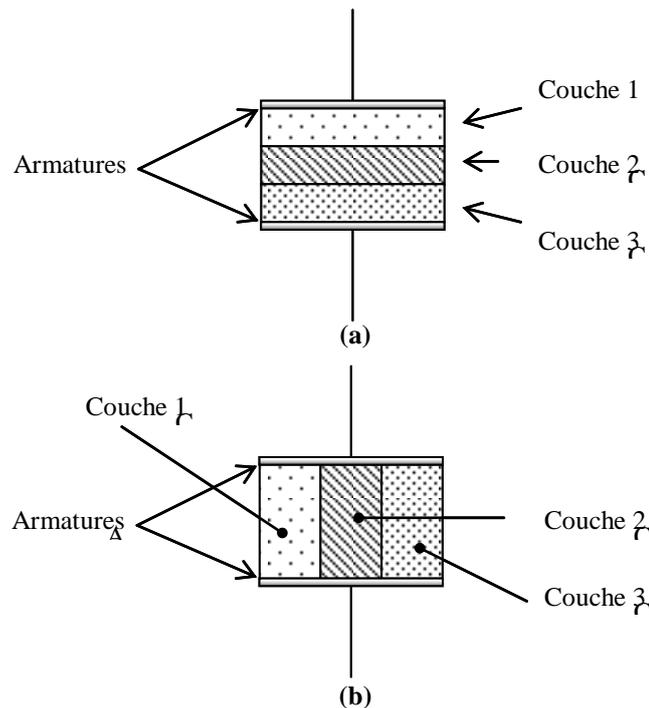


Figure 1-12: Schématisation des cas extrêmes du modèle de Wiener pour un composite ternaire.

Ces deux cas extrêmes sont connus par les limites inférieure et supérieure de Wiener. Entre -1 et $+1$, le facteur de forme peut prendre n'importe quelle valeur et peut donc exprimer toutes les configurations que peuvent exister dans un tel composite.

1.7.4 La loi de Lichtenecker-Rother [39]

Lichtenecker et Rother ont proposé un modèle mathématique pour la détermination de la constante diélectrique d'un mélange composé de n constituants. Il est donné par [2-11, 17-35, 39-40]:

$$\ln \varepsilon = \sum_{i=1}^n f_i \cdot \ln \varepsilon_i \quad (1-39)$$

Ce modèle représente une relation empirique largement utilisée indépendamment de la géométrie physique des particules du système composite [21].

1.7.5 La loi de Birchak [41]

En 1974, Birchak proposa la méthode dite CRIM (méthode de l'index de réfraction complexe) pour le calcul de la permittivité diélectrique d'un mélange binaire, en supposant que la taille des inclusions est assez petite devant la longueur d'onde. Cette méthode est donnée par la formule:

$$\sqrt{\varepsilon_m} = f_1 \cdot \sqrt{\varepsilon_1} + f_2 \cdot \sqrt{\varepsilon_2} \quad (1-40)$$

Pour le cas d'un système multi-phases, une formule généralisée est donnée par:

$$\sqrt{\varepsilon_m} = \sum_{i=1}^n f_i \cdot \sqrt{\varepsilon_i} \quad (1-41)$$

Ce modèle est un cas spécial de la loi de Wiener lorsque $c = 0.5$.

1.7.6 La loi de Bruggeman [42]

La loi de Bruggeman est donnée par la relation:

$$(1 - f) \cdot \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_m}{\varepsilon_1 + \varepsilon_m} + f \cdot \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_m}{\varepsilon_2 + \varepsilon_m} = 0 \quad (1-42)$$

1.7.7 La loi de Hanai [43]

Un des modèles les plus utilisé est celui de Hanai, donné par la relation:

$$\frac{\varepsilon_m - \varepsilon_i}{\varepsilon_h - \varepsilon_i} \cdot \left(\frac{\varepsilon_h}{\varepsilon_m} \right)^{1/3} = 1 - f_i \quad (1-43)$$

ε_h et ε_i représentent respectivement les constantes diélectriques du milieu hôte et des inclusions.

Une forme générale fût donner en introduisant un facteur de dépolariation noté L , et qui varie de 0 à +1:

$$\frac{\varepsilon_m - \varepsilon_i}{\varepsilon_h - \varepsilon_i} \cdot \left(\frac{\varepsilon_h}{\varepsilon_m} \right)^L = 1 - f_i \quad (1-44)$$

Lorsque $L=0$, le modèle devient celui de Wiener pour $c=1$. Lorsque $L=1$, il devient celui de Wiener pour $c=-1$. Ce paramètre dépend essentiellement de la porosité, de la conductivité et de la valeur de la matrice hôte utilisée [18].

1.7.8 La loi de Maxwell-Garnett [44]

La loi de Maxwell-Garnett a été appliquée essentiellement sur des composites à base d'inclusions métalliques encapsulées dans une matrice isolante et pour un faible taux de remplissage (concentration). Par la suite, elle a prouvé sa validité sans restrictions pour tout type de composite. Cette loi est donnée par l'expression :

$$\varepsilon = \varepsilon_m + 3f \cdot \varepsilon_m \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_m}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_m - f(\varepsilon_i - \varepsilon_m)} \quad (1-45)$$

1.8 Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous avons essayé de présenter les notions et formules de base nécessaire à la compréhension de l'origine de la permittivité diélectrique. Nous avons pu montrer comment un point matériel donné peut être source de polarisation et comment les différentes formes de la matière que ce soit un électron, un ion, une molécule ou un grain contribuent dans la formation de la capacité d'un matériau à emmagasiner l'énergie électrique.

Nous avons aussi traité le caractère fréquentielle de la permittivité complexe en exposant le modèle de Debye et la relation entre celle-ci et la fréquence d'excitation qui dépend aussi de la nature et l'état même du milieu matériel.

Étant donné que notre étude est basée sur des milieux matériels hétérogènes et aléatoires, nous avons présenté brièvement quelques lois de mélanges les plus utilisées pour la prédiction de la permittivité effective d'un milieu matériel. Dans le cas où cette permittivité est déjà connue, par exemple à partir d'une caractérisation expérimentale du mélange, ces lois permettent de déterminer les permittivités de ses différents constituants. La caractérisation de tels matériaux et l'instrumentation associée feront l'objet du prochain chapitre.

CHAPITRE 2

Techniques de caractérisation des milieux diélectriques

2.1 Introduction

L'élaboration de nouveaux milieux matériels pour des applications micro-ondes ne peut se faire correctement que si ces « nouveaux nés » font l'objet de caractérisation électromagnétique. Une telle caractérisation nécessite des équipements appropriés associés à des techniques et des méthodes expérimentales convenables et adaptées à la nature matérielle des milieux traités ainsi qu'aux résultats et grandeurs recherchés par cette caractérisation.

Les techniques de caractérisation souvent utilisées pour la détermination des propriétés électromagnétiques des matériaux composites peuvent être classées, selon le milieu de propagation, en deux groupes [45, 46] : les méthodes en espace libre ; les méthodes en milieux guidés.

Le premier type qui est non destructif et sans contact permet des mesures sous incidences variables et ne nécessite pas un usinage préalable des échantillons. Ce type offre la possibilité de couvrir une large bande de fréquence. Néanmoins, il nécessite un équipement complexe et onéreux [45]. Pour le deuxième type et malgré la limitation en fréquence qu'imposent en générale les structures guidées, à cause des modes d'ordres supérieurs au mode fondamental, elles sont très utilisées dans la caractérisation électromagnétique [7, 46] à cause de leur facilité de mise en œuvre et la simplicité du dispositif matériel nécessaire aux mesures. Dans notre cas d'étude nous avons opté pour le deuxième type qui est satisfaisant et répond suffisamment à notre cahier de charges.

Pour les techniques dites « guidées » il en existe deux principales selon le domaine de travail [46] :

- Une technique qui aboutit directement à des grandeurs dépendantes de la fréquence. Pour cette technique, on utilise souvent des analyseurs de réseaux [46 - 48].
- Une technique temporelle qui donne les grandeurs mesurées en fonction du temps. Les systèmes à réponse temporelle ont le grand avantage de montrer directement la « nature » du milieu caractérisé.

Des techniques qui associent une analyse temporelle des signaux avec un traitement fréquentiel adéquat (transformée de Fourier) sont souvent employées grâce à leur simplicité de mise au point et les avantages qu'offrent à l'utilisateur en ajoutant ceux de la réflectométrie temporelle à ceux donnés par les traitements fréquentiels. Elles sont regroupées sous la dénomination: « Spectroscopie en Domaine Temporel » ou SDT [3, 5, 7, 20, 46, 49-63]

Cette technique comprend deux étapes [3, 5, 20] :

- mesure (temporelle) : la première partie est assumée par la méthode de réflectométrie temporelle RDT ou Time Domain Reflectometry (TDR).
- traitement des signaux (fréquentielle) : les données issues de l'étape précédente - qui sont de nature temporelle - sont traitées par des outils mathématiques adéquats afin de les transporter vers le domaine fréquentiel puis d'en tirer les paramètres recherchés.

Toutes les techniques guidées sont basées sur la propagation des ondes électromagnétiques dans un guide d'onde. Il est donc nécessaire de commencer par décrire mathématiquement ce phénomène de propagation et d'en tirer les équations de base que nous allons par la suite utiliser pour faire nos calculs.

2.2 La propagation des ondes électromagnétiques

L'étude de la propagation d'une onde électromagnétique dans les guides d'onde et plus particulièrement dans une ligne coaxiale est nécessaire pour développer les équations qui décrivent cette propagation avec tous ses paramètres, afin de pouvoir extraire les informations utiles pour la résolution du problème déjà posé et qui est : la relation entre la propagation et les paramètres électromagnétiques du milieu. On propose pour cette étude deux démarches qui aboutissent à des résultats similaires mais pour des grandeurs physiques différentes.

2.3 Démarche électrique

2.3.1 Modèle d'une ligne

Les lignes de transmission sont modélisées par des circuits électriques équivalents ayant des paramètres dits "répartis" et qui sont : la conductance, la résistance, la capacité et l'inductance. Tous ces paramètres sont "linéiques". Une ligne de transmission est une mise en cascade de plusieurs tronçons identiques [58, 64-66].

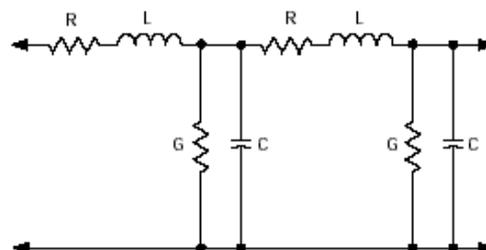


Figure 2-1: Modèle d'une ligne de transmission.

2.3.2 Les équations de propagation

Soit un tronçon d'une ligne de transmission, de longueur 'dx' :

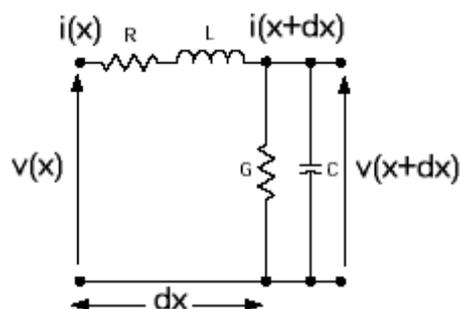


Figure 2-2: Tronçon de longueur 'dx' d'une ligne de transmission.

Au point 'x': $v(x) = V$; $i(x) = I$.

Au point 'x + dx': $v(x+dx)=V-dv$ et $i(x+dx)=I-di$.

Lorsque le signal parcourt la distance 'dx' et arrive au point 'x + dx', on va avoir :

- une chute de tension égale à : $\partial v = R \cdot \partial x \cdot i(x, t) + L \cdot \partial x \cdot \frac{\partial i}{\partial t}$ due aux pertes que présente le conducteur interne;
- une diminution du courant égale à : $\partial i = G \cdot \partial x \cdot v(x, t) + C \cdot \partial x \cdot \frac{\partial v}{\partial t}$ due aux pertes dans le milieu diélectrique.

Ce qui donne:

$$\begin{cases} \frac{\partial v}{\partial x} = R \cdot i + L \frac{\partial i}{\partial t} \\ \frac{\partial i}{\partial x} = G \cdot v + C \frac{\partial v}{\partial t} \end{cases} \quad (2-1)$$

On déduit facilement les équations des télégraphistes:

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} = (LC) \frac{\partial^2 v}{\partial t^2} + (RC + LG) \frac{\partial v}{\partial t} + (RG)v \\ \frac{\partial^2 i}{\partial x^2} = (LC) \frac{\partial^2 i}{\partial t^2} + (RC + LG) \frac{\partial i}{\partial t} + (RG)i \end{cases} \quad (2-2)$$

La ligne de transmission avec laquelle on travaille est une ligne à air à faibles pertes. On peut donc supposer que: $R = 0$ et $G = 0$.

Les équations (2-2) se réduisent à:

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} = (LC) \frac{\partial^2 v}{\partial t^2} \\ \frac{\partial^2 i}{\partial x^2} = (LC) \frac{\partial^2 i}{\partial t^2} \end{cases} \quad (2-3)$$

La résolution de ce système des équations aboutie à une solution de la forme:

$$\begin{cases} v(x, t) = f\left(t + \frac{x}{v_p}\right) + g\left(t - \frac{x}{v_p}\right) \\ i(x, t) = \sqrt{\frac{C}{L}} \cdot \left(f\left(t + \frac{x}{v_p}\right) + g\left(t - \frac{x}{v_p}\right) \right) \end{cases} \quad (2-4)$$

où v_p est la vitesse de propagation qui est définie par: $v_p = \frac{1}{\sqrt{LC}}$

f et g représentent un phénomène de déplacement à la vitesse v_p dans le sens des x négatif pour f et positif pour g .

2.3.3 La constante de propagation

La tension d'entrée nécessite un temps fini pour qu'elle arrive au point x . La tension à ce point présente donc un déphasage temporel qu'on désigne par β . Cette tension sera atténuée à cause des résistances en série et des admittances mises en parallèle. Cette atténuation est exprimée par un coefficient qu'on note " α ".

On définit, à partir de ces deux coefficients, un nouveau paramètre qui caractérise les lignes de transmission qu'on nomme "la constante de propagation", et que l'on note:

$$\gamma = \alpha + j\beta = \sqrt{(R + j\omega L)(G + j\omega C)} \quad (2-5)$$

La vitesse de propagation peut être définie par:

$$v_p = \frac{\omega}{\beta} \quad (2-6)$$

2.3.4 L'impédance caractéristique d'une ligne de transmission

Si on considère une ligne infiniment longue telle que l'onde incidente et l'onde réfléchie ne puissent interférer, on aura en un point quelconque de la ligne :

$$\begin{cases} v(x,t) = f\left(t + \frac{x}{v_p}\right) \\ i(x,t) = \sqrt{\frac{C}{L}} \cdot f\left(t + \frac{x}{v_p}\right) \end{cases} \quad (2-7)$$

$$v(x,t) = \sqrt{\frac{L}{C}} \cdot i(x,t) \quad (2-8)$$

On remarque que le terme $\sqrt{\frac{L}{C}}$ exprime le rapport entre la tension et le courant.

Une telle grandeur est considérée comme une impédance qu'on note Z_c et qu'on appelle : impédance caractéristique de la ligne. Dans le cas général où la ligne présente des pertes, cette impédance sera donnée par:

$$Z_c = \sqrt{\frac{R + j\omega L}{G + j\omega C}} \quad (2-9)$$

2.4 Démarche électromagnétique

2.4.1 Les équations de Maxwell

Une onde électromagnétique est représentée par deux vecteurs : \vec{E} et \vec{H} . Les équations de Maxwell [58, 64-66] donnent les relations qui régissent ces deux grandeurs physiques.

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{\text{rot}} E = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \\ \text{div} \vec{D} = \rho \\ \\ \mu^* = \mu' - j\mu'' \\ \\ \text{div} \vec{B} = 0 \end{array} \right. \quad (2-10)$$

Avec pour un milieu isotrope, homogène et linéaire : $\vec{D} = \varepsilon \vec{E}$, $\vec{B} = \mu \vec{H}$ et $\vec{J} = \sigma \vec{E}$.

ρ : densité de charge.

σ : conductivité électrique du milieu de propagation.

μ : perméabilité magnétique du milieu de propagation.

ε : permittivité diélectrique du milieu de propagation.

\vec{J} : densité de courant.

\vec{E} : champ électrique

\vec{H} : excitation magnétique.

\vec{D} : vecteur de déplacement électrique.

\vec{B} : champ magnétique.

Dans le cas d'un milieu non chargé ($\rho = 0$ et $\sigma = 0$) les relations données dans l'ensemble d'équations (2-10) deviennent:

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{\text{rot}} E = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \\ \vec{\text{rot}} H = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \end{array} \right. \quad (2-11)$$

En remplaçant \vec{B} et \vec{D} par leur expression, on trouve:

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{\text{rot}} E = -\mu \frac{\partial H}{\partial t} \\ \vec{\text{rot}} H = \varepsilon \frac{\partial E}{\partial t} \end{array} \right. \quad (2-12)$$

Ce sont les équations de Maxwell pour un milieu isotrope et linéaire.

La permittivité ε et la perméabilité μ sont des grandeurs complexes qu'on note:

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad (2-13)$$

$$\mu^* = \mu' - j\mu'' \quad (2-14)$$

La résolution du système des équations (2-12) donne l'équation de propagation:

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta \vec{E} - \varepsilon\mu \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \vec{0} \\ \Delta \vec{H} - \varepsilon\mu \frac{\partial^2 \vec{H}}{\partial t^2} = \vec{0} \end{array} \right. \quad (2-15)$$

Une solution particulière de cette équation est "l'onde plane" qui est décrite par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{E} = \vec{E}_m \cdot e^{j\omega t} \cdot e^{-\vec{k} \cdot \vec{r}} \\ \vec{H} = \vec{H}_m \cdot e^{j\omega t} \cdot e^{-\vec{k} \cdot \vec{r}} \end{array} \right. \quad (2-16)$$

\vec{k} est le vecteur d'onde dirigé suivant la direction de la propagation de l'onde, son expression est : $k = \omega \sqrt{\varepsilon\mu}$.

Dans le cas général, cette grandeur est complexe ayant la forme $k = \alpha + j\beta$, où $\beta = 2\pi/\lambda$ avec λ la longueur d'onde. \vec{E}_m et \vec{H}_m dépendent dans ce cas des coordonnées x et y , en supposant que z est la direction de la propagation. Dans ce cas, les expressions finales de \vec{E} et \vec{H} sont:

$$\begin{cases} \vec{E} = E_m(x, y) \cdot e^{j\omega t} \cdot e^{-k \cdot r} \cdot \vec{u}_z \\ \vec{H} = H_m(x, y) \cdot e^{j\omega t} \cdot e^{-k \cdot r} \cdot \vec{u}_z \end{cases} \quad (2-17)$$

2.4.2 L'impédance caractéristique du milieu de propagation

La vitesse de propagation dans un milieu 'i' est définie par:

$$v_i = \frac{1}{\text{Re}[\sqrt{\varepsilon_i \mu_i}]} = \frac{c}{\text{Re}[\sqrt{\varepsilon_i \mu_i}]} \quad (2-18)$$

Où "Re" désigne la partie réelle du nombre complexe traité, $c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}}$ est la vitesse de la lumière dans le vide.

Par analogie avec les résultats de la première démarche, on peut écrire d'après (2-5) et (2-18):

$$L \cdot C = \text{Re}[\varepsilon \cdot \mu] \quad (2-19)$$

L'impédance en un point de la ligne est donnée par : $Z = \frac{E}{H} = \frac{j\omega\mu}{k}$

$$Z = \sqrt{\mu / \varepsilon} \quad (2-20)$$

Pour le cas d'une ligne coaxiale, l'expression de l'impédance caractéristique en fonction ses dimensions est donnée par:

$$Z_c = \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}} \cdot \frac{\ln(b/a)}{2\pi} \quad (2-21)$$

a et b sont respectivement les diamètres intérieur et extérieur de la ligne coaxiale.

Les deux démarches donnent ainsi les équations recherchées. On choisit pour le reste du travail la démarche électromagnétique dans laquelle la contribution des termes de la permittivité et de la perméabilité apparaît directement dans les équations de propagation.

2.5 La réflectométrie temporelle

Pour l'application de la spectroscopie temporelle, on a besoin tout d'abord d'un système de mesure par RDT, composé essentiellement d'un générateur d'échelon, d'une ligne coaxiale, et d'un oscilloscope à échantillonnage [3, 5, 20, 48, 52-54, 59-62, 67]. Cet équipement nécessite en plus un système numérique d'acquisition, de stockage et de traitement des données temporelles mesurées. Un simple micro-ordinateur avec les logiciels appropriés peut assurer ces différentes tâches. Un tel système est schématisé par la figure ci-dessous :

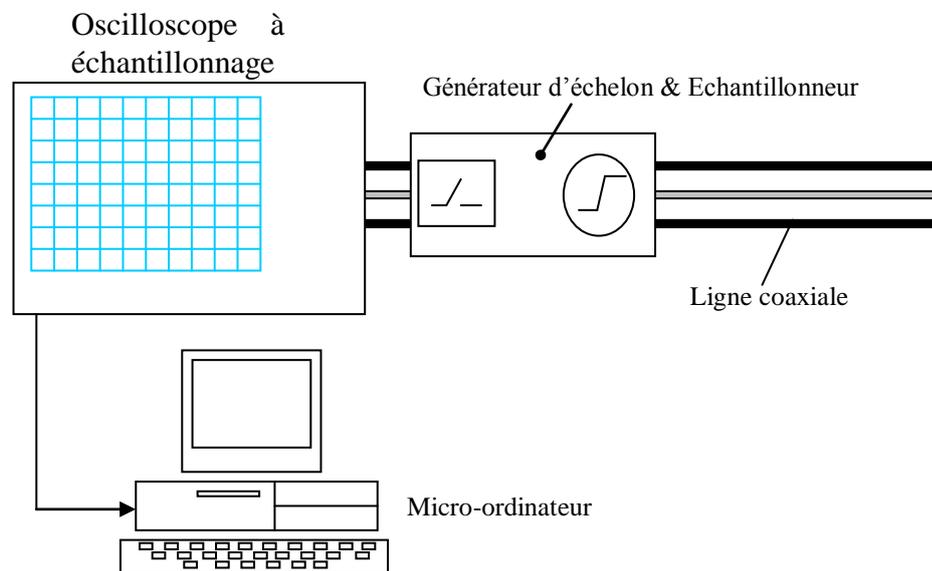


Figure 2-3: L'instrumentation utilisée en Spectroscopie Temporelle.

2.5.1 Principe

La mesure par réflectométrie temporelle s'obtient selon le mode expérimentale suivant : on introduit un échelon de tension à temps de montée très bref de l'ordre de 20 à 30 ps dans une ligne coaxiale supposée sans pertes, et on étudie la réponse d'un échantillon, placé au bout de cette ligne. Un changement d'impédance dans le milieu de propagation sera à l'origine de toute réflexion dans la ligne. L'analyse du coefficient de réflexion permettra par la suite de déterminer les paramètres électromagnétiques désirés, selon la nature du matériau à caractériser [3, 20, 23]. Dans notre cas, on travaille avec des matériaux diélectriques, donc notre intérêt est porté sur l'étude du comportement diélectrique (permittivité complexe) sur une large bande de fréquence.

Expérimentalement, il existe quatre principales méthodes [3, 20, 23] souvent utilisées dans la SDT et qui reposent toutes sur l'étude et l'analyse du coefficient de réflexion. Ces méthodes sont:

- la méthode de la première réflexion;
- les méthodes des réflexions multiples, qui regroupent:
 - la méthode de la ligne court-circuitée.
 - la méthode de la ligne ouverte ;
 - la méthode de la ligne adaptée.

Chacune de ces quatre méthodes a ses propres spécificités qui orientent son choix selon les conditions expérimentales.

2.5.2 Les méthodes expérimentales utilisées en RDT

2.5.3 La méthode de la première réflexion

Dans cette méthode on ne s'intéresse qu'à l'onde réfléchi engendrée par la première réflexion sur le premier dioptré formé par les milieux : air-échantillon (la ligne coaxiale avec laquelle on travaille est une ligne à air. Dans la réalité et comme on va le voir dans le cas des réflexions multiples, l'onde réfléchi totale dans le milieu (1) est la superposition de la première réflexion avec d'autres réflexions générées par le deuxième dioptré.

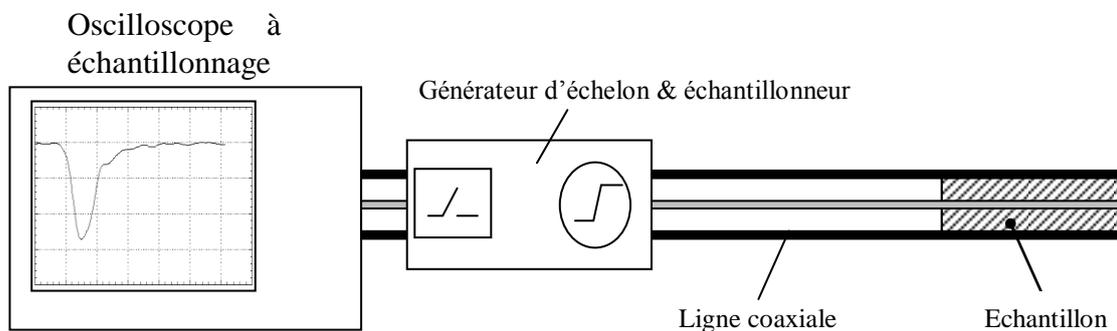


Figure 2-4: Dispositif expérimental pour la première réflexion.

Dans cette méthode, et pour que la contribution de ces réflexions soit nulle, il faut que l'échantillon soit assez long. Dans ce cas, le coefficient de réflexion sur le premier dioptré est donné par la relation :

$$R(\omega) = \frac{Z_{cd} - Z_c}{Z_{cd} + Z_c} \quad (2-22)$$

Où : Z_c est l'impédance caractéristique de la ligne, et Z_{cd} est l'impédance caractéristique du tronçon de la ligne chargé par l'échantillon.

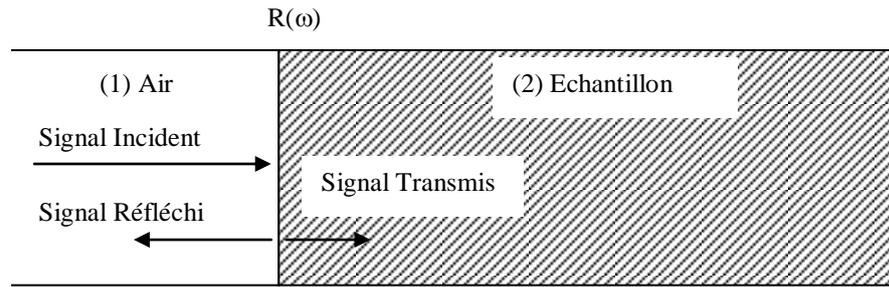


Figure 2-5: Les réflexions dans le cas d'un long échantillon.

Puisque: $Z_{cd} = Z_c \cdot \sqrt{\epsilon_r \cdot \mu_r}$

$$R(\omega) = \frac{1 - \sqrt{\frac{\epsilon_r}{\mu_r}}}{1 + \sqrt{\frac{\epsilon_r}{\mu_r}}} \quad (2-23)$$

$$\sqrt{\frac{\epsilon_r}{\mu_r}} = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega)} \quad (2-24)$$

ϵ_r et μ_r sont des grandeurs complexes qu'on peut écrire sous la forme:
 $\epsilon_r^* = \epsilon_r' - j\epsilon_r''$ et $\mu_r^* = \mu_r' - j\mu_r''$.

Pour la simplicité et la lisibilité des équations, on a choisit d'omettre l'astérisque tout en gardant dans l'esprit que ce sont bien des valeurs complexes.

Dans notre cas d'étude, les matériaux utilisés sont des céramiques (diélectriques) et leur perméabilité relative est voisine de l'unité, donc on peut simplifier l'expression précédente en écrivant:

$$\sqrt{\epsilon_r} = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega)} \quad (2-25)$$

Et comme $R(\omega)$ est une grandeur complexe, on peut l'exprimer par sa partie réelle et imaginaire:

$$R(\omega) = R'(\omega) + jR''(\omega) \quad (2-26)$$

Dans ce cas ε_r devient:

$$\sqrt{\varepsilon_r} = \frac{1 - R'(\omega) - jR''(\omega)}{1 + R'(\omega) + jR''(\omega)} \quad (2-27)$$

On peut écrire :

$$\sqrt{\varepsilon_r} = a - jb = \frac{1 + R'(\omega) - jR''(\omega)}{1 + R'(\omega) + jR''(\omega)} \quad (2-28)$$

$$\begin{cases} a = \frac{1 - R'(\omega)^2 - R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \\ b = \frac{-2R''(\omega)}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \end{cases} \quad (2-29)$$

Puisque $\varepsilon_r' = a^2 - b^2$ et $\varepsilon_r'' = 2ab$, et si on remplace a et b par leurs valeurs on va trouver :

$$\begin{cases} \varepsilon_r' = \left(\frac{1 - R'(\omega)^2 - R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \right)^2 - \left(\frac{-2R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \right)^2 \\ \varepsilon_r'' = 2 \cdot \frac{1 - R'(\omega)^2 - R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \cdot \frac{-2R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \end{cases} \quad (2-30)$$

Les équations (2-30) expriment les parties réelle et imaginaire de la permittivité relative de l'échantillon en fonction du coefficient de réflexion complexe. Il suffit donc de connaître celui-ci, ce qui est réalisé par la SDT, pour en déterminer ε_r .

On constate la simplicité dans les calculs qu'offre cette méthode, néanmoins, elle nécessite que l'échantillon soit assez long pour qu'on puisse négliger les réflexions multiples générées à l'intérieur de celui-ci. Donc cette méthode n'est applicable que pour de tels échantillons ce qui n'est pas notre cas.

2.5.4 Les méthodes des réflexions multiples

Ces méthodes et contrairement à la première méthode présentée ci-dessus, prennent en considération les réflexions générées entre les deux dioptries (air-échantillon et échantillon-

charge terminale). Le coefficient de réflexion totale dans le milieu (1) va donc porter la contribution de toutes ces réflexions.

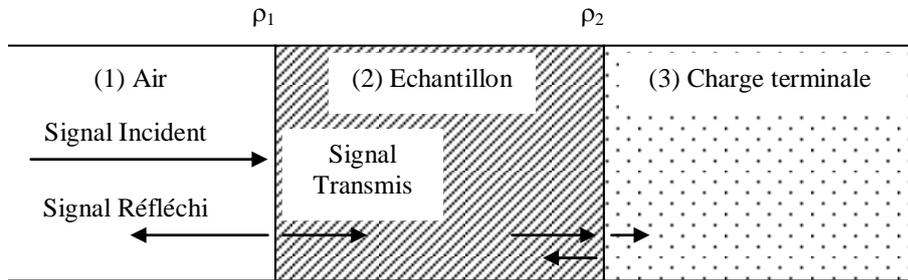


Figure 2-6: Réflexions multiples dans un échantillon.

Avant d'aborder le reste de cette étude, analysant d'abord la réflexion produite par l'incidence normale d'une onde plane sur un échantillon de longueur d . D'après la figure 2-6, on voit bien que lorsqu'une onde en incidence normale arrive au niveau du premier dioptré, une partie de cette onde va pénétrer à l'intérieur de l'échantillon tandis que l'autre partie va être réfléchiée.

La partie transmise va se propager avec une constante de propagation $\gamma_2 = j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\epsilon_r \cdot \mu_r}$ tout au long de l'échantillon jusqu'à qu'elle rencontre le deuxième dioptré, à ce niveau elle va subir le même sort que celui de l'onde incidente fondamentale.

La partie réfléchiée va cette fois-ci retourner vers le premier dioptré et va générer aussi deux autres ondes : réfléchiée et transmise. L'onde transmise du milieu (2) vers le milieu (1) va s'ajouter à l'onde réfléchiée fondamentale.

Donc à la fin, l'onde réfléchiée totale va être la somme de l'onde réfléchiée fondamentale plus les ondes réfléchiées secondaires générées par les réflexions multiples, et on écrit :

$$E_r = E_{r0} + E_{r1} + \dots = \sum_{i=0}^{\infty} E_{ri} \quad (2-31)$$

Le coefficient de réflexion totale sera:

$$R(\omega) = \frac{\rho_1 + \rho_2 \cdot e^{-2\gamma_2 d}}{1 + \rho_1 \rho_2 \cdot e^{-2\gamma_2 d}} \quad (2-32)$$

Où ρ_1 et ρ_2 sont respectivement les coefficients de réflexion sur le premier et le second dioptré, et qui sont définis par les relations suivantes :

$$\rho_1(\omega) = \frac{Z_{cd} - Z_c}{Z_{cd} + Z_c} \quad (2-33)$$

$$\rho_2(\omega) = \frac{Z_c - Z_{cd}}{Z_c + Z_{cd}} \quad (2-34)$$

C'est à partir de ces expressions que vont se baser tous nos calculs pour les différentes méthodes.

Revenant maintenant aux méthodes de réflexions multiples. En fait, il existe trois méthodes principales et qui se diffèrent seulement par la valeur de la charge terminale Z_t posée entre l'échantillon à caractériser et l'extrémité de la ligne coaxiale (ou du guide en général).

Ces trois méthodes sont :

- la méthode de la ligne court-circuitée ;
- la méthode de la ligne ouverte ;
- la méthode de la ligne adaptée.

2.5.4.1 La méthode de la ligne court-circuitée

Dans cette méthode, la charge terminale est un court-circuit entre le conducteur central et le conducteur externe dans le cas d'une ligne coaxiale (figure 2-7). Dans ce cas : $Z_t=0$.

$$\rho_2(\omega) = \frac{-Z_{cd}}{Z_{cd}} = -1 \quad (2-35)$$

$$R(\omega) = \frac{\rho_1 - e^{-2\gamma_2 d}}{1 - \rho_1 \cdot e^{-2\gamma_2 d}} \quad (2-36)$$

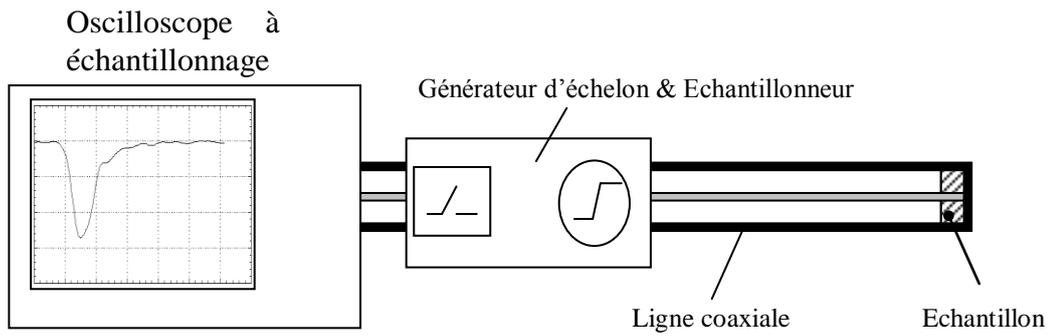


Figure 2-7: Dispositif expérimental en ligne court-circuitée.

Le système (ligne-échantillon-charge terminale) peut être représenté par celui de la figure ci-dessous:

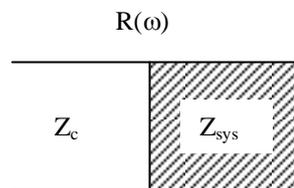


Figure 2-8: Les impédances dans la ligne de mesure court-circuitée.

Où:

$$R(\omega) = \frac{Z_{sys} - Z_c}{Z_{sys} + Z_c} \quad (2-37)$$

En utilisant la notion de l'impédance normalisée (ou réduite) qu'on définit par :

$$z(\omega) = \frac{Z_{sys}}{Z_c} \quad (2-38)$$

On peut écrire:

$$R(\omega) = \frac{z(\omega) - 1}{z(\omega) + 1} \quad (2-39)$$

$$z(\omega) = \frac{1 + R(\omega)}{1 - R(\omega)} \quad (2-40)$$

Donc pour déterminer $z(\omega)$ il suffit d'avoir $R(\omega)$. On rappelle que ces deux grandeurs sont complexes. Lorsqu'on remplace $R(\omega)$ par son expression, on trouve:

$$z(\omega) = \frac{1 + \rho_1 + (1 + \rho_1) \cdot e^{-2\gamma_2 d}}{1 - \rho_1 + (1 - \rho_1) \cdot e^{-2\gamma_2 d}} \quad (2-41)$$

$$z(\omega) = \frac{(1 + \rho_1)(1 - e^{-2\gamma_2 d})}{(1 - \rho_1)(1 + e^{-2\gamma_2 d})} \quad (2-42)$$

Sachant que:
$$\rho_1 = \frac{1 - \sqrt{\frac{\epsilon_r}{\mu_r}}}{1 + \sqrt{\frac{\epsilon_r}{\mu_r}}}$$

On déduit:

$$\sqrt{\frac{\mu_r}{\epsilon_r}} = \frac{(1 + \rho_1)}{(1 - \rho_1)} \quad (2-43)$$

Et comme:

$$\tanh(\gamma_2 d) = \frac{1 - e^{-2\gamma_2 d}}{1 + e^{-2\gamma_2 d}} \quad (2-44)$$

On obtient à partir des équations (2-42), (2-43) et (2-44) :

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\epsilon_r}} \cdot \tanh(\gamma_2 d) \quad (2-45)$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\epsilon_r}} \cdot \tanh\left(j \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\epsilon_r \mu_r} \cdot d\right) \quad (2-46)$$

Il suffit de résoudre l'équation (2-39) pour trouver les paramètres ϵ_r et μ_r .

Résolution de l'équation « $z(\omega) = f(\mu_r, \varepsilon_r)$ »:

Pour le cas des matériaux purement diélectriques où $\mu_r = 1$, l'équation précédente devient:

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_r}} \cdot \tanh\left(j \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r} \cdot d\right) \quad (2-47)$$

Cette équation peut être numériquement résolue par les méthodes itératives classiques (ex.: méthode de Newton).

Dans le cas où $\gamma_2 d \ll 1$, ce qui est le cas en basses fréquences, on peut faire une approximation de la tangente hyperbolique par son développement limité au voisinage de zéro.

$\because x \ll 1 \Rightarrow \tanh(x) \cong x$. Dans ce cas, on aura :

$$\tanh(\gamma_2 d) = \gamma_2 d \quad (2-48)$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \gamma_2 \cdot d \quad (2-49)$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot j \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r \mu_r} \cdot d \quad (2-50)$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot j \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r \mu_r} \cdot d \quad (2-51)$$

$$z(\omega) = j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot d \cdot \mu_r \quad (2-52)$$

On voit bien que cette démarche fait disparaître le paramètre ε_r . Donc on peut conclure que lorsque $\gamma_2 d$ est assez petit, c'est à dire dans le cas des basses fréquences ou celui où l'échantillon est assez mince (d est assez petit), la méthode de la ligne court-circuitée ne permet pas de calculer la permittivité diélectrique de l'échantillon. Pourtant, elle présente une simplicité remarquable pour la détermination de la perméabilité magnétique pour les matériaux magnétiques.

2.5.4.2 La méthode de la ligne ouverte

Dans cette méthode, on ne place que l'échantillon au bout de la ligne. La configuration du montage est la suivante :

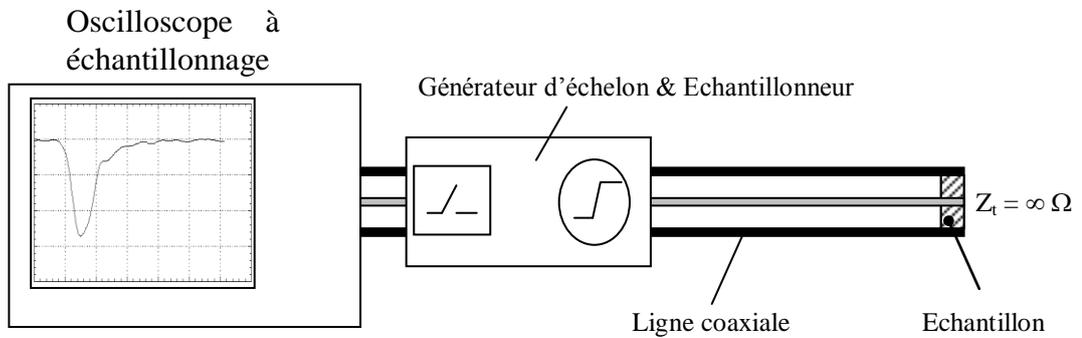


Figure 2-9: Dispositif expérimental en ligne ouverte.

Le système peut être approché à celui de la figure ci-dessous :

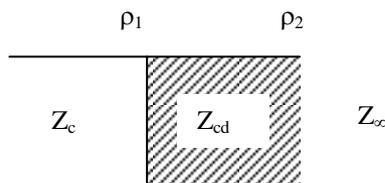


Figure 2-10: les impédances dans la ligne de mesure ouverte.

Il en résulte:

$$\rho_1(\omega) = \frac{Z_{cd} - Z_c}{Z_{cd} + Z_c} \tag{2-53}$$

$$\rho_2(\omega) = \frac{Z_L - Z_{cd}}{Z_L + Z_{cd}} \cong 1 \tag{2-54}$$

Dans ce cas:

$$R(\omega) = \frac{\rho_1 + e^{-2\gamma_2 d}}{1 + \rho_1 \cdot e^{-2\gamma_2 d}} \tag{2-55}$$

En suivant la même démarche que pour la méthode précédente, on arrive à :

$$z(\omega) = \frac{1 + \rho_1 + (1 + \rho_1) \cdot e^{-2\gamma_2 d}}{1 - \rho_1 + (1 - \rho_1) \cdot e^{-2\gamma_2 d}} \quad (2-56)$$

$$z(\omega) = \frac{(1 + \rho_1)(1 + e^{-2\gamma_2 d})}{(1 - \rho_1)(1 - e^{-2\gamma_2 d})} \quad (2-57)$$

Lorsque $\varepsilon_r \cdot \mu_r \neq 0$, on peut écrire :

$$z(\omega) = \frac{1 + \rho_1}{1 - \rho_1} \cdot \tanh(\gamma_2 \cdot d) \quad (2-58)$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \tanh\left(j \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r \mu_r} \cdot d\right) \quad (2-59)$$

En basses fréquences et en faisant un développement limité de la tangente hyperbolique au voisinage de zéro, on va trouver :

$$\tanh(x) \cong x \Rightarrow z(\omega) = \frac{\sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}}{j \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r \mu_r} \cdot d} \quad (2-60)$$

$$z(\omega) = \frac{1}{j \frac{\omega}{c} \cdot \varepsilon_r \cdot d} \quad (2-61)$$

$$\varepsilon_r(\omega) = \varepsilon_r^*(\omega) = \frac{1}{j \frac{\omega}{c} \cdot d \cdot z(\omega)} \quad (2-62)$$

On peut dire que cette méthode est bien adaptée pour l'étude en basses fréquences des matériaux purement diélectriques, en revanche elle ne l'est pas lorsqu'il s'agit de matériaux magnétiques à cause de la disparition du paramètre μ_r .

Rappelons que lorsqu'un matériau diélectrique présente une conductivité électrique non nulle, l'expression de sa constante diélectrique aura la forme suivante :

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_r'(\omega) - j(\varepsilon_r''(\omega) + \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0}) \quad (2-63)$$

Et comme :
$$\varepsilon_r^*(\omega) = \frac{1}{j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot d \cdot z(\omega)}$$

$$\varepsilon_r'(\omega) - j(\varepsilon_r''(\omega) + \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0}) = \frac{1}{j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot d \cdot z(\omega)} \quad (2-64)$$

Lorsque: $\omega \rightarrow 0 \Rightarrow z(\omega) \rightarrow z(0)$ et $z(0) = \frac{1 + R(0)}{1 - R(0)}$.

$$\sigma = \frac{c \cdot \varepsilon_0}{z(0) \cdot d} \quad (2-65)$$

On voit bien que cette méthode permet de déterminer la conductivité électrique dans les matériaux diélectriques à faibles pertes.

2.5.4.3 La méthode de la ligne adaptée

Le montage dans cette configuration est donné par la figure 2-11:

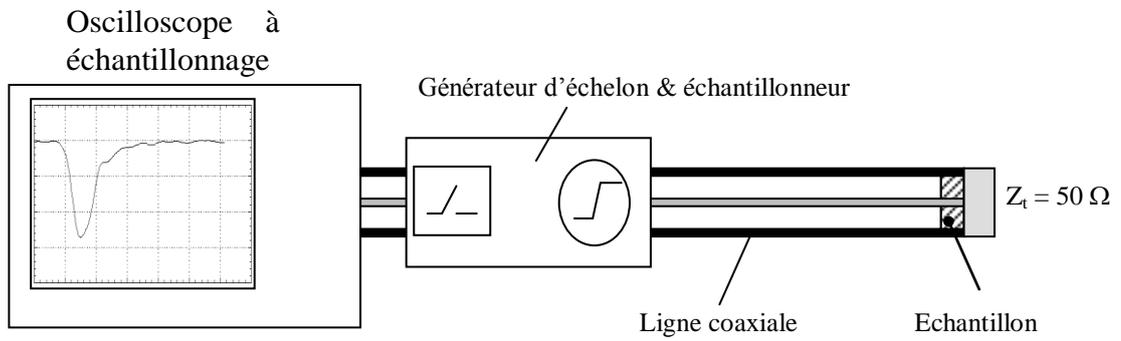


Figure 2-11: Dispositif expérimental en ligne adaptée.

Dans ce cas, la charge terminale est égale à l'impédance caractéristique du guide : $Z_t = Z_c$, on obtient donc:

$$\rho_1(\omega) = \frac{Z_{cd} - Z_c}{Z_{cd} + Z_c} \quad (2-66)$$

et

$$\rho_2(\omega) = \frac{Z_c - Z_{cd}}{Z_c + Z_{cd}} \quad (2-67)$$

$$\rho_2 = -\rho_1 \quad (2-68)$$

Le coefficient de réflexion donné par l'équation (2-55) deviendra dans ce cas:

$$R(\omega) = \frac{\rho_1(1 - \rho_1 \cdot e^{-2\gamma_2 d})}{1 - \rho_1^2 \cdot e^{-2\gamma_2 d}} \quad (2-69)$$

En appliquant l'expression de l'impédance réduite donnée par (2-33) sur ce système, on aboutit à:

$$z(\omega) = \frac{\frac{1 + \rho_1(1 - e^{-2\gamma_2 d})}{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d}}}{\frac{1 - \rho_1(1 - e^{-2\gamma_2 d})}{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d}}} \quad (2-70)$$

$$z(\omega) = \frac{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d} + \rho_1(1 - e^{-2\gamma_2 d})}{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d} - \rho_1(1 - e^{-2\gamma_2 d})} \quad (2-71)$$

$$z(\omega) = \frac{(1 + \rho_1)(1 - \rho_1 \cdot e^{-2\gamma_2 d})}{(1 + \rho_1)(1 + \rho_1 \cdot e^{-2\gamma_2 d})} \quad (2-72)$$

En remplaçant par son expression en fonction de ε_r et μ_r on aboutit à :

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \frac{\left(\frac{1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{1 - \frac{\sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{\sqrt{\mu_r}} \cdot e^{-2\gamma_2 d}} \right)}{\left(\frac{1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{1 + \frac{\sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{\sqrt{\mu_r}} \cdot e^{-2\gamma_2 d}} \right)} \quad (2-73)$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \frac{1 - e^{-2\gamma_2 d} + \sqrt{\varepsilon_r} \cdot (1 + e^{-2\gamma_2 d})}{\sqrt{\mu_r} \cdot (1 + e^{-2\gamma_2 d}) + \sqrt{\varepsilon_r} \cdot (1 + e^{-2\gamma_2 d})} \quad (2-74)$$

Et comme : $\tanh(\gamma_2 d) = \frac{1 - e^{-2\gamma_2 d}}{1 + e^{-2\gamma_2 d}}$; en divisant les 2 membres du rapport par $1 - e^{-2\gamma_2 d}$

on trouve :

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \frac{1 + \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \tanh(\gamma_2 \cdot d)}{\sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \tanh(\gamma_2 \cdot d)} \quad (2-75)$$

Puisque : $\gamma_2 = j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r \cdot \mu_r}$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \frac{1 + \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r \cdot \mu_r} \cdot d\right)}{\sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} \cdot \tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r \cdot \mu_r} \cdot d\right)} \quad (2-76)$$

Dans le cas où $\mu_r = 1$:

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_r}} \cdot \frac{1 + \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_r}} \cdot \tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r} \cdot d\right)}{\sqrt{\frac{1}{\varepsilon_r}} \cdot \tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r} \cdot d\right)} \quad (2-77)$$

Pour simplifier les calculs on utilise l'admittance à la place de l'impédance. Donc :

$$y(\omega) = \frac{1}{z(\omega)} = \sqrt{\varepsilon_r} \cdot \frac{1 + \sqrt{\varepsilon_r} \cdot \tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r} \cdot d\right)}{\sqrt{\varepsilon_r} \cdot \tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r} \cdot d\right)} \quad (2-78)$$

Afin de résoudre cette équation, on la décompose en partie réelle et partie imaginaire. On pose donc:

$$\sqrt{\varepsilon_r} = a + jb \quad (2-79)$$

$$\tanh(\gamma_2 d) = c + jd \quad (2-80)$$

$$y(\omega) = (a + jb) \cdot \frac{1 + (a + jb)(c + jd)}{(a + jb) + (c + jd)} \quad (2-81)$$

L'admittance réduite $y(\omega)$ peut être calculée, comme on l'a déjà vue, à partir des valeurs expérimentales de $R(\omega)$. En séparant ses 2 parties réelle et imaginaire, on trouve :

$$\text{Re}[y(\omega)] = \frac{(1 + ac - bd)(c + a) - (ad + bc)(d + b)}{(c + a)^2 - (d + b)^2} \quad (2-82)$$

$$\text{Im}[y(\omega)] = \frac{(1 + ac - bd)(d + b) + (ad + bc)(c + a)}{(c + a)^2 - (d + b)^2} \quad (2-83)$$

La résolution de ces deux équations donnera les fonctions $c = f(a, b)$ et $d = g(a, b)$. En les remplaçant dans l'équation $\tanh(\gamma_2 d) = c + jd$, on va trouver les valeurs de a et b , donc la valeur de $\sqrt{\varepsilon_r}$.

Une autre démarche peut être utilisée lorsque ω tend vers 0 ('t' tend vers l'infini) et lorsque $\gamma_2 d \ll 1$. Dans ce cas on peut approximer l'exponentiel à son développement limité au premier ordre: $e^{-2\gamma_2 d} \cong 1 - 2\gamma_2 d$, ainsi :

$$R(\omega \rightarrow 0) \cong \frac{2\rho_1\gamma_2 d}{1 - \rho_1^2 + 2\rho_1^2 \cdot \gamma_2 d} \quad (2-84)$$

$$\text{Puisque : } \gamma_2 = j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r} \text{ et } \rho_1 = \frac{1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{1 + \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}};$$

On obtient après remplacement :

$$R(\omega \rightarrow 0) = \frac{2jd \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_r} \cdot \frac{1 - \sqrt{\varepsilon_r}}{1 + \sqrt{\varepsilon_r}}}{1 - \left[\frac{(1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}})}{(1 + \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}})} \right]^2 + 2 \cdot \left[\frac{(1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}})}{(1 + \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}})} \right]^2 \cdot d \cdot j \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{\varepsilon_r}} \quad (2-85)$$

En simplifiant l'expression (2-85) on obtient finalement :

$$R(\omega \rightarrow 0) = \frac{j \cdot d \cdot \frac{\omega}{c} \cdot (1 - \varepsilon_r)}{2 + j \cdot d \cdot \frac{\omega}{c} \cdot (1 - \sqrt{\varepsilon_r})^2} \quad (2-86)$$

Pour un matériau qui présente une conductivité électrique non nulle, l'expression de la constante diélectrique prend la forme :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) - j \cdot \left(\varepsilon''(\omega) + \frac{\sigma}{\omega \cdot \varepsilon_0} \right) \Rightarrow R(0) = \frac{-\sigma \cdot d / c \cdot \varepsilon_0}{2 + \sigma \cdot d / c \cdot \varepsilon_0} \quad (2-87)$$

$$\frac{\sigma \cdot d}{c \cdot \varepsilon_0} \cdot (R(0) - 1) = -2 \cdot R(0) \quad (2-88)$$

$$\sigma = \frac{2 \cdot c \cdot \varepsilon_0}{d} \cdot \frac{R(0)}{1 + R(0)} \quad (2-89)$$

On peut grâce à cette démarche calculer la conductivité électrique du matériau en connaissant seulement la valeur asymptotique de $R(t)$ quand t tend vers l'infini c.à.d. $\omega \rightarrow 0$

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes méthodes expérimentales utilisées en réflectométrie temporelle pour la caractérisation électromagnétique des milieux diélectriques.

Le choix de la méthode à utiliser s'est fait selon plusieurs considérations. D'abord il y a les contraintes mécaniques qui imposent que l'échantillon ne peut pas atteindre des longueurs importantes et il doit se limiter à une longueur (ou épaisseur) relativement petite. Ceci dit, la méthode de la première réflexion, qui nécessite des échantillons de grandes longueurs, est déjà à écarter. Donc, on est ramené à utiliser les méthodes des réflexions multiples.

La méthode du court-circuit, et comme on l'a déjà mentionné, ne permet pas la détermination de la permittivité diélectrique dans les basses fréquences ou lorsque les échantillons sont assez minces, ce qui est notre cas.

Les deux dernières méthodes qui nous restent sont les plus appropriées pour notre cas d'étude. Cependant, pour la méthode de la ligne ouverte l'inconvénient majeur est l'impossibilité d'avoir une impédance terminale infinie.

La méthode de la charge adaptée reste la plus pratique notamment qu'elle permet la détermination directe de la nature du matériau à partir des courbes temporelles expérimentales, et permet aussi de calculer la conductivité électrique du matériau à partir de la valeur asymptotique du coefficient de réflexion.

Finalement, on a opté pour cette dernière méthode qui est la plus convenable à nos matériaux.

CHAPITRE 3

Démarche expérimentale

3.1 Introduction

Dans le présent chapitre, nous présentons le volet pratique et expérimentale de cette étude en commençant par le mode de préparation des échantillons, en passant par la méthode de caractérisation par le banc de réflectométrie temporelle et en arrivant à l'exposé des résultats bruts obtenus. Les matériaux qu'on a utilisé pendant toutes nos expériences sont à base de : BaTiO_3 (Titanate de Baryum), CaTiO_3 (Titanate de Calcium), MgTiO_3 (Titanate de Magnésium), CuO (Oxyde de Cuivre), MgO (Oxyde de Magnésium) et la Résine Epoxyde qui joue le rôle de matrice (ou de support) qui enrobe et lie les grains des charges, et minimise ainsi le volume des pores d'air. Les caractéristiques techniques des matériaux cités précédemment sont données en annexe. Les matériaux à faible permittivité (comprise entre 6 et 10) possèdent des pertes très faibles (comprises entre 3 et $10 \cdot 10^{-5}$, soit Q compris entre 10 000 et 20 000) et sont destinés aux fréquences comprises entre 50 et 100GHz ; les matériaux à permittivité moyenne (comprise entre 15 et 25) sont utilisés dans la gamme de 20 à 30GHz ; ceux dont la permittivité est comprise entre 30 et 40 sont utilisés dans le spectre 7-12 GHz ; et enfin ceux dont la permittivité est supérieure à 50 ont des pertes relativement élevées ($\tan \delta = 10^{-3}$) et sont destinés aux fréquences comprises entre 0,8 et 3GHz [68].

3.2 Matériaux utilisés

3.2.1 Les Titanates [3]

Le mot titanate est un terme de chimie qui désigne un sel produit par la combinaison de l'acide titanique avec une base. Les titanates peuvent présenter différentes formes cristallines. La structure cristalline de base est la « pérovskite ». La pérovskite est une structure cristalline commune à de nombreux oxydes. Ce nom a d'abord désigné le titanate de Calcium de formule CaTiO_3 , avant d'être étendu à l'ensemble des oxydes de formule générale ABO_3 présentant la même structure. Les pérovskites présentent un grand intérêt en raison de la très grande variété de propriétés que présentent ces matériaux selon le choix des éléments A et B : ferroélasticité (SrTiO_3), ferroélectricité (BaTiO_3), antiferroélectricité (PbZrO_3), ferromagnétisme (YTiO_3), antiferromagnétisme (LaTiO_3) et autres.

La structure pérovskite de plus haute symétrie est une structure de symétrie cubique. C'est par exemple la structure du titanate de baryum BaTiO_3 à hautes températures. Dans la structure pérovskite cubique, les anions (ici O^{2-}) forment un réseau d'octaèdres liés par leurs sommets. Le centre de chaque octaèdre est appelé site B. Il est occupé par un cation, dans cet exemple Ti^{4+} . Ce cation, de coordinence 6, est sur un site à environnement octaédrique d'oxygène. Les espaces entre les octaèdres sont des cuboctaèdres dont le centre constitue le site A. La coordinence des ions A est 12 : ils sont sur un site à environnement cubique d'oxygène (le baryum dans la figure 3-1).

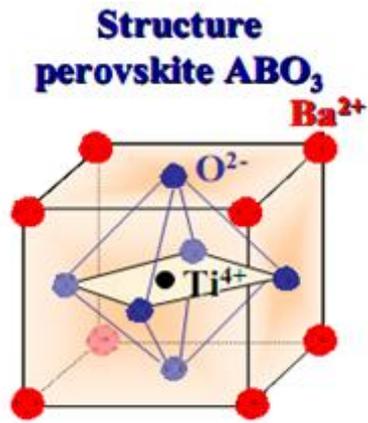


Figure 3-1: Structure pérovskite.

Le TBa et le TCa ont tous les deux une structure pérovskite. Par ailleurs, le TMg présente une structure dite ilménite. Ce mot est celui d'un oxyde minéral de fer et de titane de formule chimique $FeTiO_3$ qui appartient au système cristallin trigonal et qui se trouve dans les roches métamorphiques et plutoniques basiques. Son réseau est rhomboédrique.

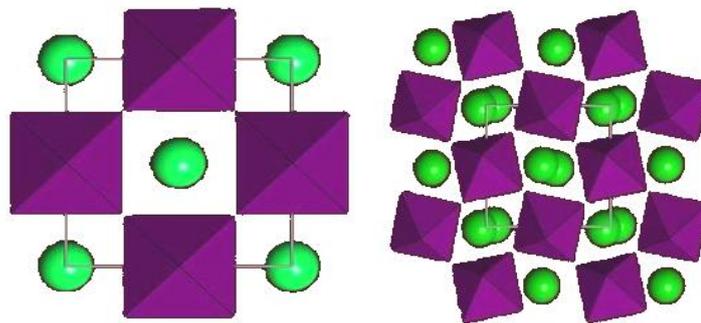


Figure 3-2: Structure cristalline du $MgTiO_3$



Figure 3-3: L'ilménite

À température ambiante, l'ilménite est paramagnétique, mais elle devient antiferromagnétique à environ 55 K.

3.2.2 Les Oxydes

a) L'oxyde de cuivre : CuO

Dans la nature, le CuO se présente sous forme de la ténorite qui est un minéral composé d'oxyde de cuivre. Elle apparaît dans les gisements profonds associée avec le sulfate de cuivre. On la rencontre communément avec la chrysocolle et le carbonate de cuivre, l'azurite et la malachite. La ténorite de couleur gris terne contraste souvent avec les bleus de la chrysocolle.



Figure 3-4: La ténorite

b) L'oxyde de Magnésium : MgO

L'oxyde de magnésium, couramment appelé magnésie, a pour formule MgO et se présente sous la forme de poudre blanche.



Figure 3-5: L'oxyde de Magnésium

Il possède une masse volumique de l'ordre de $3,6 \text{ g/cm}^3$. Il possède une structure cristalline cubique faces centrées.

Les propriétés de la magnésie dépendent grandement de la température à laquelle elle est obtenue. Elle entre dans une grande variété d'applications industrielles, comme pigment pour les peintures, charge pour le papier et certains matériaux synthétiques, agent de neutralisation. Elle trouve ses principales utilisations comme matériaux réfractaires : briques pour la construction de fours, revêtement interne des creusets utilisés en métallurgie, produit ignifugeant pour l'industrie du bâtiment.

3.3 Détermination des fractions volumiques en fonction des poids des charges [3, 20]

Etant donné que les lois de mélanges sont fonctions des fractions volumiques, on doit impérativement travailler avec des volumes. Pour les titanates qui se présentent sous forme de poudre, la mesure directe du volume n'est pas possible, on est amené donc à peser les masses exactes qui correspondent à des volumes bien déterminés.

Le passage d'un volume vers sa masse est réalisé de la manière suivante:

- on fixe d'abord le volume total V_{tot} d'un échantillon (selon les dimensions du moule).
- Ensuite, on fixe la fraction volumique $F_{matrice}$ de la matrice (résine époxyde).
On déduit le volume de la matrice nécessaire : $V_{matrice} = V_{tot} \cdot F_{matrice}$.
- On fixe la fraction volumique V_{charge} d'une charge donnée.
- On calcule le volume V_{charge} correspondant à cette fraction volumique :
 $V_{charge} = V_{tot} \cdot F_{charge}$.
- Finalement, on calcule la masse M_{charge} de ce volume, en utilisant la densité de la charge D_{charge} : $M_{charge} = D_{charge} \cdot V_{charge}$.

Pour la pesée des différentes poudres, nous avons utilisé une balance électronique de 1mg de précision (figure 3-6).



Figure 3-6: La balance électronique utilisée dans la pesée des différentes poudres.

3.4 Mode de préparation

On verse dans un récipient la résine qui est constituée d'un volume de résine époxyde pure et d'un même volume de durcisseur.

On mélange les deux produits jusqu'à ce qu'ils forment un seul liquide visqueux. On remarque l'apparition des bulles d'air qui sont évacuées par la résine.

Ensuite, on verse les charges voulues et on commence à bien mélanger le tout, jusqu'à ce qu'il ne reste aucun grain isolé dans le mélange.

On continue à mélanger encore afin d'obtenir un mélange le plus homogène possible. La résine doit enrober toute la poudre. Il faut signaler que la phase de mélange détermine la qualité de l'homogénéité du produit final.

Après cela, on commence à couler doucement le mélange dans un moule de forme parallélépipède, après avoir essuyé ses parois intérieures par de la cire, afin de faciliter le démoulage ultérieur.

Chaque échantillon est composé donc de 70% de résine Époxyde et de 30% de charge. Cette charge est un mélange de Titanates et d'oxyde selon des fractions volumiques bien définies (0%, 7.5%, 15%, 22.5% et 30%).

Les grains des poudres des charges sont liés après la polymérisation de la résine Époxyde, qui doit enrober l'ensemble des grains. L'utilisation de la résine, qui remplace le volume d'air qui se trouve entre les grains, permet de contrôler le volume exacte de cette troisième phase du composite ternaire.

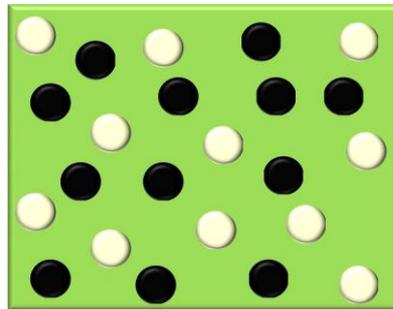


Figure 3-7: Représentation des inclusions (charges) dans la matrice hôte (résine).

A cause de la grande viscosité que présente le mélange, surtout pour les grandes fractions volumiques des charges, on fait couler le mélange en essayant d'avoir une distribution spatiale uniforme dans le moule. Une fois le mélange coulé, on le laisse pendant plus de seize heures jusqu'à polymérisation complète de la résine. Dans ce temps, on peut observer le phénomène de dégazage des bulles d'air. L'utilisation d'un vibreur aurait aidé à éliminer ces bulles de l'intérieur du mélange. Une fois que la résine est complètement polymérisée et le mélange devenu ferme, on commence à le démouler soigneusement.

On obtient ainsi, un matériau composite relativement dur, de couleur qui varie du crème au blanc jaune, selon la concentration des charges.

Remarque :

Plus on augmente la fraction volumique de la charge et plus on trouve une difficulté pour maintenir les grains par la résine, et elle devient saturée. La viscosité du mélange augmente, et on rencontre alors une autre difficulté dans l'écoulement du mélange dans le moule. C'est essentiellement à cause de cette contrainte qui détermine la fraction des charges maximale qu'on ne peut pas dépasser.

3.5 Usinage des échantillons

Pour la caractérisation sur un banc de TDR, on a besoin d'échantillons tubulaires. Cette forme est obtenue en faisant une extraction avec un foret cylindrique creux, de dimensions adéquates (7 mm de diamètre), à partir des échantillons parallélépipèdes. On effectue ensuite un perçage d'un trou de 3 mm de diamètre. Un polissage est nécessaire pour ajuster les échantillons aux dimensions du guide coaxial utilisé en TDR ($a=3.04$ mm et $b=7$ mm), et obtenir des surfaces planes et perpendiculaires. L'échantillon, une fois préparé et usiné, ressemble à celui de la figure 3-8.

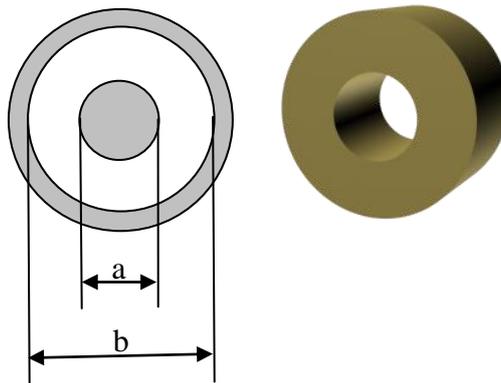


Figure 3-8: La forme du guide et de l'échantillon.

L'usinage des échantillons a été réalisé au niveau du laboratoire d'instrumentation scientifique, mais l'ajustement des dimensions a été fait en Espagne pendant les stages, en fonction des dimensions de la cellule de mesure de standard APC-7. L'outillage utilisé pour cette opérations est composé de:

- Un étau : utiliser pour fixer l'échantillon pendant l'ajustement de ses dimensions et sa forme finale.
- Un jeu de scies : utiliser pour le découpage des échantillons.
- Un jeu de limes : utiliser pour raffiner l'épaisseur de l'échantillon.
- Papier de verre en trois calibres pour le lissage des surfaces des échantillons.
- Des accessoires métalliques pour la fixation des échantillons.



Figure 3-9: Instruments utilisés pour l'ajustement de la forme des échantillons.

3.6 Mesures par Réflectométrie Temporelle (TDR : Time Domain Reflectometry)

Après la phase de préparation des échantillons, on arrive à l'étape de mesures. Cette dernière s'est effectuée sur plusieurs étapes au laboratoire de caractérisation électromagnétique, au département de physique à l'université de Saragosse.



Figure 3-10: Le banc de réflectométrie utilisé.

La caractérisation diélectrique des différents échantillons a été réalisée sur un banc de mesure par réflectométrie temporelle.

Cette technique de mesure, qui a prouvé sa crédibilité depuis des décennies, est basée autour d'un système composé d'un générateur d'échelon (modèle HP 54121) ayant un niveau d'amplitude de 200mV et un temps de montée de 35ps avec une tête d'échantillonnage incorporé, associé à un oscilloscope numérique mainframe (modèle HP54120B) [3, 20, 48, 69-72].

Le signal issu du générateur d'échelon se propage le long d'une ligne coaxiale standard de précision de type APC-7mm et d'impédance caractéristique égale à 50Ω . Cette ligne est connectée à une sonde APC-7mm / 50Ω , dans laquelle nous plaçons à son entrée notre échantillon de forme tubulaire, et sur l'autre bout (terminaison) nous plaçons une charge adaptée (50Ω) pour supprimer les réflexions non désirées (la méthode de la ligne adaptée que nous avons choisi).

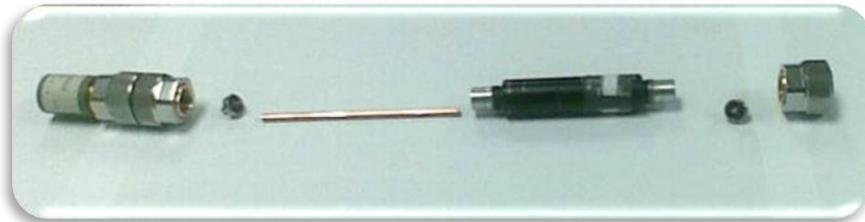


Figure 3-11: Photo de la cellule de mesure APC-7.

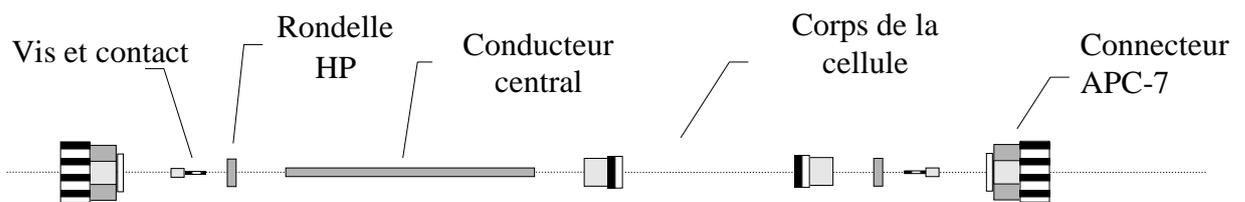


Figure 3-12: Composition de la cellule de mesure APC-7.

Pour chaque échantillon on commence d'abord à faire une mesure en court-circuit (sans échantillon) pour avoir une meilleure qualité de mesure.



Figure 3-13: Les charges terminales : 50Ω , court-circuit et 75Ω .

La mesure TDR donne pour chaque échantillon des courbes temporelles traduisant le comportement diélectrique du matériau sous test.

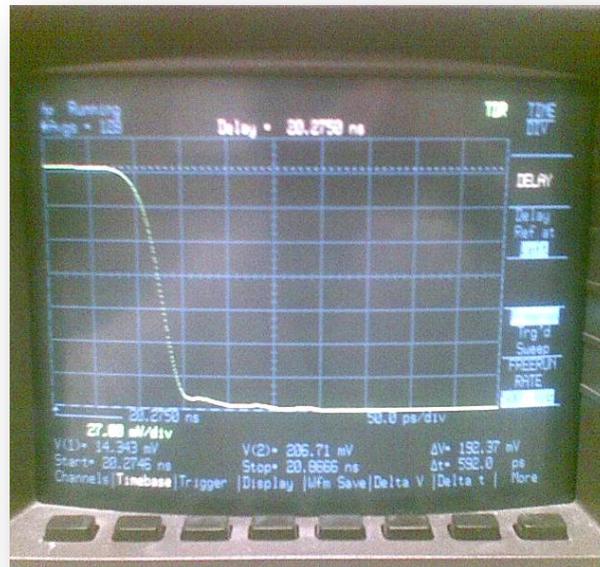


Figure 3-14: Exemple de réponse TDR d'un Court-Circuit.

Ces courbes subissent un traitement numérique par un programme de calcul qui permet d'extraire la permittivité et la conductivité du composite.

3.7 Procédure expérimentale de mesure par RDT

La méthode expérimentale choisie est celle de la ligne adaptée. Son montage est celui de la figure ci-dessous :

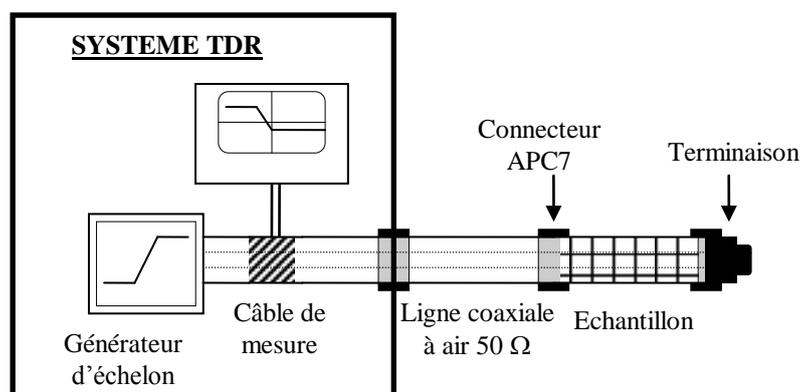


Figure 3-15: Système de réflectométrie temporelle en ligne adaptée.

Avant de commencer les mesures le système est mis en marche pendant plus de quatre heures (Warm Up time), temps nécessaire pour avoir des mesures juste et précise. Pour réduire le rapport du signal-bruit, le signal réfléchi est obtenu à partir de 512 échantillons après en prenant la moyenne de 128 mesures pour chaque enregistrement [61, 67].

Les mesures par réflectométrie temporelle (TDR) pour chaque échantillon ont été réalisées comme suit :

- ✓ Nous fixons le court-circuit à la terminaison de la cellule de mesure.

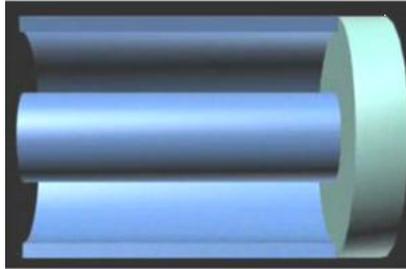


Figure 3-16: le court-circuit placé dans l'extrémité de la cellule de mesure.

- ✓ Nous enregistrons la réponse TDR correspondante.
- ✓ Nous plaçons l'échantillon dans la cellule en ajoutant la charge adaptée comme charge terminale.

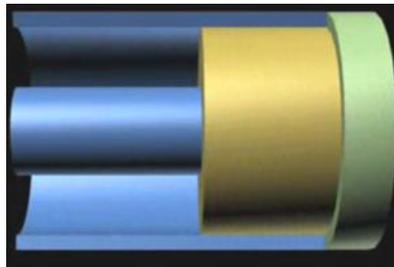


Figure 3-17: l'échantillon placé dans l'extrémité de la cellule de mesure.

- ✓ Nous enregistrons la réponse TDR correspondante.

Cette opération est répétée pour l'ensemble des échantillons.

La procédure expérimentale effectuée par le système de réflectométrie temporelle est la suivante:

1- Un échelon de tension de temps de montée très bref (20 à 30 ps) une ligne coaxiale adaptée terminée par l'échantillon à caractériser. Le changement d'impédance causé par l'échantillon entraînera une réflexion.

2- Un dispositif de mesure (tête d'échantillonnage) convertit la somme des signaux incident et réfléchi en un signal basse fréquence qui sera visualisé sur l'écran d'un oscilloscope à échantillonnage.

3- Ce signal à nature temporel sera enregistré sur un ordinateur puis traité afin d'obtenir les informations recherchées. Une suite de traitement est nécessaire afin d'arriver aux résultats désirés, les sections suivantes vont traiter les différents traitements utilisés dans ce travail.

3.7.1 Traitements des signaux acquis TDR

A ce niveau, on possède déjà un signal temporel issu de l'oscilloscope numérique à échantillonnage, et qui représente la réponse du système TDR à l'échantillon testé.

Lorsqu'on a exposé les méthodes expérimentales, on a vu que la grandeur sur laquelle tous les calculs sont basés est bien « le coefficient de réflexion ». Donc la première opération à faire c'est l'extraction de ce paramètre à partir des données expérimentales.

3.7.2 Calcul du coefficient de réflexion

Ce paramètre est le rapport entre le signal réfléchi et le signal incident, donc pour le calculer il faut avoir d'abord ces deux signaux [3, 20, 67].

3.7.2.1 Extraction du signal réfléchi

Le signal mesuré est la tension instantanée sur la ligne de transmission. Cette tension est la somme de deux signaux : réfléchi et incident. Ce signal s'écrit donc :

$$V(t)_{ech/m} = V(t)_{ech_r/m} + V(t)_{i/m} \quad (3-1)$$

Sachant que :

$$V(t)_{i/m} = V(t)_{ca/m} \quad (3-2)$$

Où : $V(t)_{ca/m}$ est la réponse du système dans le cas d'une charge adaptée (sans échantillon), qu'on peut facilement mesurer.

On déduit :

$$V(t)_{ech_r/m} = V(t)_{ech/m} - V(t)_{ca/m} \quad (3-3)$$

3.7.2.2 La fonction d'appareil

Le signal mesuré reflète l'image du signal «réel» vue par l'instrumentation de mesure. En langage mathématique, c'est le résultat d'une convolution entre le signal réel et la fonction de l'appareil de mesure [51, 52]. On exprime cette relation par l'expression:

$$V(t)_{/m} = V(t) * h(t) \quad (3-4)$$

Où l'indice « m » désigne la valeur « mesurée ».

Dans notre cas, on aura :

$$V(t)_{ech_r/m} = V(t)_{ech_r} * h(t) \quad (3-5)$$

Où $V(t)_{ech_r}$ est le signal « réel » qu'on cherche.

Pour obtenir ce signal, il faut faire une déconvolution. Afin d'éviter cette étape, et en utilisant une des propriétés de la transformée de Fourier, qui est connue par «le théorème de convolution» [73, 74], on peut facilement arriver à ce but. Ainsi, on a :

$$V(t) = A(t) * H(t) \Rightarrow V(\omega) = A(\omega) \cdot H(\omega) \quad (3-6)$$

Dans le but de contourner cette fonction d'appareil $h(t)$ (qu'on appelle «fonction de transfert» dans le domaine fréquentiel), on fait recours à une charge de référence dont on connaît sa réponse théorique [23, 26]. On utilise généralement un court-circuit dont le coefficient de réflexion théorique est égal à -1 . On écrit alors:

$$V(t)_{ech_r/m} = V(t)_{ech_r} * h(t) \Rightarrow V(\omega)_{ech_r/m} = V(\omega)_{ech_r} \cdot H(\omega) \quad (3-7)$$

$$V(t)_{cc_r/m} = V(t)_{cc_r} * h(t) \Rightarrow V(\omega)_{cc_r/m} = V(\omega)_{cc_r} \cdot H(\omega) \quad (3-8)$$

On remarque que le signal $V(t)_{cc_r/m}$ est obtenu de la même façon que $V(t)_{ech_r/m}$:

$$V(t)_{cc/m} = V(t)_{cc_r/m} + V(t)_{i/m} \Rightarrow V(\omega)_{cc_r/m} = V(\omega)_{cc/m} - V(\omega)_{ca/m} \quad (3-9)$$

On divise maintenant les deux équations par $V(\omega)_{ca}$ (qui représente le signal incident réel), puis on divise ces deux équations terme par terme. Sachant que: $R(\omega)_{cc} = -1$ (coefficient de réflexion théorique pour un court-circuit), on parvient à :

$$R(\omega)_{ech} = - \frac{V(\omega)_{ech_r/m}}{V(\omega)_{cc_r/m}} \quad (3-10)$$

Remarque:

Pour des raisons de lisibilité, on note par la suite $R(\omega) = R(\omega)_{ech}$. Le calcul de la TFD est réalisé en utilisant la méthode de Samulon [75] qu'on va aborder dans une prochaine section.

3.7.3 Calcul de l'admittance :

On calcule l'admittance $Y(\omega)$ à partir de la valeur du coefficient de réflexion $R(\omega)$ en utilisant la relation suivante:

$$Y(\omega) = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega)} \quad (3-11)$$

3.7.4 Calcul de la permittivité complexe:

La relation entre la permittivité complexe d'un milieu matériel (l'échantillon dans notre cas) et de son admittance réduite peut être déterminée de la façon suivante:

$$\text{Sachant que: } R(\omega) = \rho \cdot \frac{(1 - e^{-2\gamma d})}{1 - \rho^2 \cdot e^{-2\gamma d}} \text{ et } \rho = \frac{1 - \sqrt{\epsilon_r}}{1 + \sqrt{\epsilon_r}}$$

En employant l'indice de réfraction du milieu concerné, définit par:

$$n = \sqrt{\varepsilon_r} \quad (3-12)$$

D'après l'équation (3-11) on trouve:

$$y(\omega) = n \cdot \frac{\left(1 + n \cdot \tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot d \cdot n \right) \right)}{\tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot d \cdot n \right) + n} \quad (3-13)$$

La résolution de cette équation donne la valeur de la permittivité complexe ε^* .

3.7.5 Calcul de la transformée de Fourier discrète (TFD)

On veut calculer la transformée de Fourier discrète d'un signal numérique défini par ses N échantillons. L'application directe de la TFD devient efficace lorsque le signal numérique présente des valeurs initiale et finale nulles, ce qui n'est pas le cas pour notre signal qui appartient aux signaux dits: «Step-Like» [74, 76, 77].

Gans [78], Nicolson [79] et Samulon [75] ont proposé chacun sa propre méthode de calcul de la TFD, qui aboutit finalement au même résultat. Ces méthodes sont plus faciles à mettre en œuvre et à l'opposé des fenêtres temporelles qui introduisent des lobes, d'amplitudes importantes, dans le spectre du signal, elles donnent de meilleurs résultats.

Pour notre travail, nous avons opté pour la méthode de Samulon qui est la plus facile à mettre en œuvre et donne des résultats équivalents à ceux donnés par les deux autres méthodes.

3.7.5.1 Méthode de Samulon

Pour calculer la TFD d'un signal numérique composé de N échantillons, Samulon a proposé une méthode qui aboutit à la TFD de ce signal en passant par la TFD de sa dérivée temporelle. Cette méthode est plus connue sous le nom de «la méthode de la courbe dérivée» [3, 5, 20, 74, 76, 77]. Le calcul de la dérivée la fonction dérivée est définie par l'expression:

$$\Delta V(k \cdot \Delta t) = V(k \cdot \Delta t) - V((k-1) \cdot \Delta t) \quad (3-14)$$

Avec k compris entre 1 et N .

- Calcul de la TFD.

La TFD d'un signal $V(k \cdot \Delta t)$ est donnée par l'expression :

$$V(i \cdot \Delta t) = \Delta t \cdot \sum_{k=1}^N V(k \cdot \Delta t) \cdot e^{-j\omega k \Delta t} \quad (3-15)$$

En utilisant la méthode de Samulon, on écrit :

$$TFD [V(k \cdot \Delta t)] = \Delta t \cdot \sum_{k=1}^N V(k \cdot \Delta t) \cdot e^{-j\omega k \Delta t} \quad (3-16)$$

$$V(i \cdot \Delta f) = \Delta t \cdot \sum_{k=1}^N V(k \cdot \Delta t) \cdot e^{-j\omega k \Delta t} \quad (3-17)$$

Où:

$$\Delta f = \frac{1}{N \cdot \Delta t} \quad (3-18)$$

Le développement de la somme donnée par l'équation (3-17) aboutit à :

$$\frac{V(i \cdot \Delta f)}{\Delta t} = (1 - e^{-j \cdot \omega \cdot \Delta t}) \cdot TFD [V(k \cdot \Delta t)] \quad (3-19)$$

$$TFD [V(k \cdot \Delta t)] = \frac{(1 - e^{-j \cdot \omega \cdot \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f) \quad (3-20)$$

Donc à la place de la TFD directe on va calculer les TFDs des dérivées temporelles de chaque signal (échantillon et court-circuit). On aura donc :

$$V(\omega)_{ech_r/m} = \frac{(1 - e^{-j \cdot \omega \cdot \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f)_{ech_r/m} \quad (3-21)$$

$$V(\omega)_{cc_r/m} = \frac{(1 - e^{-j \cdot \omega \cdot \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f)_{cc_r/m} \quad (3-22)$$

$$R(\omega) = - \frac{\frac{(1 - e^{-j \cdot \omega \cdot \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f)_{ech_r/m}}{\frac{(1 - e^{-j \cdot \omega \cdot \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f)_{cc_r/m}} \quad (3-23)$$

$$R(\omega) = - \frac{V(i \cdot \Delta f)_{ech_r/m}}{V(i \cdot \Delta f)_{cc_r/m}} \quad (3-24)$$

Avec i variant de 1 à $N/2$.

Afin de réduire le bruit au maximum dans le spectre calculé, on commence tout d'abord par :

- Choisir lors de l'acquisition du signal temporel, un premier canal utile qu'on note PCU sur le pallier du signal incident et qui sera le point le plus proche du début du signal réfléchi.

- De même, on définit un autre canal DCU (Dernier Canal Utile) à partir duquel le signal réfléchi atteint sa valeur asymptotique.

- On calcule par la suite la dérivée du signal limité dans le temps par PCU et DCU. Ce calcul est fait pour les deux cas : échantillon et court-circuit.

- On cherche par la suite, les points nuls qui sont en coïncidence pour chacune des deux dérivées. On définit alors de nouvelles valeurs pour PCU et DCU.

- La définition de cette fenêtre temporelle de travail permet de minimiser considérablement le bruit dans le signal. Néanmoins, un mauvais choix des limites de cette fenêtre conduira à une perte d'informations utiles, ce qui va altérer les résultats finaux.

La fenêtre d'observation est choisie telle que [3, 20] :

$$\Delta V(PCU \cdot \Delta t) = \Delta V(DCU \cdot \Delta t) = 0 \quad (3-25)$$

Le calcul de la TFD est de toute façon réalisé sur la totalité des N échantillons. Cependant, les valeurs des échantillons qui sont en dehors de la fenêtre [PCU, DCU] sont remplacées par des valeurs nulles.

3.8 Résultats bruts obtenus par RDT

La caractérisation par le banc de mesure TDR nous donne deux courbes temporelles : une du court-circuit et une de l'échantillon à caractériser. On donne sur les figures suivantes quelques résultats bruts de mesures effectuées par réflectométrie temporelle.

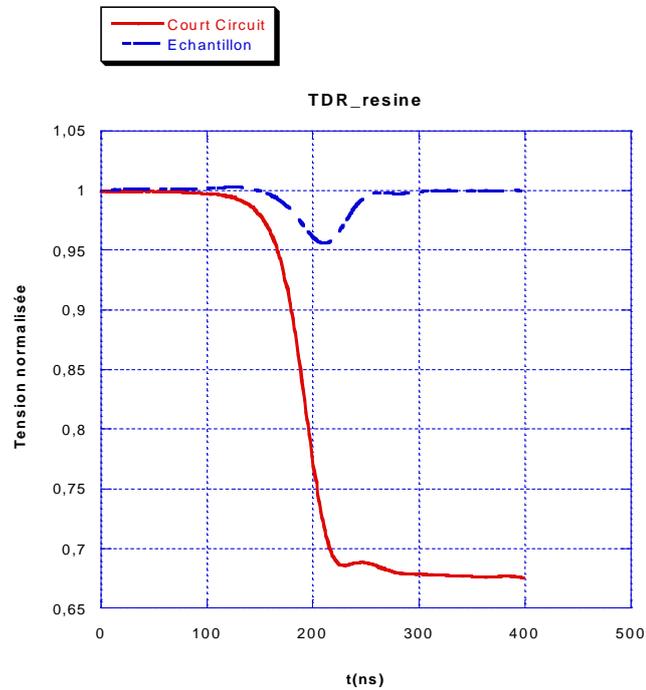


Figure 3-18: Réponse TDR de la résine époxyde pure (100%).

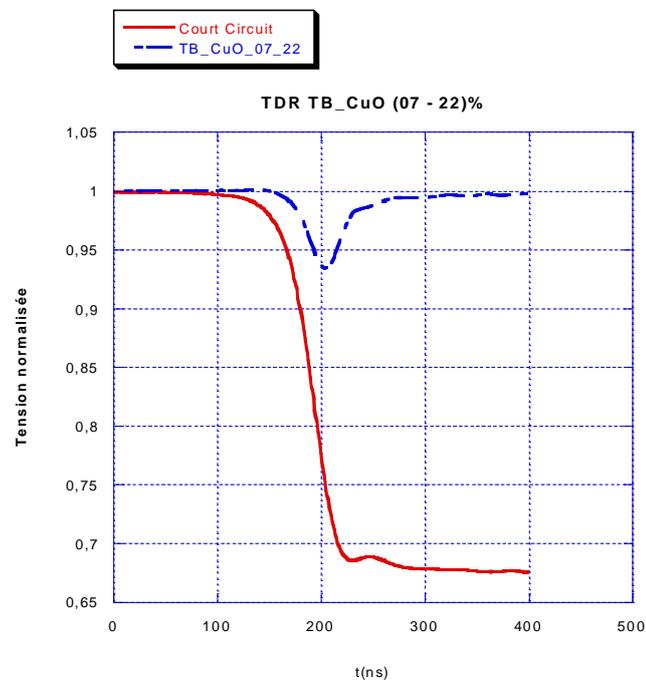


Figure 3-19: Réponse TDR du composite (RE, TBa, CuO) à (70%, 7,5%, 22,5%).

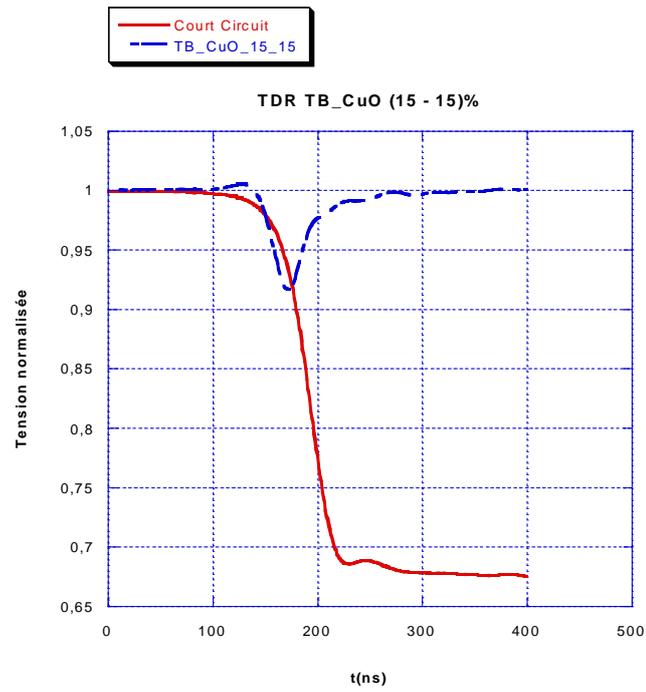


Figure 3-20: Réponse TDR du composite (RE, TBa, CuO) à (70%, 15%, 15%).

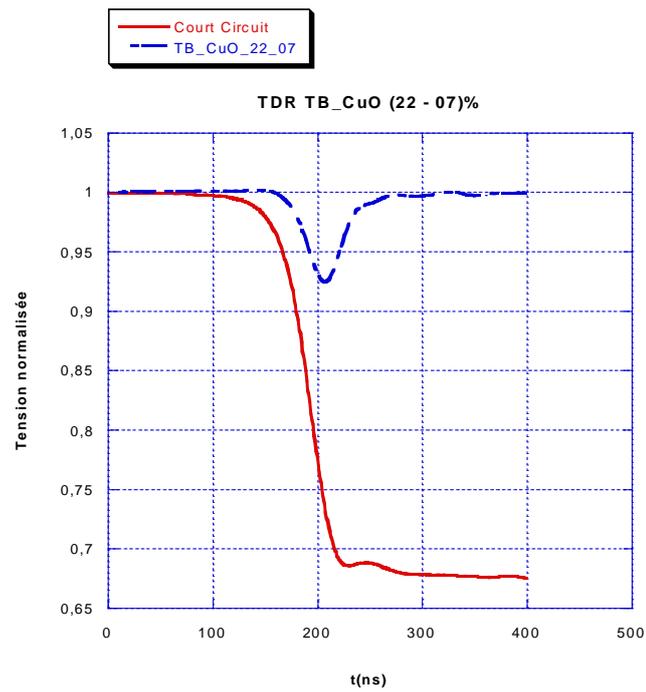


Figure 3-21: Réponse TDR du composite (RE, TBa, CuO) à (70%, 22,5%, 7,5%).

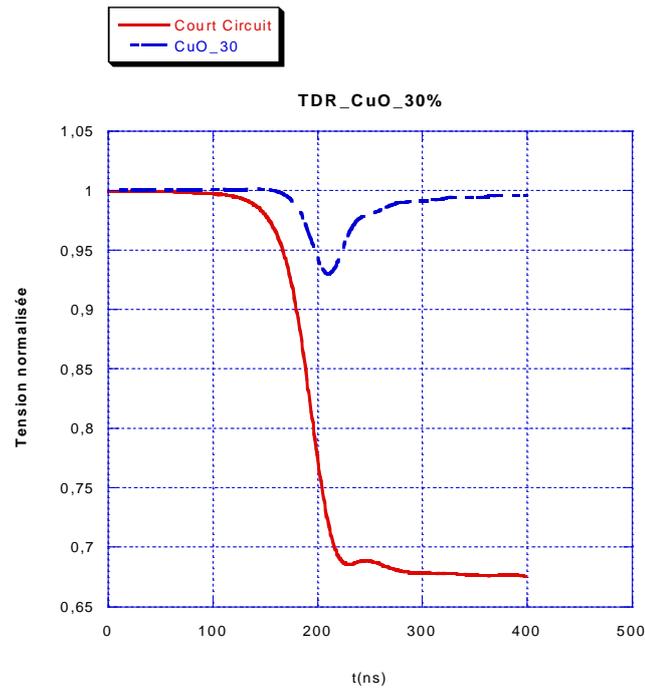


Figure 3-22: Réponse TDR du composite (RE, TBa, CuO) à (70%, 0%, 30%).

En observant les figures (3-18) jusqu'à (3-22), nous pouvons déduire directement la nature des échantillons qui sont des diélectriques, puisque la réponse TDR ainsi enregistrée correspond à un milieu matériel diélectrique [3, 20, 50, 61, 80]. Nous remarquons que le minimum de la courbe TDR de l'échantillon change de valeur selon les concentrations des différentes phases du mélange.

La courbe en trait continu, qui correspond à la réponse TDR à un court-circuit porte quelques légères ondulations qui sont dues généralement soit à des charges statiques sur le court-circuit placé au bout de la cellule de mesure, soit à un mauvais contact entre les différents raccords.

CHAPITRE 4

Résultats et discussions

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons notre contribution qui est une étude expérimentale sur les mélanges ternaires composés de plusieurs assemblages résine époxyde, de titanate-titanate ou titanate - oxyde. L'objectif recherché est l'étude de l'effet des combinaisons et des concentrations sur les paramètres diélectriques du composite. La première phase consiste à voir le comportement du mélange bi-titanate BaTiO_3 et CaTiO_3 [72]. Dans la deuxième phase du travail expérimental, nous avons remplacé le deuxième titanate par un oxyde le CuO ou le MgO , pour voir l'effet de l'ajout d'un oxyde à la place d'un titanate, toujours dans un mélange ternaire, sur la permittivité et la conductivité [69]. Dans la troisième phase, nous avons gardé l'oxyde de cuivre CuO et nous l'avons associé à trois types différents de titanates pour voir cette fois-ci l'influence du type de titanates sur les propriétés diélectriques du composite résultant.

Ainsi, nous pouvons résumer l'ensemble des milieux matériels traités lors de cette étude comme suit :

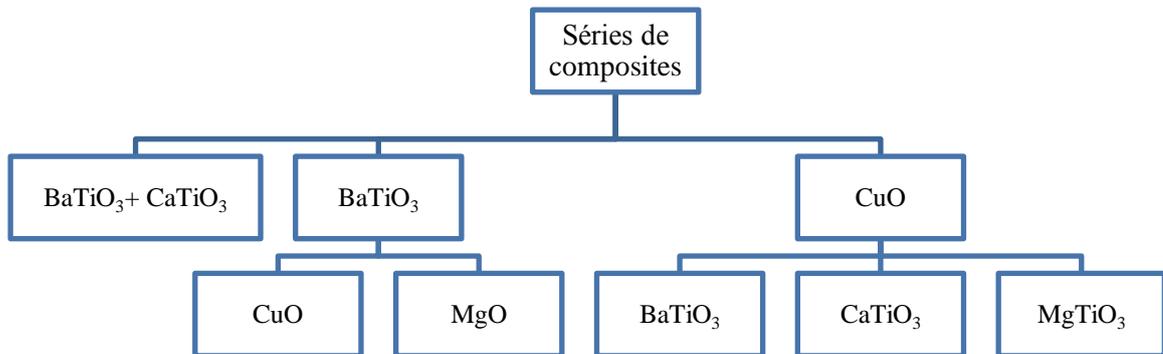


Figure 4-1: Résumé des composites réalisés.

4.2 Mélanges Résine, BaTiO_3 et CaTiO_3 [20]

Pour cette première partie, nous avons réalisés plusieurs séries d'échantillon à base de résine époxyde, BaTiO_3 et CaTiO_3 . L'objectif est de voir le comportement diélectrique d'un mélange à deux phases de titanates pour le comparer par la suite avec celui d'un mélange à une seule phase de titanate associé à un Oxyde, et ceci pour différentes concentrations. On commence par l'étude du cas purement binaire (résine et titanate) puis on passe au cas ternaire (résine, BaTiO_3 et CaTiO_3).

4.2.1 Mélange binaire de titanate de Calcium et de Résine époxyde (RE/TCA) [3]

Les variations de ε_s , ainsi que σ_s , sont données pour le mélange (RE/TCA) sur la figure 4-2. Nous pouvons apprécier l'augmentation de ces deux paramètres avec celle de la

concentration de titanate, qui est due à la forte contribution de la conductivité statique dans la partie imaginaire. La méthode de calcul de σ_s est basée sur la valeur de $\varepsilon_{B.F}''$ selon l'équation :

$$\sigma_s = \varepsilon_0 \varepsilon_{B.F}'' \omega = 2\pi \varepsilon_0 \varepsilon_{B.F}'' f \quad (4-1)$$

En prenant toujours des valeurs de $\varepsilon_{B.F}''$ en pas de fréquences identiques dans le spectre de dispersion, on constate une évolution sigmoïde de la constante diélectrique ε_s en fonction de la fraction volumique du titanate de calcium qui est caractérisée par un point d'inflexion à 15% de TCA, associé à une augmentation de la conductivité toujours en basse fréquence.

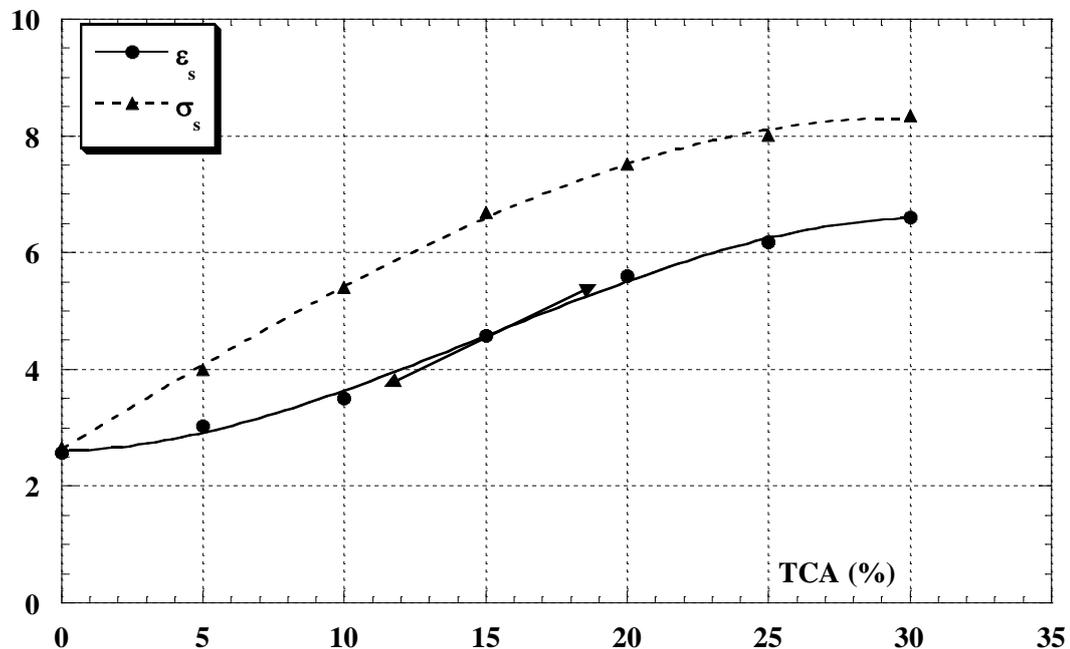


Figure 4-2: Constante diélectrique ε_s et conductivité $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la concentration du TCA pour le mélange binaire Résine Epoxyde - TCA.

4.2.2 Mélange binaire, Titanate de Baryum avec une résine époxyde (RE/TBA)

La variation de la constante statique ε_s et de la conductivité σ_s en fonction de la concentration des mélanges est représentées par la figure 4-3, où on constate un minimum de σ_s pour une concentration du titanate de baryum proche de 17% et ε_s présente un point d'inflexion autour de la même concentration.

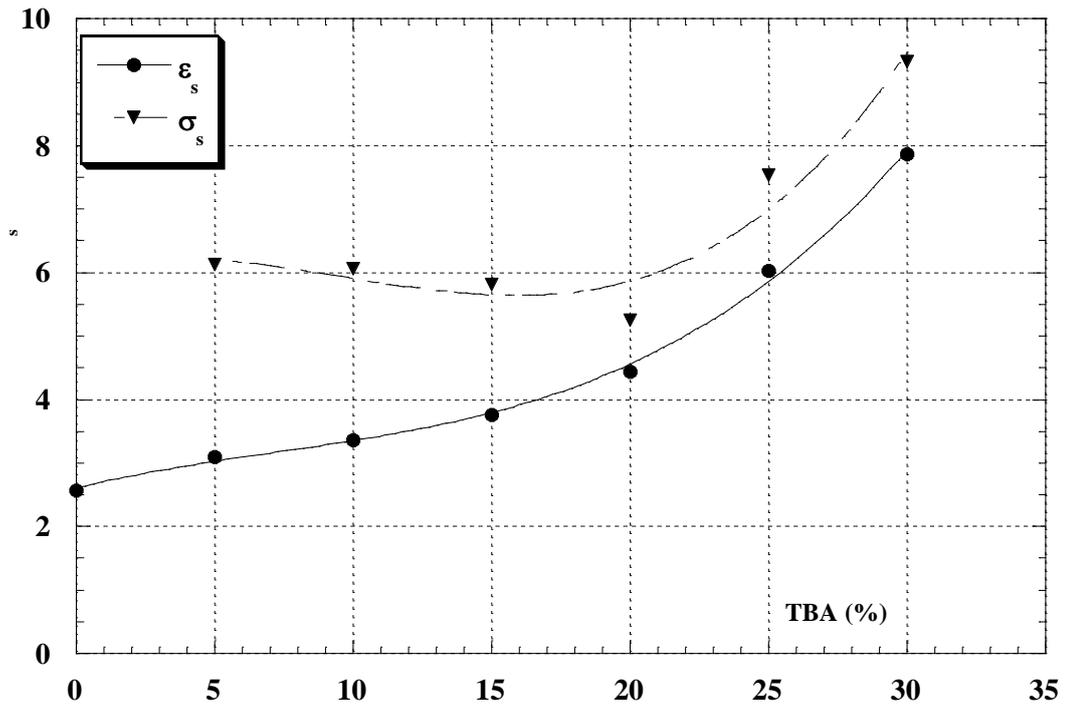


Figure 4-3: Constante diélectrique ϵ_s et conductivité σ_s $10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ pour le mélange binaire RE/TBA.

On remarque sur la figure précédente une évolution de la conductivité qui apparaît à une valeur pratiquement constante entre 0 et 20% de concentration du TBA, comportement analogue à un processus de quasi-percolation à une concentration proche à 18% de TBA.

4.2.3 Mélange ternaire : Résine époxyde, Titanate de Baryum et de Calcium [72, 81]

L'étude sur les mélanges ternaires résine époxyde, TBA et TCA (RBC) a permis d'analyser la variation de la constante diélectrique statique en fonction de la fraction volumique de titanate de baryum. Dans la figure 4-4, nous montrons l'évolution de la constante diélectrique du composite par des courbes à concentration fixe de titanate de calcium (TCA = cte) et des courbes à résine constante (RE = cte), ce qui conduit à deux familles de courbes comprises entre la limite supérieure d'une loi de Wiener inverse et une limite inférieure correspondant à la loi directe.

A partir de cette représentation, on peut dire que ce type de diagramme Wiener est borné par la fraction maximum de titanate de baryum.

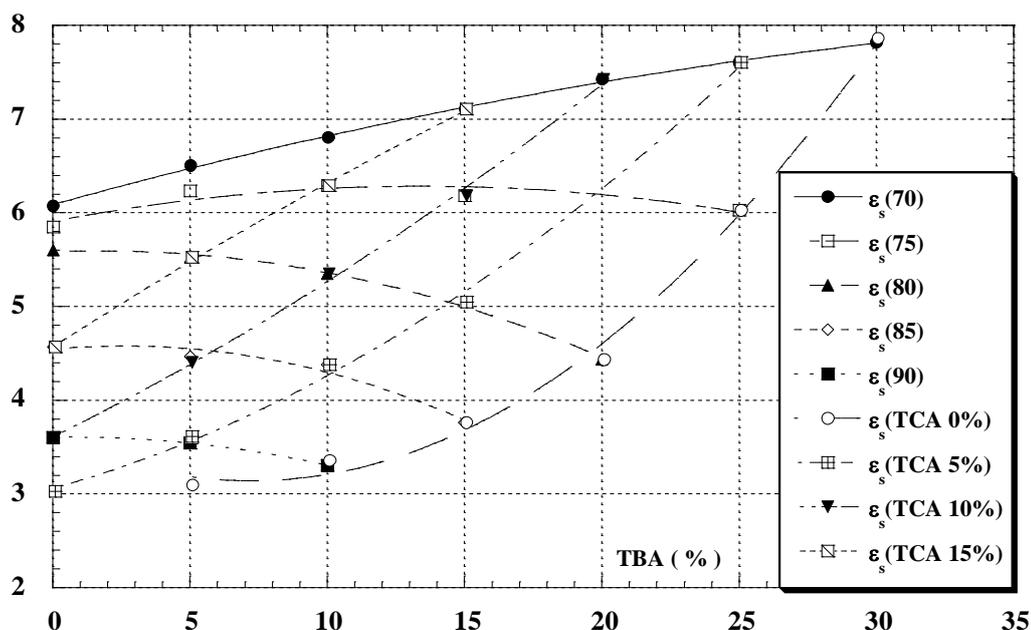


Figure 4-4: Variation de ϵ_s en fonction du pourcentage du TBA (courbes RE=cte, TCA=cte).

Les résultats les plus significatifs répondent à l'apparition d'une évolution linéaire de la constante statique ϵ_s pour le mélange ternaire avec une proportion jusqu'à 20 % de TBA comprise entre les compositions de (RE-TBA-TCA) respectivement (70.00.30) / (70.18.12), limite entre Wiener inférieur et Wiener supérieur. La représentation montrée dans la figure 4-5 permet de vérifier que le minimum de la conductivité pour les différentes proportions de résine époxyde, titanate de baryum et titanate de calcium répond à une proportion de la fraction volumique de 18 % TBA (70.18.12). Tous les minimums varient entre 4 et 17 % de titanate de baryum et la différence entre la valeur du minimum et les valeurs des maximums correspondent une proportion de 70% de TCA (70.00.30 et 70.30.00). En plus, dans la situation pour lesquelles les proportions des deux titanates sont analogues correspondent au minimum.

Une diminution de la proportion de titanates TBA et TCA favorise la tendance du minimum de la conductivité σ_s dans la cadence indiquée dans le tableau suivant :

Composite	$\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega m)^{-1}$
70.20.10	4,1
75.15.10	5,8
80.10.10	4,0
85.05.10	4,6.

Tenant compte que le minimum de tous les composites correspond à la concentration de 17 % de TBA. Ce fait met en évidence l'influence du titanate de baryum dans le processus de conduction électrique à basse fréquence, de façon que le minimum des courbes puisse être associé à de possibles états de percolation dans le mélange ternaire. Autrement dit la variation de la conductivité en fonction de la concentration de titanate h varie suivant une exponentielle h^t pour $t = 2$ typique d'un état de percolation.

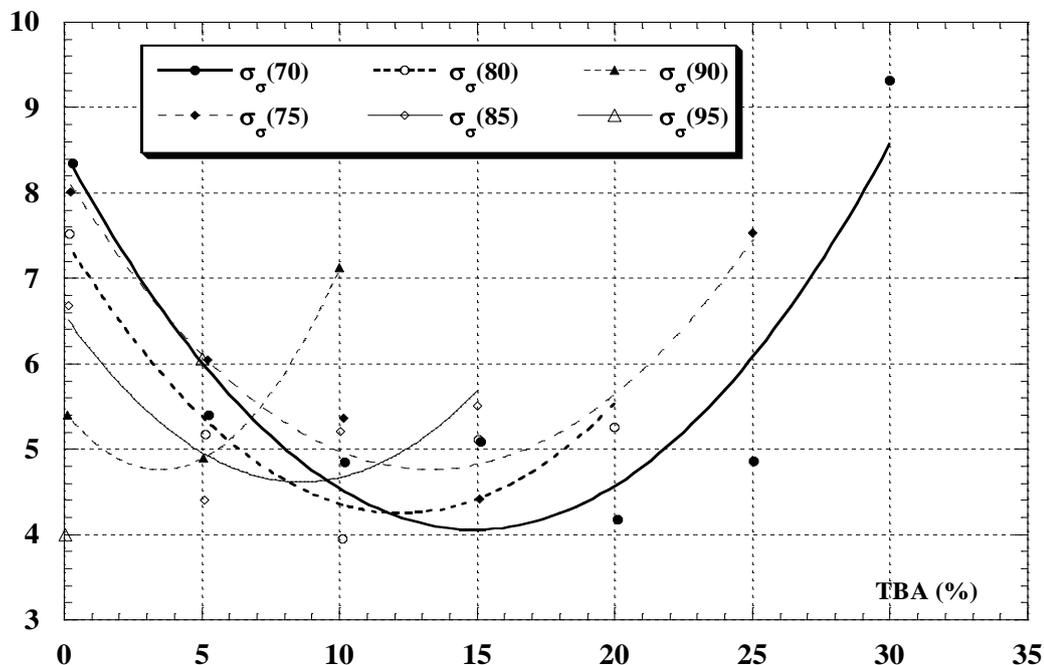


Figure 4-5: Variation de $\sigma_s 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ pour les mélanges ternaires en fonction du pourcentage du TBA (RE=cte).

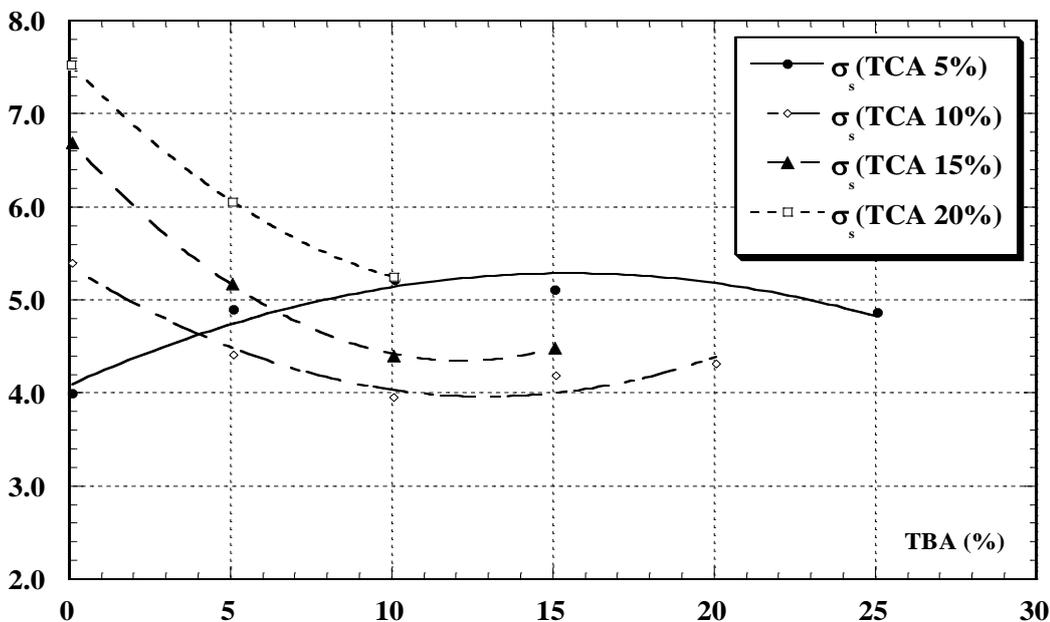


Figure 4-6: Variation de $\sigma_s 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ pour les mélanges ternaires en fonction du pourcentage du TBA (TCA=cte).

Dans la figure 4-6 on présente l'évolution de la conductivité à des valeurs de titanate de calcium fixe, en fonction de la fraction volumique du TBA. On notera que le changement de concavité apparaît entre 10 – 20 % de TBA comme on l'avait constaté au cours de l'étude. Les minimums de la conductivité se trouvent autour de $4.40 \times 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ pour les différents pourcentages de la résine époxyde, fait qui indique l'influence du titanate de baryum.

4.2.4 Interprétation et discussion

La figure 4-7 illustre le comportement du mélange binaire RE/TBA qui répond à une loi Wiener inférieure pour l'intervalle de fraction volumique 0 – 30 % de titanate de baryum. Les valeurs de la constante statique pour la résine et les titanates ont été déduites par la méthode décrite précédemment [72]. Le facteur de forme pour ce mélange BL varie autour de l'unité que confirme la validité de la loi modifiée de Lichtenecker pour le système binaire. A ce propos nous avons constaté une valeur minimum BL = 0,856 pour la fraction volumique de la charge de 15% et une valeur maximum BL = 1,175 pour 20%, pourtant la valeur théorique doit correspondre à 18% avec une composition 72.18 (0.72 de résine et 0.18 pour le titanate de baryum).

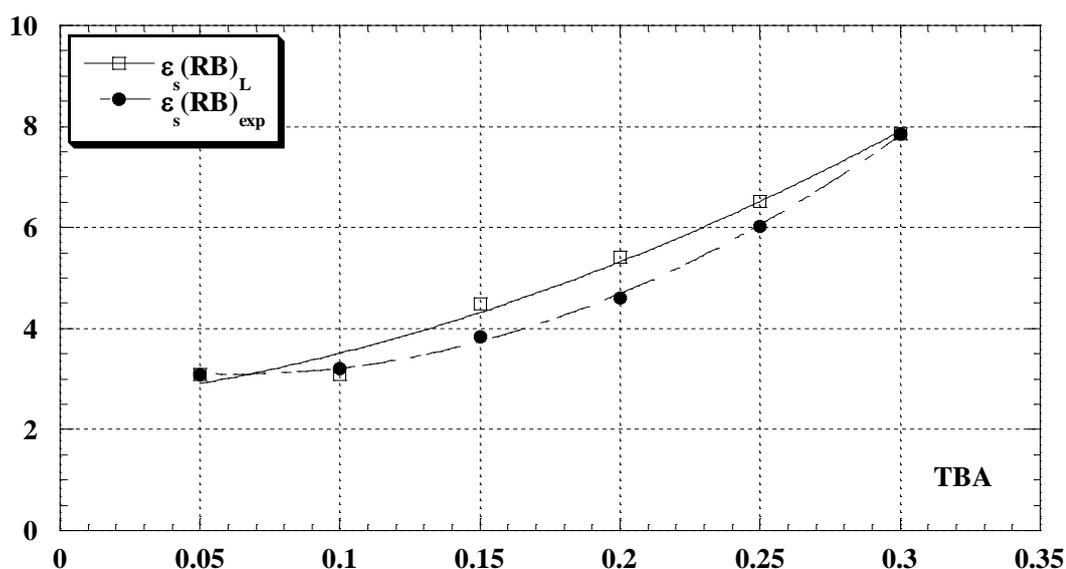


Figure 4-7: Evolution de ϵ_s pour le mélange binaire RE/TBa (comparaison avec le modèle).

D'autre part pour le mélange RE/TCA, on trouve aussi un bon accord avec la modélisation des lois sous un comportement Wiener inférieur pour la plage de 0% à 13 % de fraction volumique de titanate de calcium, malgré qu'apparaisse un comportement Wiener supérieur pour l'intervalle de 13% à 30 %. Cette anomalie de la constante statique ϵ_s montrée dans la figure 4-8 pour la composition 70.00.30 s'identifie à une évolution de type sigmoïde avec un changement dans la pente sur 13% de TCA correspondent à la transition Wiener inférieur - Wiener supérieur. Dans cette région qui correspond à la valeur de fraction

volumique de 15 % de titanate de calcium, on obtient un minimum $CL=0,955$ pour le facteur de forme du mélange binaire.

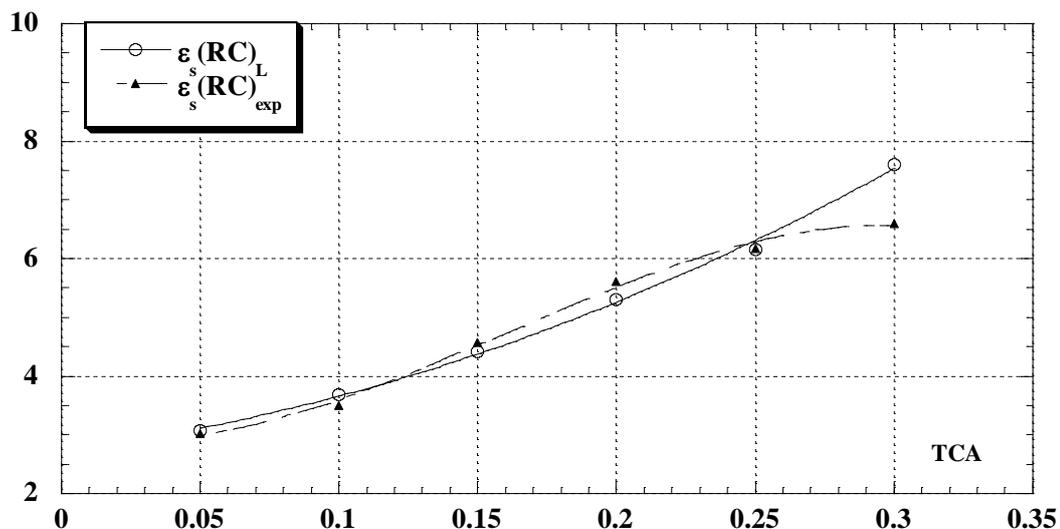


Figure 4-8: Evolution de ε_s pour le mélange binaire RE/TCA (comparaison avec le modèle).

En ce qui concerne les facteurs de forme ternaire A_L , et les binaires B_L et C_L définis dans la loi de modélisation modifiée de Lichtenecker, il faut constater que les trois présentent des valeurs extrêmes autour d'une proportion de 82 % de résine époxyde comme on peut l'apprécier dans la figure 4-9.

L'ensemble des résultats pour les mélanges binaires RE/TBA et RE/TCA peut se résumer dans la figure 4-10, où se montre l'évolution des ajustements entre les valeurs déduites par le modèle modifié de Lichtenecker et les valeurs expérimentales. C'est une remarque fondamentale de l'anomalie correspondant à la composition (RE, TBA, TCA) respectivement 70.00.30.

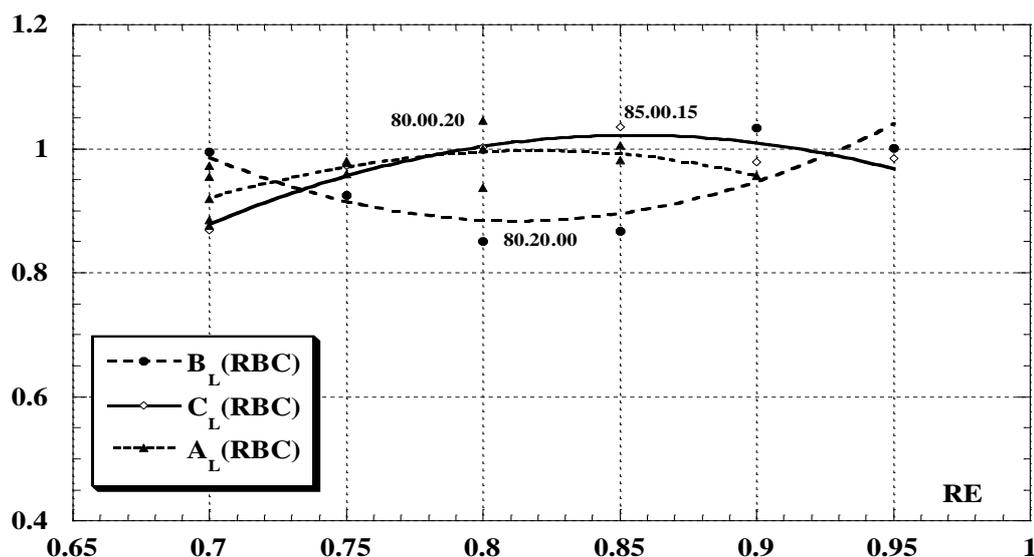


Figure 4-9: Variation des facteurs de forme A_L , B_L et C_L en fonction de la concentration de résine.

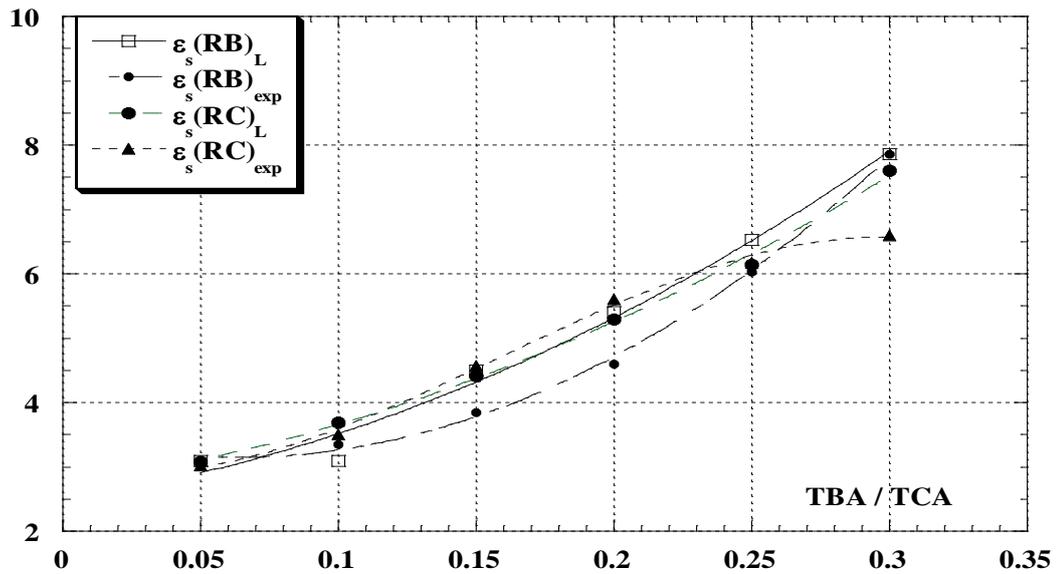


Figure 4-10: Evolution de ϵ_s pour les mélanges binaires RE/TBA – RE/TCA.

Il faut constater que pour une grande concentration de titanates (TBA + TCA) dans le mélange apparaît des plus fortes déviations entre la valeur théorique et les expérimentales comme montre la représentation de la figure 4-9, fait dû aux interactions entre les charges dans la structure du mélange ternaire.

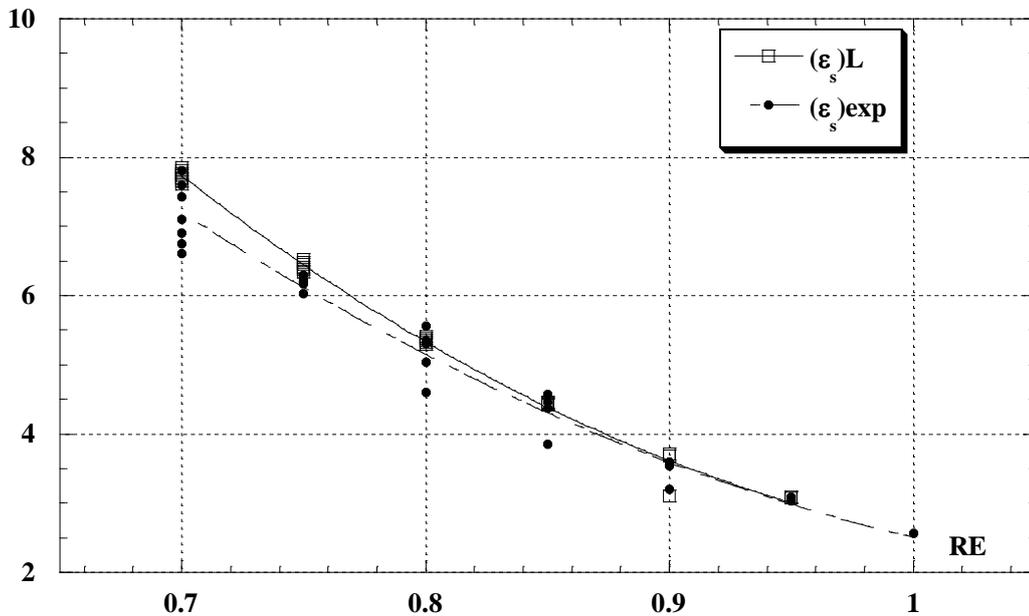


Figure 4-11: Evolution de ϵ_s en fonction du taux de la Résine pour les mélanges ternaires.

La figure 4-12 illustre une représentation de plusieurs familles de courbes. La première famille résine RE = cte et la deuxième famille TCA = cte en fonction de la fraction volumique de TBA suivant le modèle et sa comparaison avec les résultats expérimentaux. Pour des quantités faibles de résine, il y a apparition de déviations appréciables entre les deux familles et surtout ce qui est remarquable c'est le changement de concavité des courbes TCA entre 10 % et 15 %, proportion pour laquelle on trouve une évolution linéaire de ε_s avec la fraction volumique de titanate de baryum.

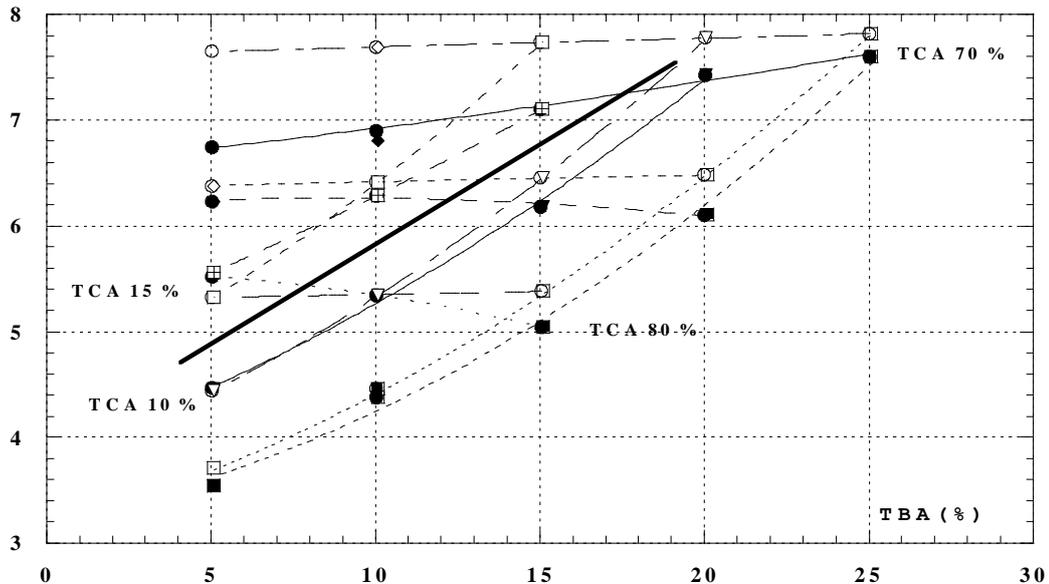


Figure 4-12: Famille de courbes ε_s en fonction du TBA dans les mélanges ternaires (o Lichtecker; • Experimental).

Cette variation linéaire contient les compositions (RE, TBA, TCA) respectivement 85.03.12/ 80.08.12/ 75.12,5.12,5/ 70.18.12 et constitue la frontière entre les comportements Wiener supérieur (pourcentages 5 % et 10 % de TCA) et inférieur avec 15 % y 20 % de titanate de calcium. C'est à dire que les familles de courbes pour les proportions du TCA = cte déduites pour le modèle modifié de Lichtenecker ne changent pas de concavité, en contre partie les mêmes familles de courbes possèdent des points d'inflexions à partir de la fraction volumique 12 % de titanate de calcium.

4.3 Mélanges Résine, BaTiO₃ et (CuO, MgO) [82]

Pour cette partie, nous avons réalisé deux séries d'échantillons. L'objectif est de voir l'effet de la nature de l'oxyde sur les paramètres diélectriques du milieu matériel.

4.3.1 Mélange Résine, BaTiO₃ et CuO [RE.BT.CuO]

4.3.1.1 La constante diélectrique

La figure 4-13 nous permet de voir la variation de la constante diélectrique effective ϵ_s du mélange RE.BT.CuO en fonction de la fraction volumique de l'oxyde de cuivre comprise entre 0 - 35% pour une concentration de titanate de baryum (BT) constante prise à différentes valeurs. Dans cette même représentation, on constate que l'évolution de ϵ_s pour le mélange binaire RE.CuO fait correspondre une famille de courbes (à BT constante). Celles-ci sont délimitées par la courbe relative à BT = 0% qui donne les valeurs minimales de la constante diélectrique. On remarque qu'au fur et à mesure que la proportion du titanate augmente les maximums présentés par ces familles courbes (BT constante.) se dirigent vers la région à faible concentration de CuO. La valeur du maximum de ϵ_s est inversement proportionnelle à la concentration de résine. D'autre part la constante ϵ_s présente une variation linéaire décroissante en fonction de la fraction volumique de l'oxyde de cuivre pour une concentration constante de RE=70%.

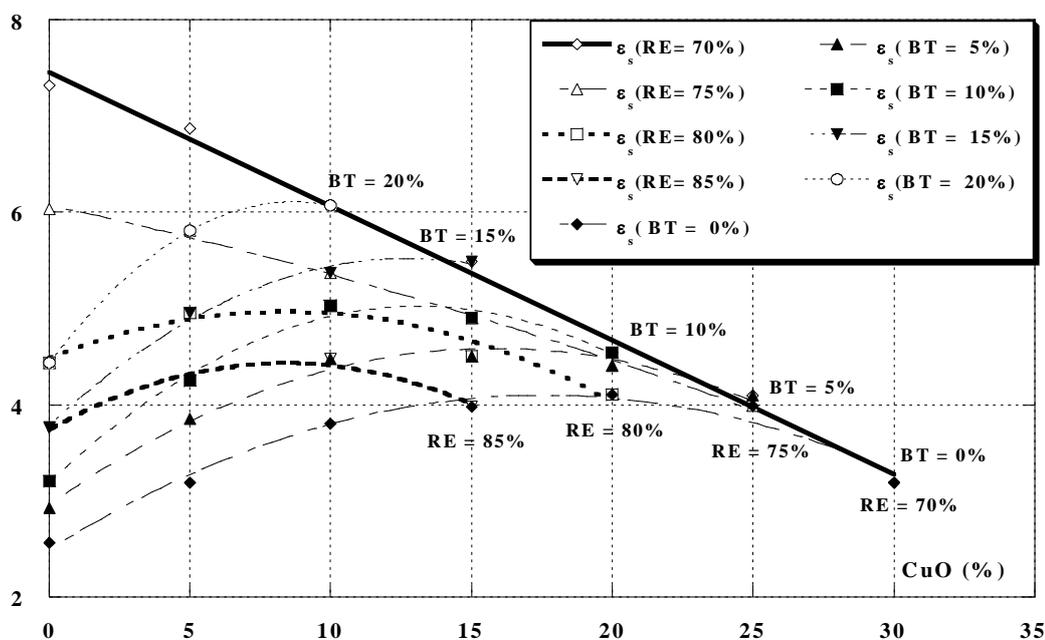


Figure 4-13: variation de ϵ_s en fonction de la fraction volumique du CuO pour le mélange RE.BT.CuO (RE = const., BT = const.).

La figure 4-14 montre l'évolution de la constante diélectrique ϵ_s en fonction du pourcentage de titanate de baryum pour une concentration d'oxyde de cuivre fixe (CuO=constante). Sa valeur croît avec la proportion du titanate BT pour des valeurs de fraction d'oxyde de cuivre situées dans la plage 0 - 10%. Pour une proportion de CuO proche de 15%, ϵ_s varie linéairement avec la concentration de titanate de baryum (BT). Cependant il apparaît un changement dans la tendance de la concavité des familles de courbes à partir

d'une fraction volumique de 20% d'oxyde, tout en illustrant ainsi une diminution de la valeur ε_s . La famille des courbes à concentration de CuO constante, représente une loi de Wiener directe où la courbe à 0% de cet oxyde correspond à un mélange binaire RE.BT et constitue d'une limite inférieure. Par contre, la limite supérieure de cette loi est caractérisée par une variation linéaire de ε_s pour 15% d'oxyde de cuivre.

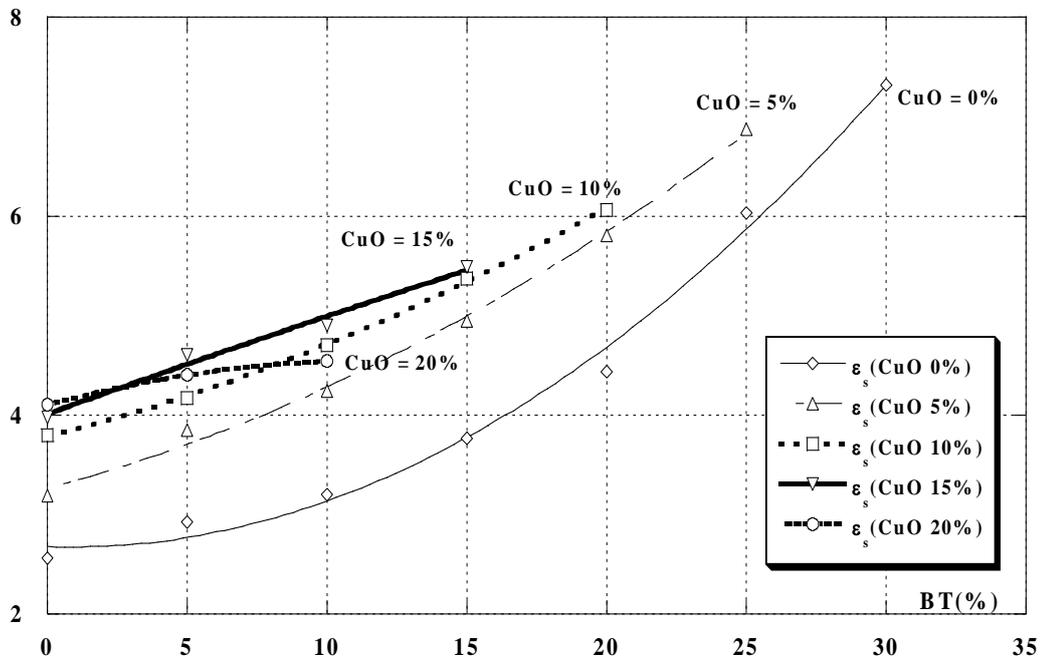


Figure 4-14: Variation de ε_s en fonction de la fraction volumique du BT pour le mélange RE.BT.CuO (CuO = const.).

4.3.1.2 La conductivité statique

En ce qui concerne la conductivité statique σ_s , la figure 4-15 montre l'évolution de ce paramètre en fonction de la proportion d'oxyde de cuivre. Il en résulte une famille de courbes correspondant chacune à une concentration de BT constante dont la valeur est incluse dans une gamme allant de 5 à 20%. A travers cette représentation, il faut constater que pour une concentration de l'ordre du 13% de ce titanate apparaît un fort changement du comportement du mélange. Au-delà de cette proportion, il y a lieu de noter une variation quasi-linéaire de la conductivité statique avec les proportions de l'oxyde de cuivre, qui délimite deux états différents dans ces familles de courbes à concentration constante de BT.

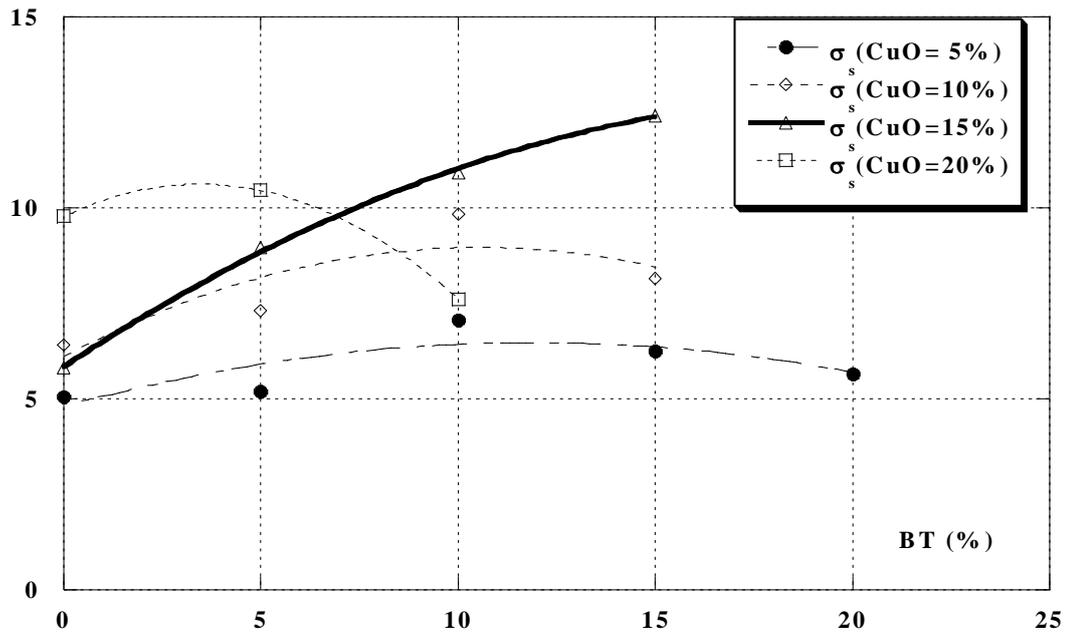


Figure 4-15: Variation de $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la fraction volumique du BT pour le mélange RE.BT.CuO (CuO = const.).

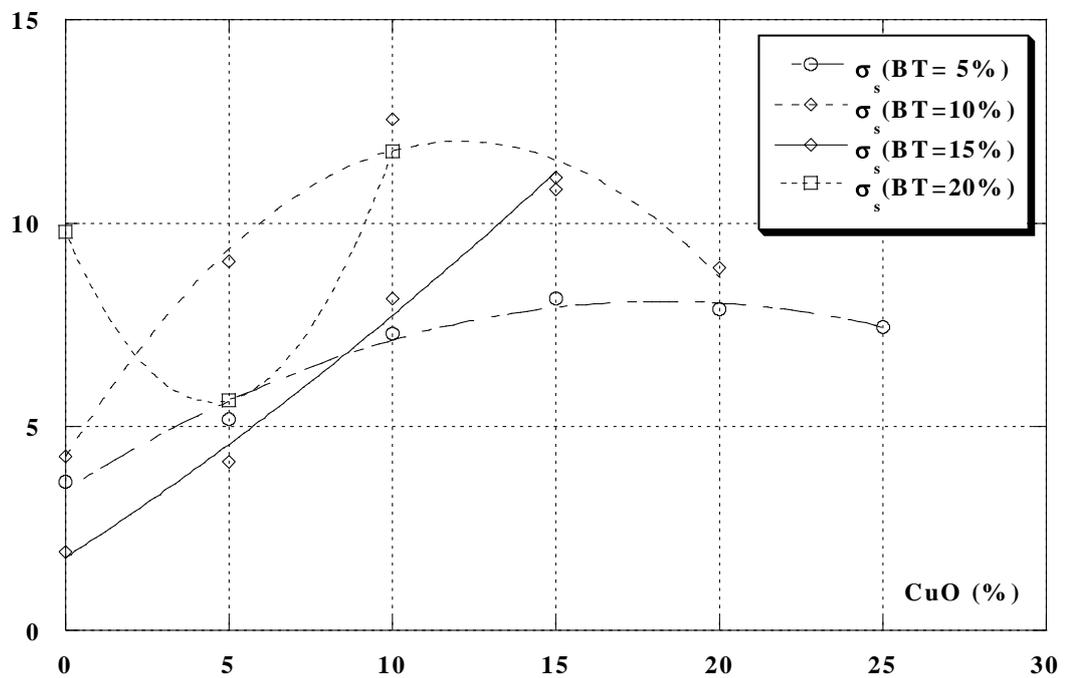


Figure 4-16: Variation de $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la fraction volumique du CuO pour le mélange RE.BT.CuO (BT = const.).

L'évolution de la conductivité σ_s présente un maximum de valeur $12.846 \times 10^{-3}(\Omega.m)^{-1}$ pour une composition centésimale du mélange (RE, TBa, CuO) respectivement (78.11.11). En contrepartie, un minimum de σ_s de valeur $5.659 \cdot 10^{-3}(\Omega.m)^{-1}$ est enregistré pour une concentration de 75.20.05. Entre ces deux proportions, il se produit un changement dans la tendance des concavités des familles de courbes à BT constante. Autrement dit, dans la figure 4-15 l'observation faite à travers les familles de courbes à concentration constante d'oxyde de cuivre, fait révéler pour une proportion de CuO égale à 15% une variation du type quasi linéaire de σ_s en fonction du pourcentage de BT.

A partir de cette concentration d'oxyde, on enregistre un changement du comportement des maximums: ceci s'exprime plutôt par une augmentation du maximum pour de basses concentrations de titanate BT.

4.3.2 Mélange Résine, BaTiO₃ et MgO [RE.BT.MgO]

Dans le but de comparer l'influence du troisième composant de ce type de mélanges ternaires, nous avons substitué l'oxyde de cuivre par l'oxyde du magnésium, tout en tenant compte de son caractère conducteur.

4.3.2.1 La constante diélectrique

Le mélange RE.BT.MgO présente en figure 4-17 une variation de la constante diélectrique statique ϵ_s en fonction de la concentration de MgO illustrée selon les deux familles courbes aux fractions volumiques constante de RE et BT.

En effet cette représentation graphique permet de prévoir une évolution linéaire de cette permittivité statique ϵ_s en fonction de la fraction volumique de l'oxyde de magnésium. Elle caractérise ainsi la courbe de concentration BT à 27% et correspondant aux mélanges de ce titanate renfermant les compositions centésimales suivantes 73.27.00/70.27.03/60.27.13/50.27.23. Cette variation constitue en conséquence la frontière entre les comportements Wiener direct et inverse. La courbe BT = 0% forme alors la limite inférieure correspondant à la loi de Wiener directe et présente une linéarité en rapport avec la concentration de résine époxyde.

La figure 4-18 représente l'influence de l'oxyde de magnésium dans la mélange RE.BT.MgO est aperçue comme une augmentation dans la valeur de la constante diélectrique statique pour des fractions volumiques de titanate BT croissantes. Ce type de variation ϵ_s en fonction du titanate de baryum montre effectivement une dépendance selon des lois de Wiener directe et inverse.

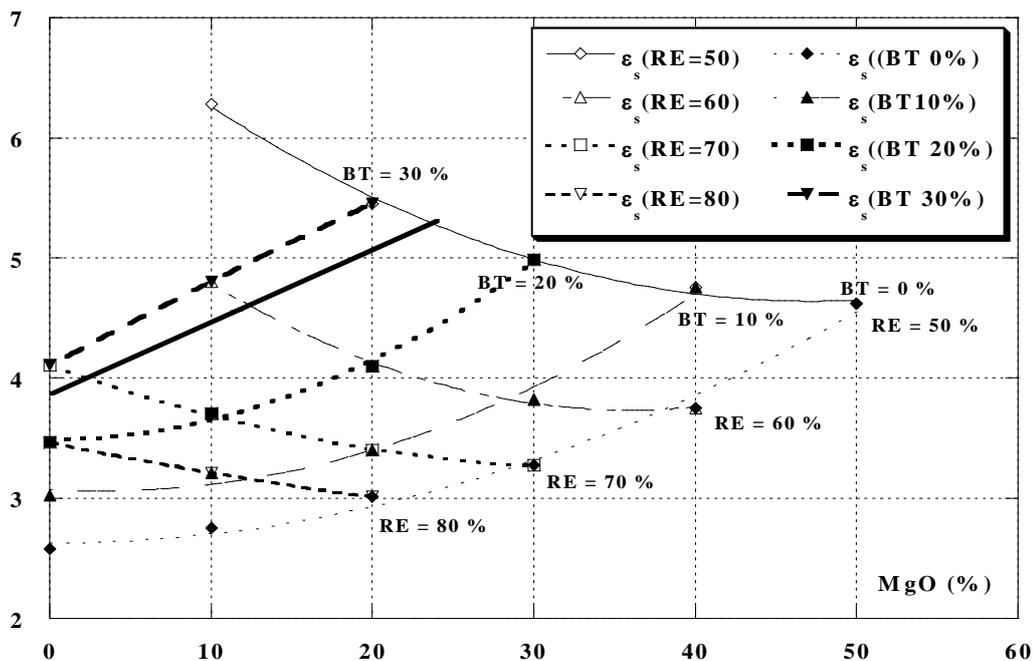


Figure 4-17: Variation de ϵ_s en fonction de la fraction volumique du MgO pour le mélange RE.BT.MgO (RE = const., BT = const.).

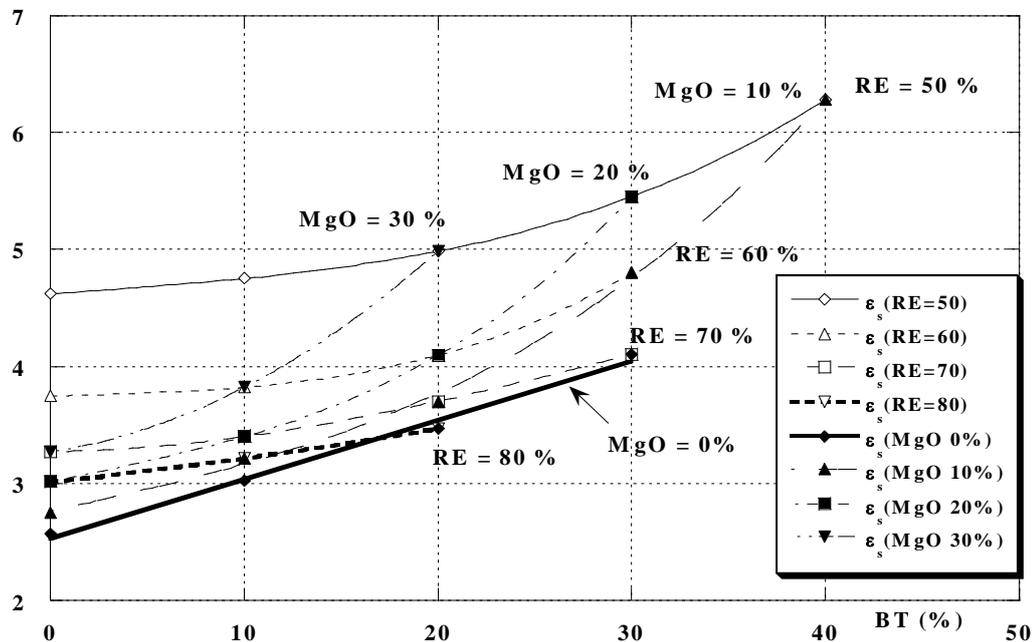


Figure 4-18: Variation de ϵ_s en fonction de la fraction volumique du BT pour le mélange RE.BT.MgO (RE = const., Mg = const.).

4.3.2.2 La conductivité statique

L'analyse des courbes de la figure 4-19 dévoile un maximum de la conductivité statique pour une fraction volumique de MgO égale à 10% dans le mélange ayant une composition de (RE.BT.MgO) respectivement 60.30.10. Ceci indique une différence du comportement de σ_s en comparaison avec celle du mélange RE.BT.CuO correspondant à un minimum produit pour CuO = 5% dans une composition de (RE.BT.CuO) respectivement 75.20.05 comme le montre la figure 4-14. Cette différence met en évidence que l'oxyde de cuivre comme troisième composant du mélange produit un effet conducteur plus faible que l'oxyde de magnésium.

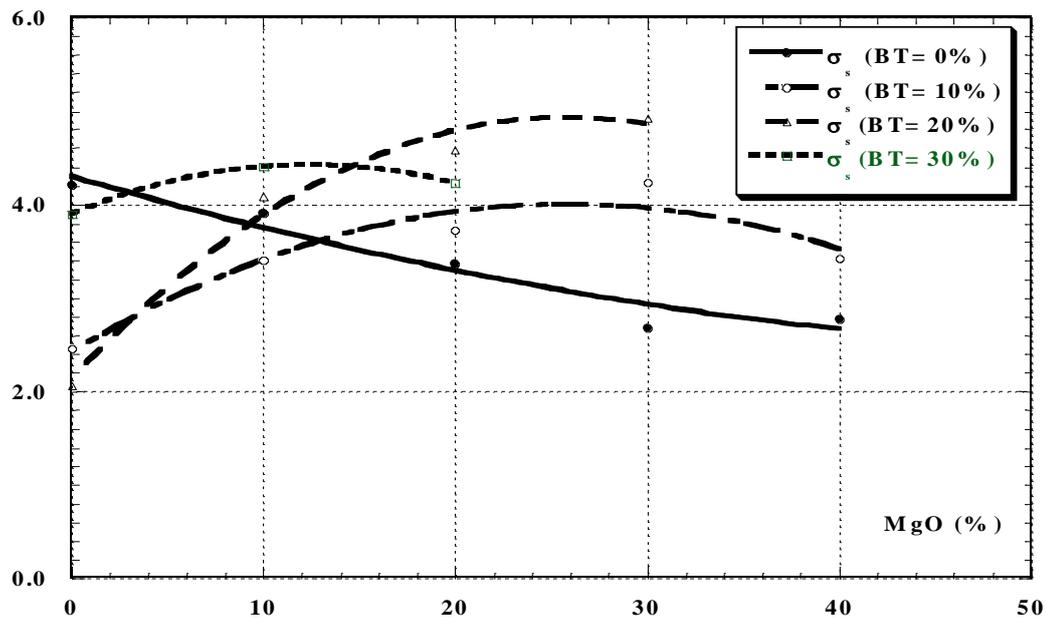


Figure 4-19: Variation de $\sigma_s \times 10^{-3} (\Omega \cdot m)^{-1}$ en fonction de la fraction volumique du MgO pour le mélange RE.BT.MgO (BT = const.).

4.3.3 Conclusion

Les différences enregistrées, d'une façon très nette, au niveau des comportements diélectrique et conducteur entre les composites RE.BT.CuO et RE.BT.MgO sont une réponse à l'effet de l'oxyde de cuivre ou de magnésium comme troisième composant. Comme celles là défavorisent l'option d'emploi du MgO, Ce qui nous conduits à considéré les mélanges résine - titanate - oxyde de cuivre.

Les résultats atteints dans ce travail, ainsi que ceux obtenus dans une étude préliminaire sur le mélange ternaire résine époxy - titanate de baryum - titanate de calcium, confirme la tendance vers un comportement linéaire de ϵ_s et pour une proportion de résine RE = 70%.

4.4 Mélanges Résine, CuO et (BaTiO₃, CaTiO₃ et MgTiO₃)

En partant des résultats acquis dans la partie précédente, nous avons gardé le CuO comme oxyde et avons pris comme titanates trois types différents : BaTiO₃, CaTiO₃ et MgTiO₃. A cet effet une analyse comparative est faite pour mettre en évidence l'influence de l'oxyde de cuivre sur le type de titanate employé.

4.4.1 Constante diélectrique

A partir de la figure 4-20, on remarque qu'une forte augmentation d'oxyde CuO conduit à une baisse de la valeur de ϵ_s pour les trois mélanges de titanate. Par contre pour une concentration de cet oxyde autour de 5%, la valeur la plus petite de cette constante diélectrique est fournie par le mélange RE.MT.CuO.

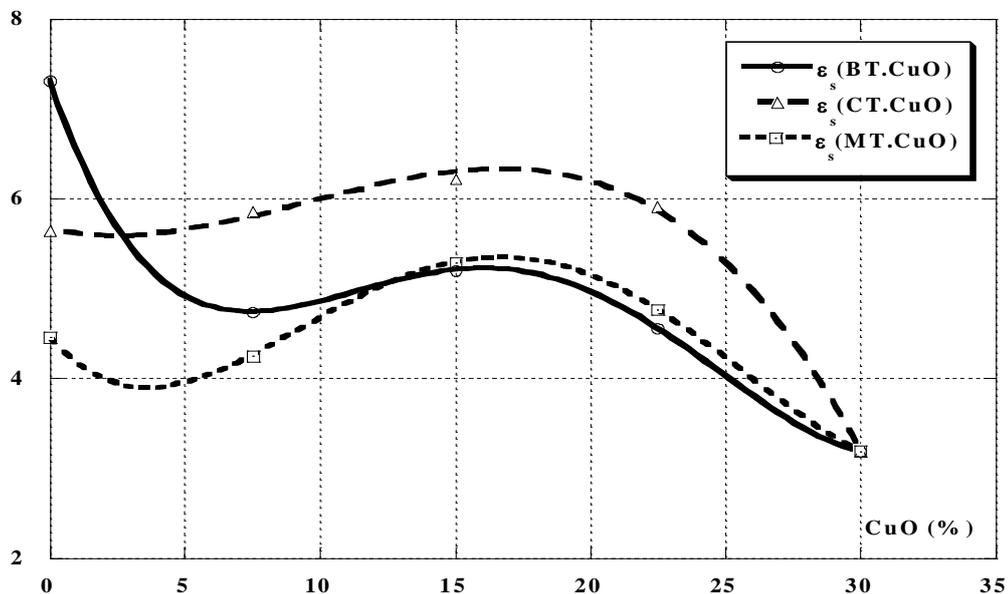


Figure 4-20: Evolution de ϵ_s en fonction de la fraction volumique du CuO pour les trois mélanges RE.BT.CuO, RE.CT.CuO et RE.MT.CuO (RE = 70%).

4.4.2 Conductivité statique

L'évolution de la conductivité au niveau de la figure 4-20 suit une même tendance pour les trois types de titanates et présente pour chacun d'eux un maximum de σ_s pour une fraction volumique de CuO située entre 15-18% et avec une proportion de résine époxy RE = 70%.

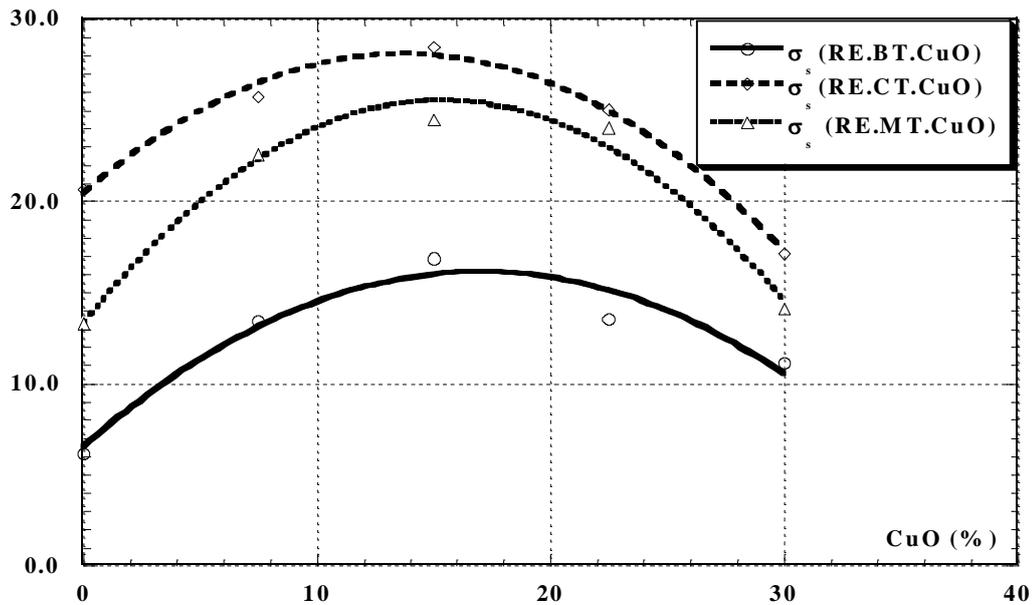


Figure 4-21: Evolution de $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la fraction volumique du CuO pour les trois mélanges RE.BT.CuO, RE.CT.CuO et RE.MT.CuO (RE = 70%).

L'évolution de la conductivité au niveau de la figure 4-21 suit une même tendance pour les trois types de titanates et présente pour chacun d'eux un maximum de σ_s pour une fraction volumique de CuO située entre 15-18% et avec une proportion de résine époxy RE = 70%.

4.4.3 Modèle théorique

La validité du modèle modifié de Lichtenecker a été vérifiée par comparaison des valeurs expérimentales aux valeurs théoriques (figure 4-22). Le comportement du mélange RE.BT.CuO est le plus défavorable pour sa tendance vers une diminution sévère de la constante diélectrique statique au delà d'une concentration d'oxyde de cuivre de 15%.

A l'opposé, le comportement du RE.CT.CuO montre un bon accord entre les résultats théoriques de $(\varepsilon_s)_L$ du modèle de Lichtenecker et l'évolution de valeurs expérimentales $(\varepsilon_s)_{exp}$, et où conjointement suivent une loi de Wiener directe. Similairement à celui-ci, le comportement du RE.MT.CuO présente une concordance totale entre le modèle théorique et les résultats expérimentaux.

Ce comportement est effectivement traduit par l'évolution des facteurs $(B)_L$, $(C)_L$, et $(M)_L$ du modèle modifié de Lichtenecker pour les trois composites ternaires (figure 4-23). Comme il a été signalé précédemment en évidence, le mélange RE.BT.CuO est le plus infecté par l'effet de l'oxyde de cuivre ou le valeur du facteur $(M)_L$ diminue progressivement avec l'augmentation de l'oxyde. Par contre les deux autres mélanges de titanate de calcium et de

magnésium présentent des valeurs proches à l'unité, dans une plage de fraction volumique d'oxyde de cuivre comprise entre 3 - 23%.

La valeur maximale du facteur $(M)_L$ pour le composite RE.MT.CuO coïncide presque avec le minimum du facteur $(C)_L$ pour le mélange ternaire RE.CT.CuO avec une concentration de CuO aux alentours de 13%, déduite d'une composition similaire pour les autres mélanges de la même série.

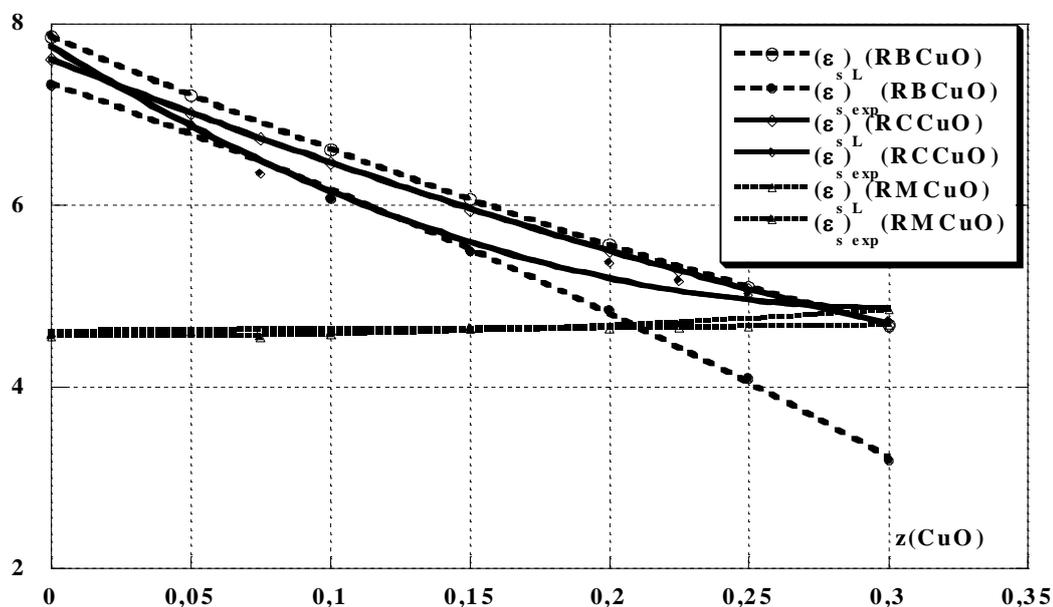


Figure 4-22: Comparaisons entre ϵ_{s_exp} et $\epsilon_{s_Lichtenecker}$ en fonction de la fraction volumique du CuO pour les trois mélanges RE.BT.CuO, RE.CT.CuO et RE.MT.CuO (RE = 70%).

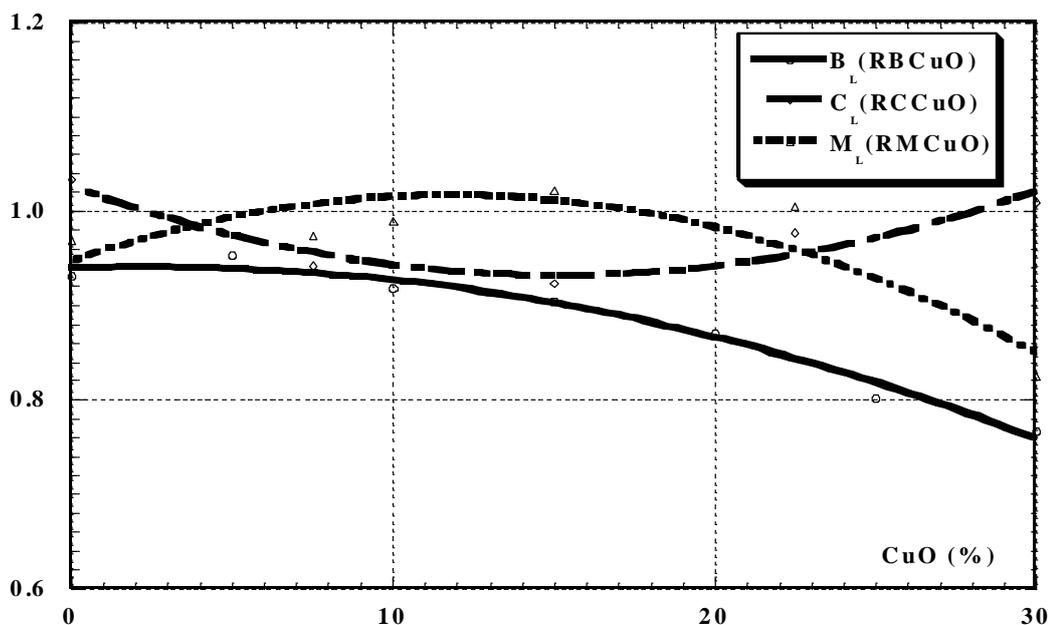


Figure 4-23: Evolution des facteurs B_L , C_L et M_L en fonction de la fraction volumique du CuO pour les trois mélanges RE.BT.CuO, RE.CT.CuO et RE.MT.CuO (RE = 70%).

4.4.4 Conclusion

Les résultats émergeant de l'application du modèle modifié de Lichtenecker aux mélanges ternaires, montrent une bonne concordance avec les valeurs expérimentales pour RE.BT.CuO et RE.CT.CuO, et en particulier pour ce dernier composite de titanate. Toutefois, la concordance est totale pour le mélange RE.MT.CuO, malgré qu'il expose un comportement différent. C'était une conséquence de la structure similaire de type pérovskite que les titanates de baryum et de calcium disposent. Bien au contraire, la structure cristalline que présente le titanate de magnésium est de type ilménite tout à fait différente de la précédente [3].

Concernant le comportement diélectrique du mélange RE.BT.CuO, il faut constater que la proportion de 15% d'oxyde de cuivre constitue une limite entre deux états différents. Pour cette proportion la famille des courbes présentent un changement de concavité en fonction de la fraction volumique de titanate de baryum. Ce même effet est dévoilé au niveau de la conductivité qui prévoit l'existence d'un possible état de percolation dans le mélange ternaire.

En contre partie, le mélange RE.BT.MgO présente une variation linéaire de ε_s pour la fraction BT = 27%, de façon que la dépendance en fonction de titanate de baryum est comprise entre les limites établies par les lois de Wiener directe et inverse. Ce fait permet de conclure que l'influence d'oxyde de magnésium dans la mélange ternaire est négligeable par rapport avec celle d'oxyde de cuivre, ceci est du aux valeurs plus basses de la conductivité statique.

4.5 Comportement diélectrique en fonction de la fréquence

4.5.1 Introduction

La permittivité diélectrique est une propriété physique qui dépend généralement de la fréquence d'excitation. Nous proposons à travers cette section les résultats spectraux bruts (sans aucun traitement, par exemple : effet des connecteurs, de la troncature, des faces de l'échantillon, des modes de propagation [3, 67]) de la permittivité des différentes séries d'échantillons que nous avons réalisés.

La réponse TDR de chaque échantillon est mesurée avec différentes fenêtres d'observation. La figure ci-dessous nous permet de voir l'effet du choix de la fenêtre d'observation sur le spectre fréquentiel de la permittivité complexe d'un échantillon Époxyde-BaTiO₃-CuO (70-7.5-22.5). Nous remarquons que les différences sont minimes.

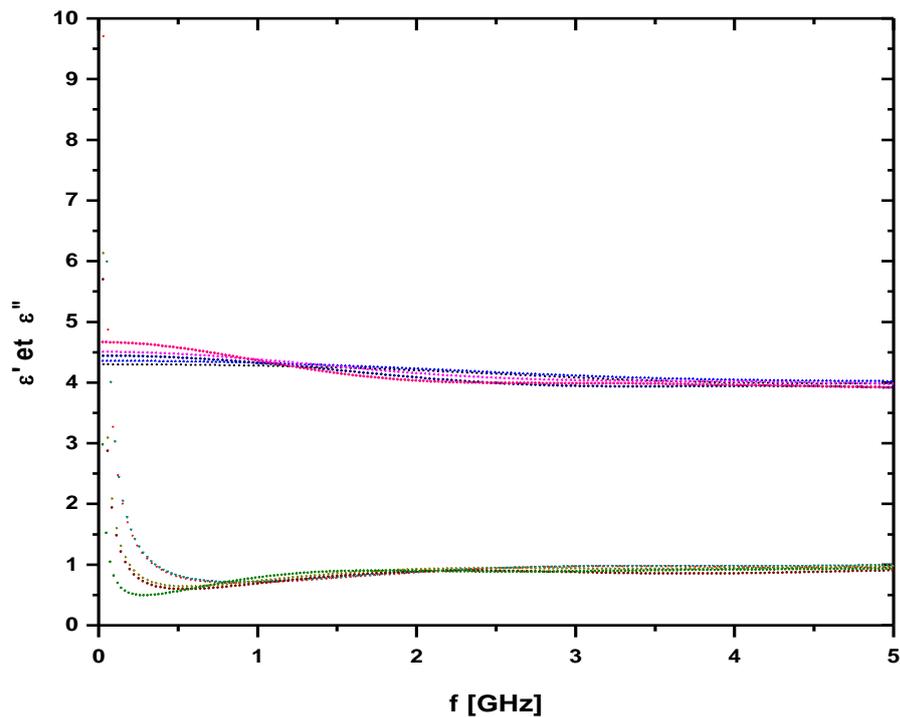


Figure 4-24: Comportement diélectrique de l'Époxyde-BaTiO₃-CuO (70-7.5-22.5) selon différentes fenêtres d'observation.

On donne d'abord les courbes de la permittivité complexe des différents échantillons indépendamment puis on va essayer d'interpréter le comportement enregistré.

4.5.2 Mélange Résine, BaTiO₃ et CuO [RE.BT.CuO]

Les différentes réponses fréquentielles de la permittivité pour la série d'échantillons TBa – CuO – Epoxyde sont représentées par les figures suivantes.

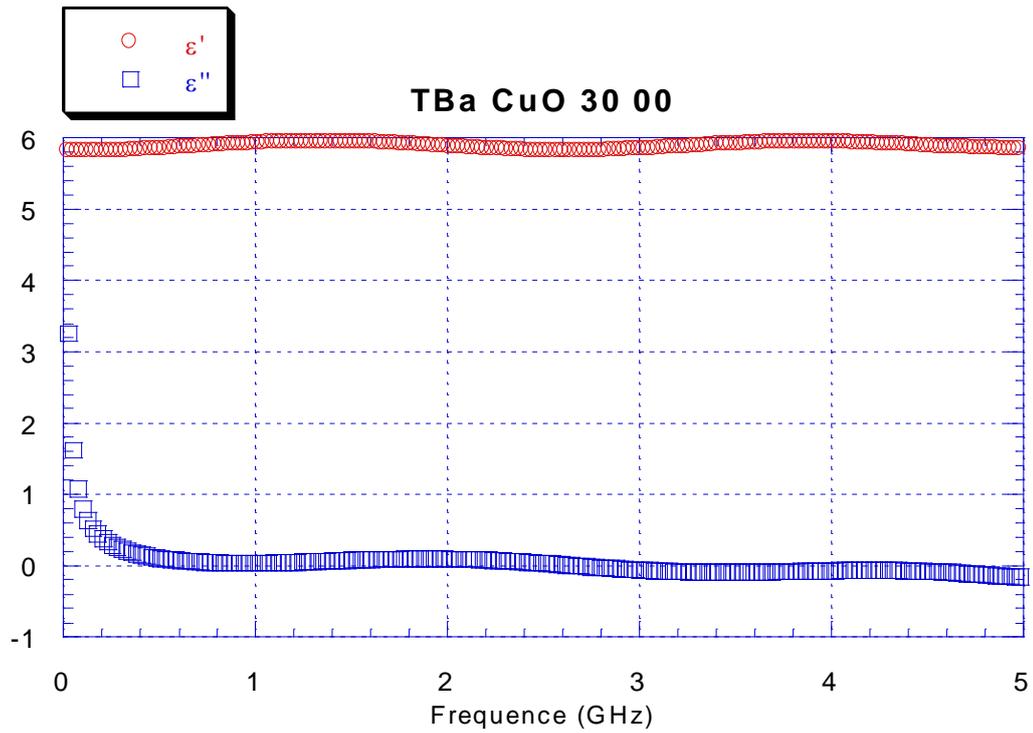


Figure 4-25: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (30 / 00 / 70) %.

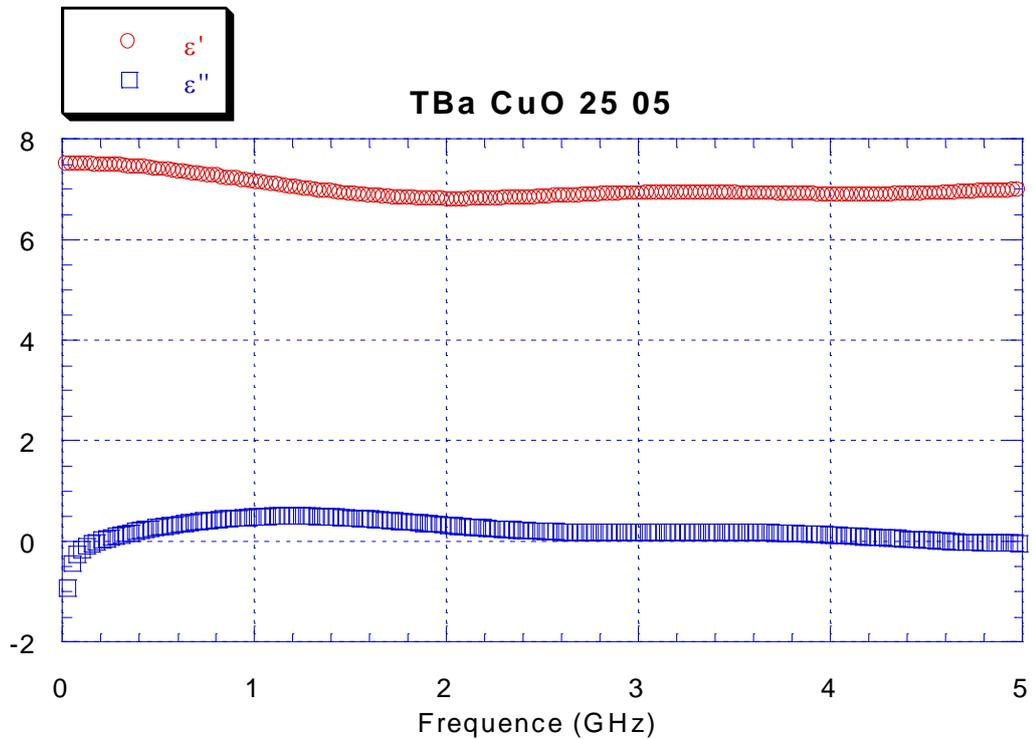


Figure 4-26: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (25 / 05 / 70) %.

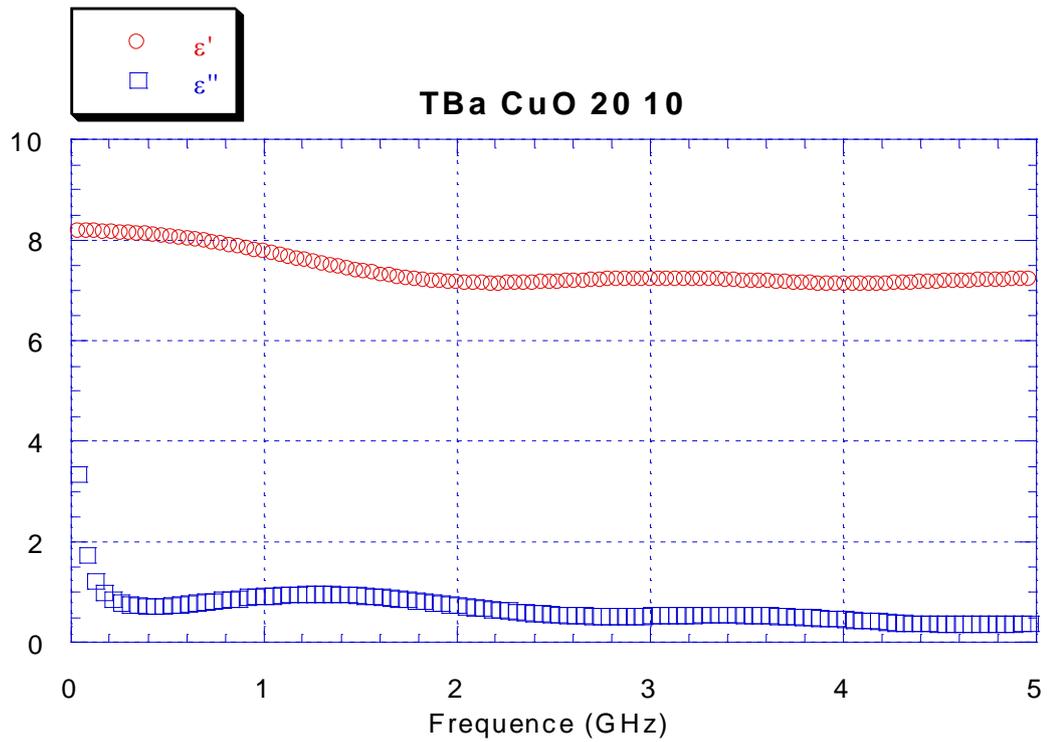


Figure 4-27: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (20 / 10 / 70) %.

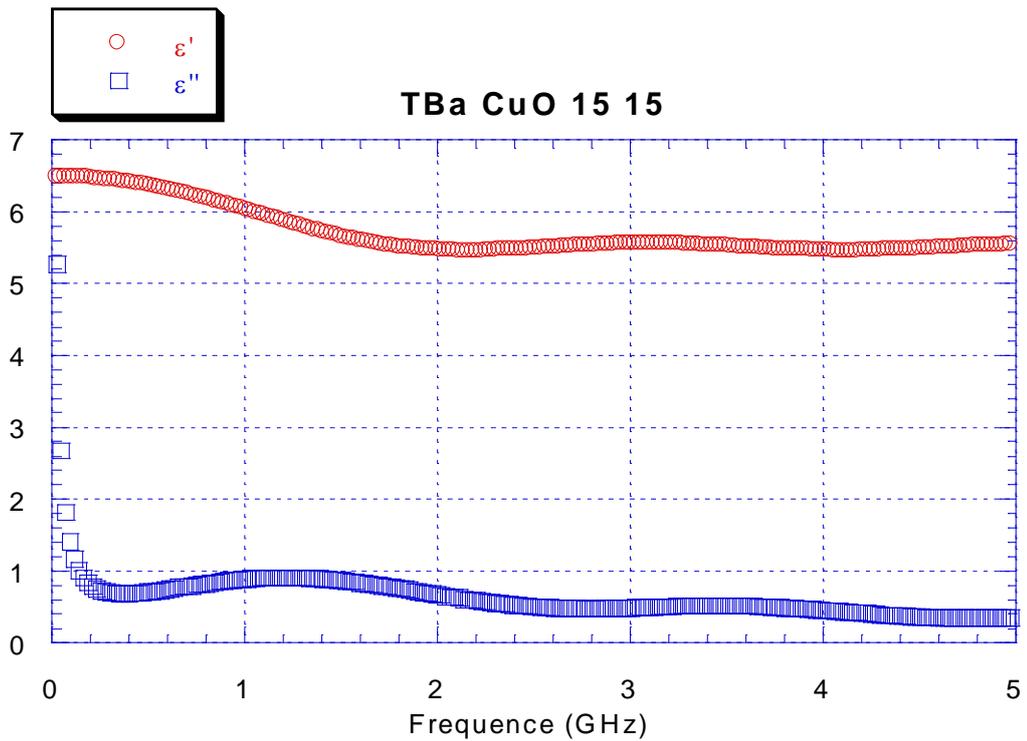


Figure 4-28: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (15 / 15 / 70) %.

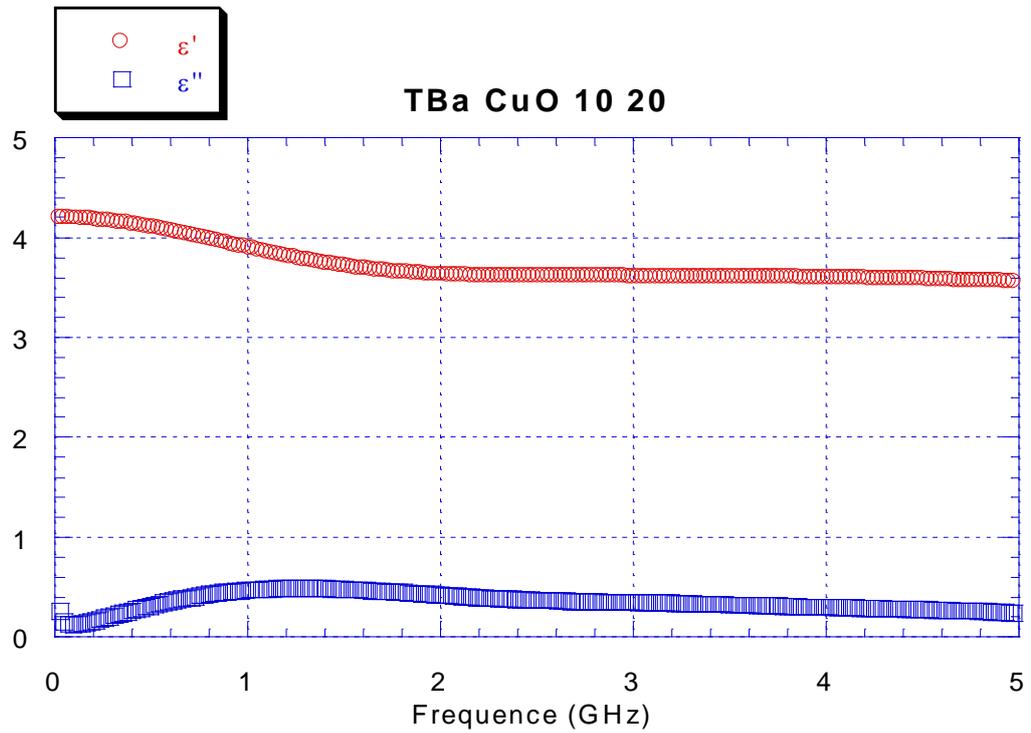


Figure 4-29: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (10 / 20 / 70) %.

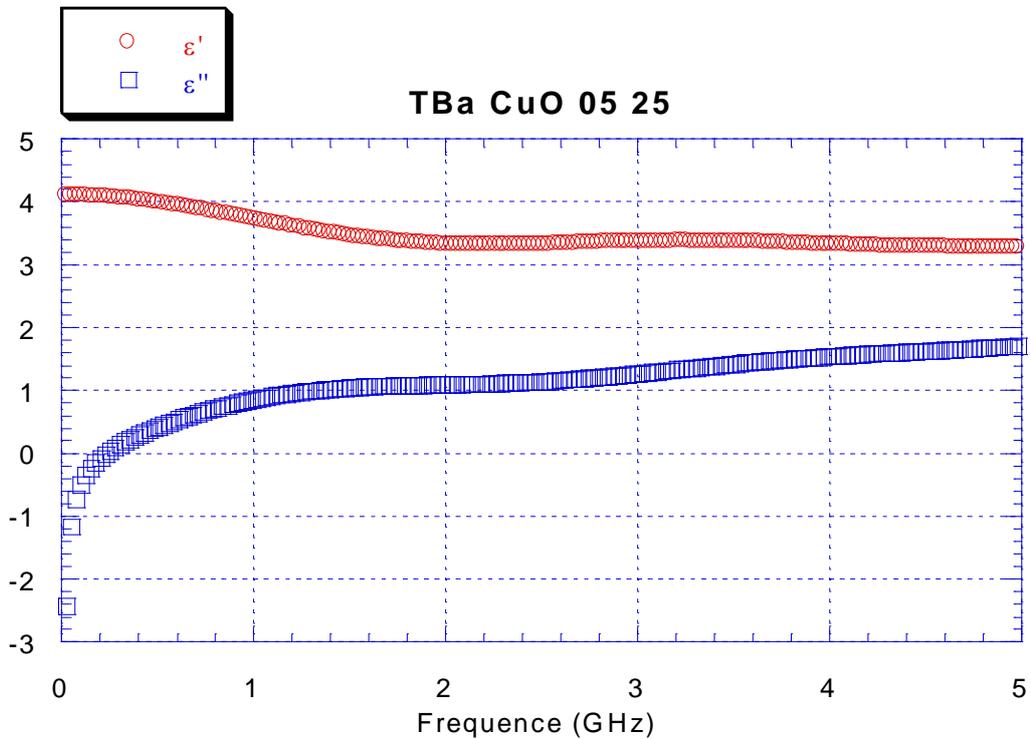


Figure 4-30: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (05 / 25 / 70) %.

On remarque que la permittivité réelle est quasi constante dans la plage de fréquence indiquée malgré les faibles fluctuations qui sont généralement introduites par les sources d'erreurs de mesure incontournables [3, 67].

4.5.3 La résine époxyde pure

La réponse TDR enregistrée pour un échantillon à 100% de résine époxyde (50% Résine et 50% Durcisseur), de 2,5 mm d'épaisseur a conduit au comportement diélectrique représenté par la figure 4-31.

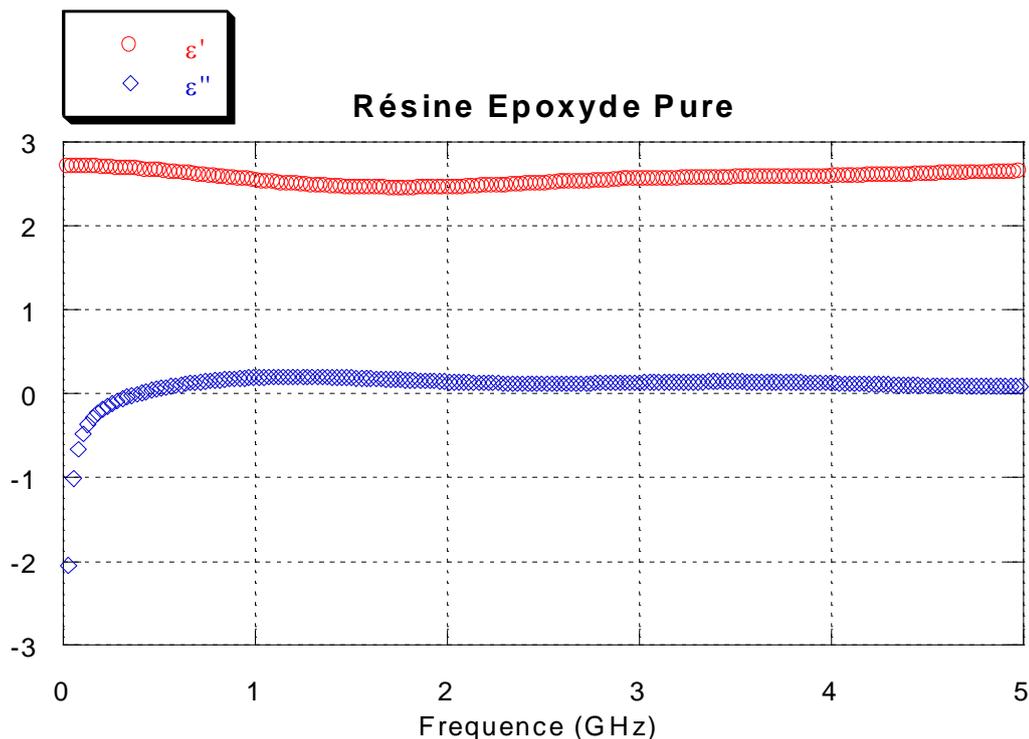


Figure 4-31 : Permittivité complexe de la résine époxyde en fonction de la fréquence.

Nous remarquons que la permittivité réelle de la résine est quasi-constante dans les 5 premiers GHz du spectre fréquentiel. Sa valeur est alentours de 2,5.

La partie imaginaire est assez faible, et peut être considérée comme nulle, ce que veut dire qu'il n'y a pas de perte diélectrique dans la résine.

4.5.4 Mélange Résine, BaTiO₃ et MgO [RE.BT.MgO]

Les différentes réponses fréquentielles de la permittivité pour la série d'échantillons TBa – MgO – Epoxyde sont représentées par les figures suivantes.

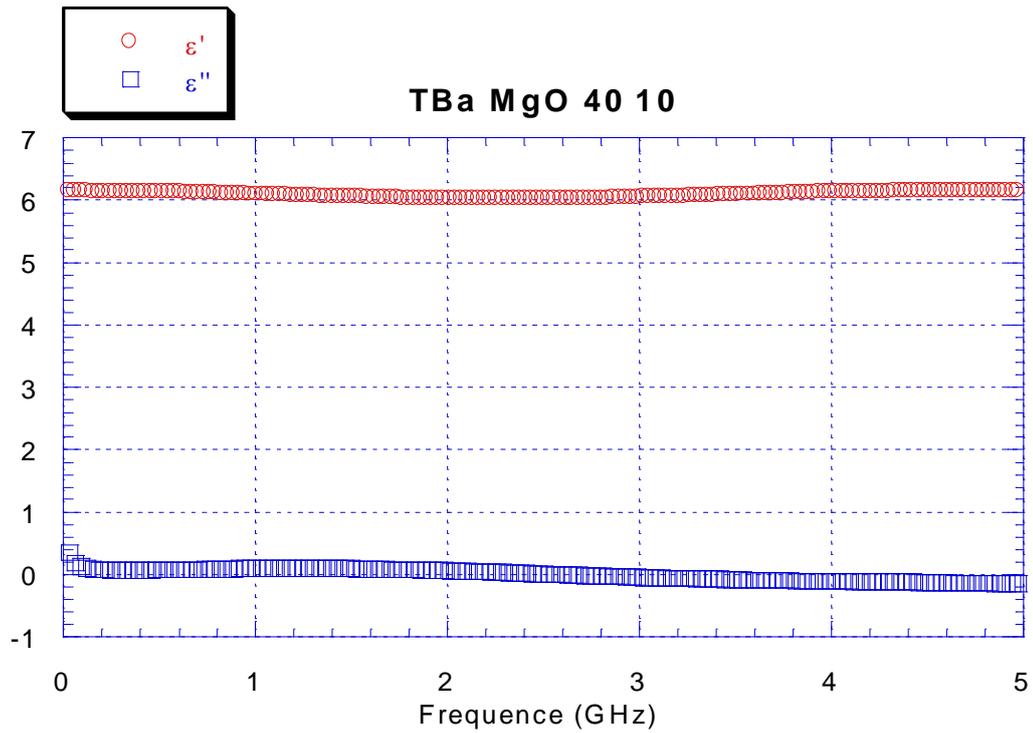


Figure 4-32: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-MgO-Epoxyde à (40 / 10 / 50) %.

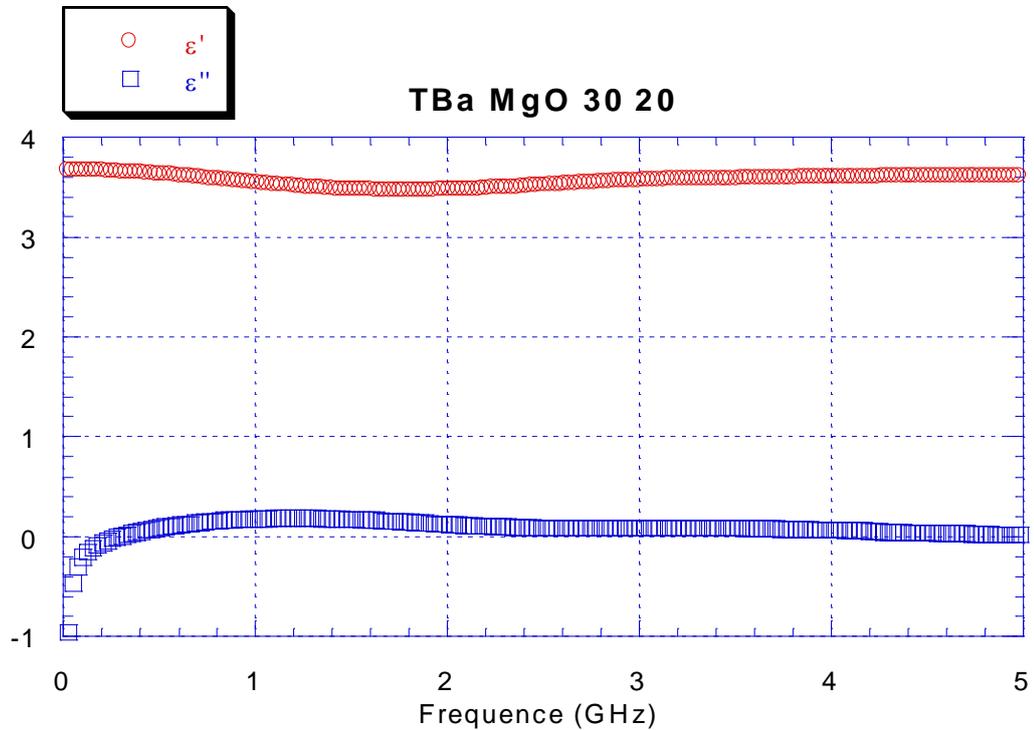


Figure 4-33: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-MgO-Epoxyde à (30 / 20 / 50) %.

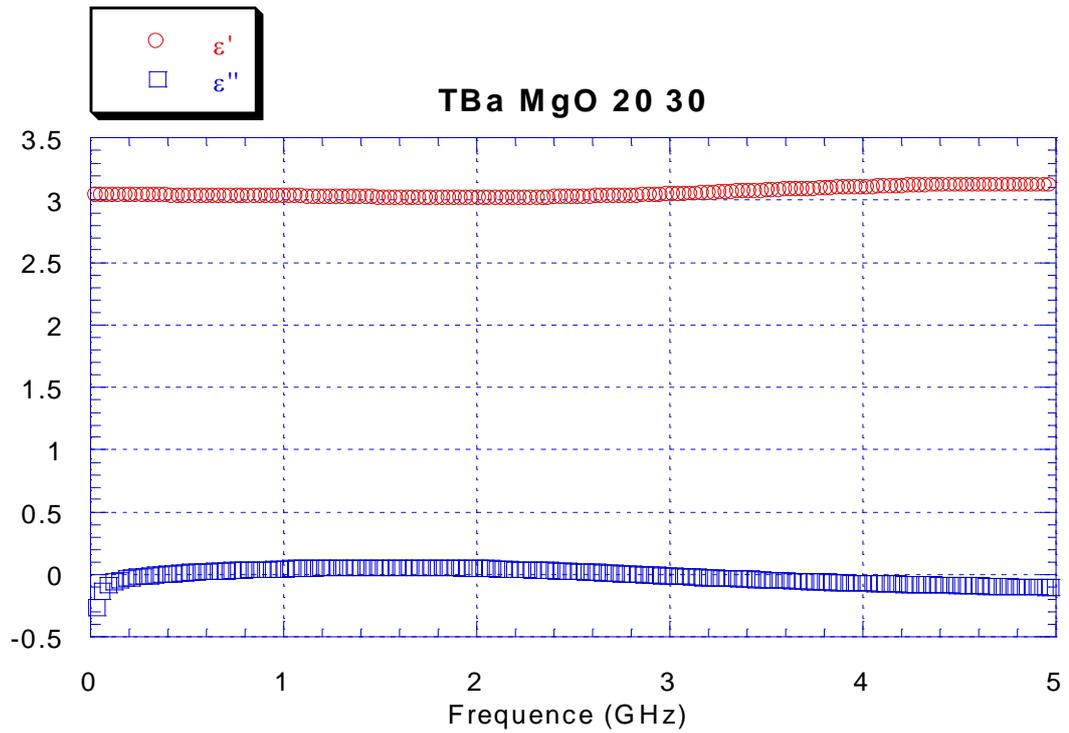


Figure 4-34: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-MgO-Epoxyde à (20 / 30 / 50) %.

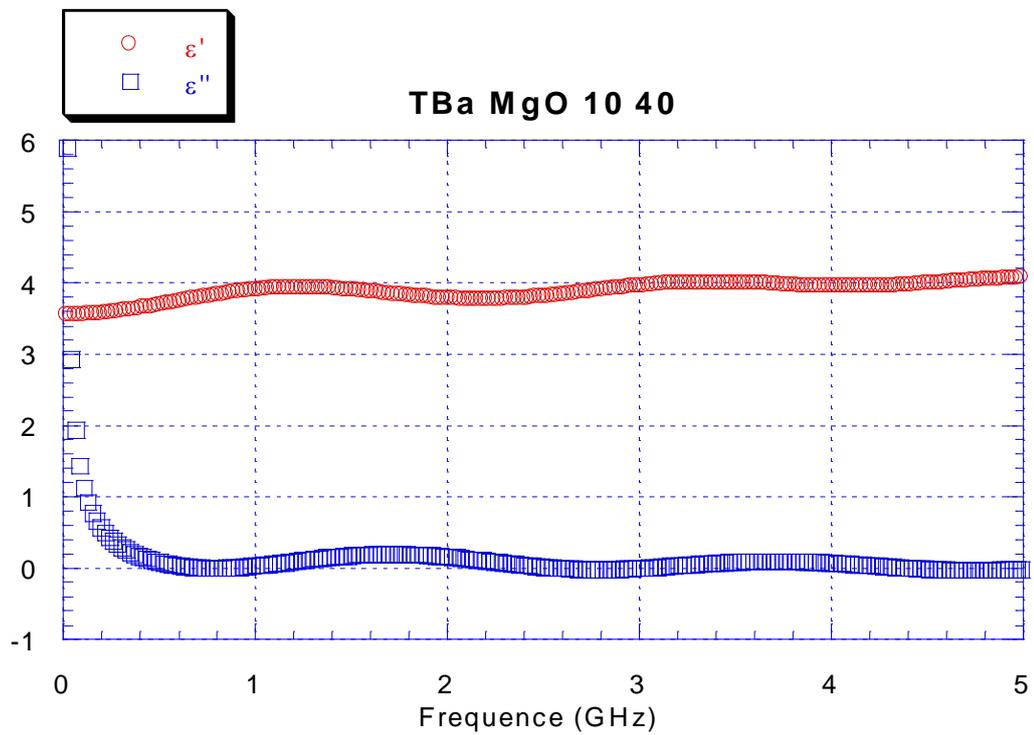


Figure 4-35: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-MgO-Epoxyde à (10 / 40 / 50) %.

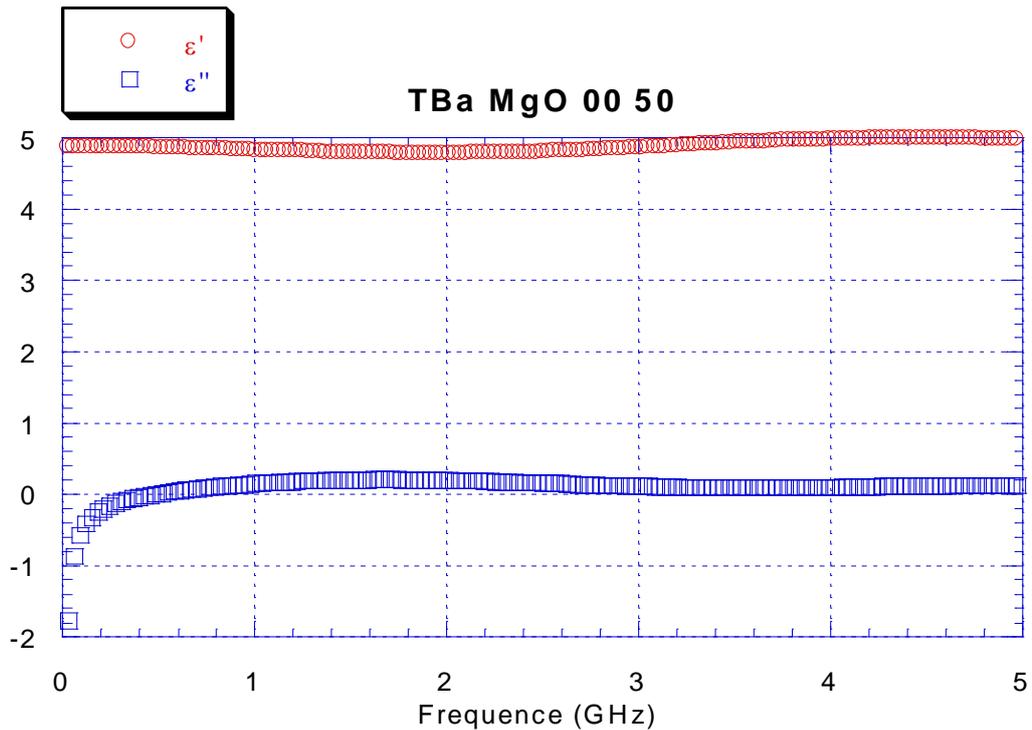


Figure 4-36: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-MgO-Epoxyde à (00 / 50 / 50) %.

4.5.5 Série d'échantillons : Epoxyde, Titanates de Baryum et Oxyde de cuivre.

Cette nouvelle série du TBa-CuO-Epoxyde est celle élaborée et caractérisée lors de l'étude de l'effet du type de titanates sur le comportement diélectrique en présence de l'oxyde de cuivre.

A partir des figures suivantes, on peut dire que la permittivité réelle est quasi-constante à partir d'une valeur de fréquence qui est inversement proportionnelle à la quantité de BaTiO_3 utilisée. La partie imaginaire commence à augmenter en valeur mais elle reste assez faible. Pour une fréquence donnée, elle est proportionnelle à la concentration du BaTiO_3 .

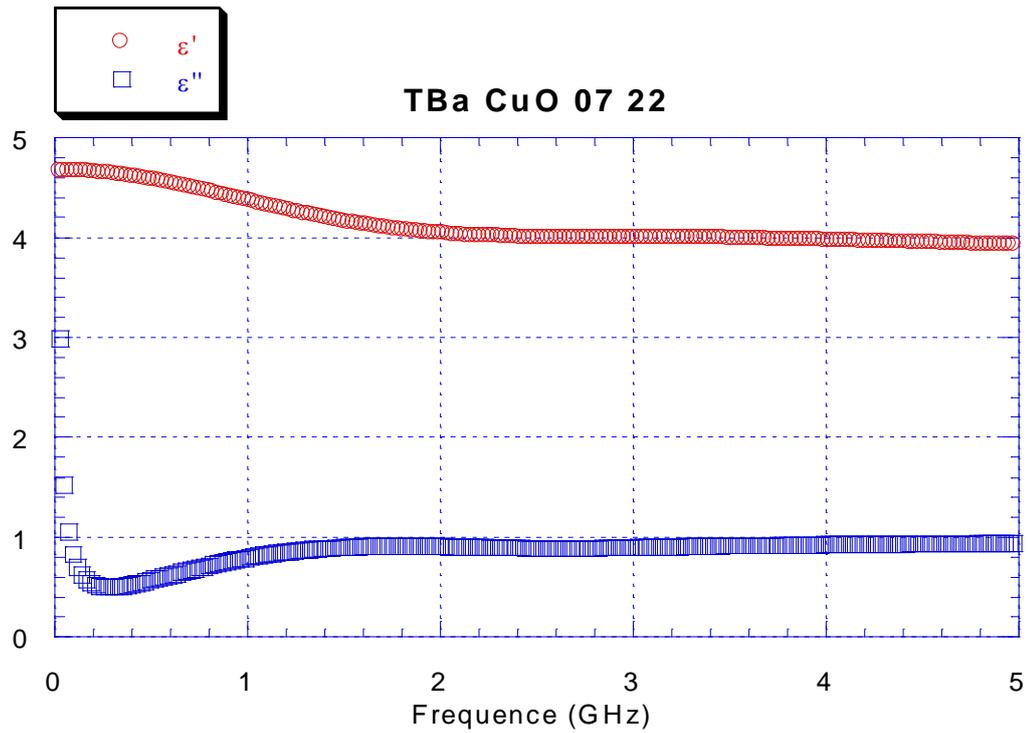


Figure 4-37: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (07.5 / 22.5 / 70) %.

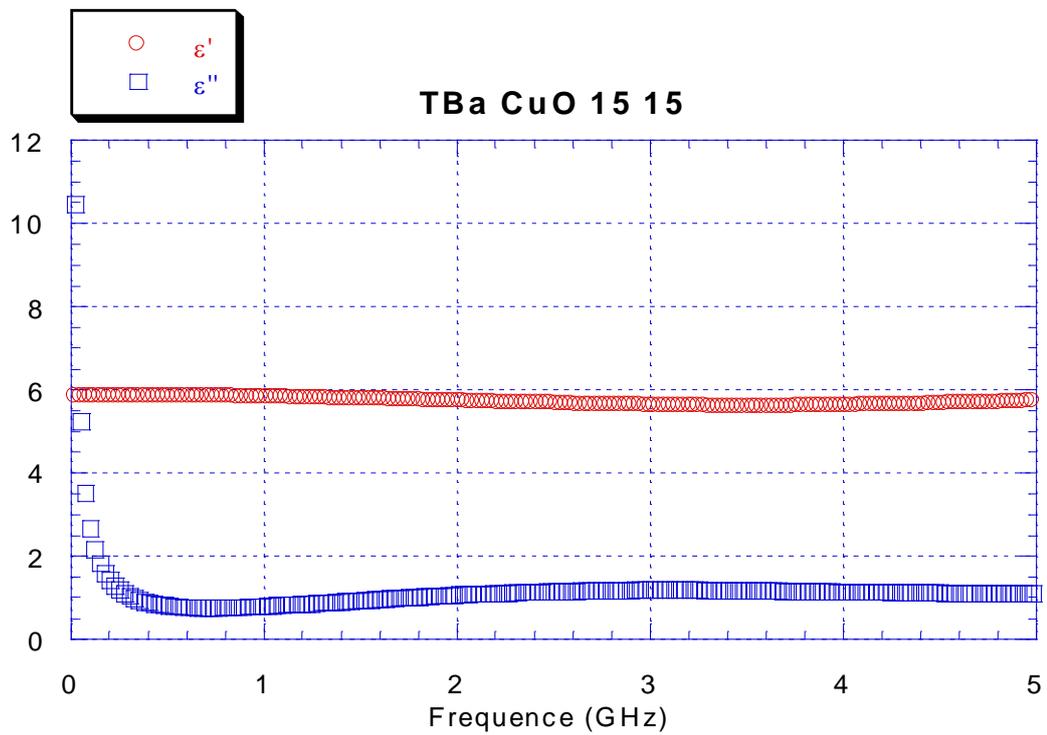


Figure 4-38: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (15 / 15 / 70) %.

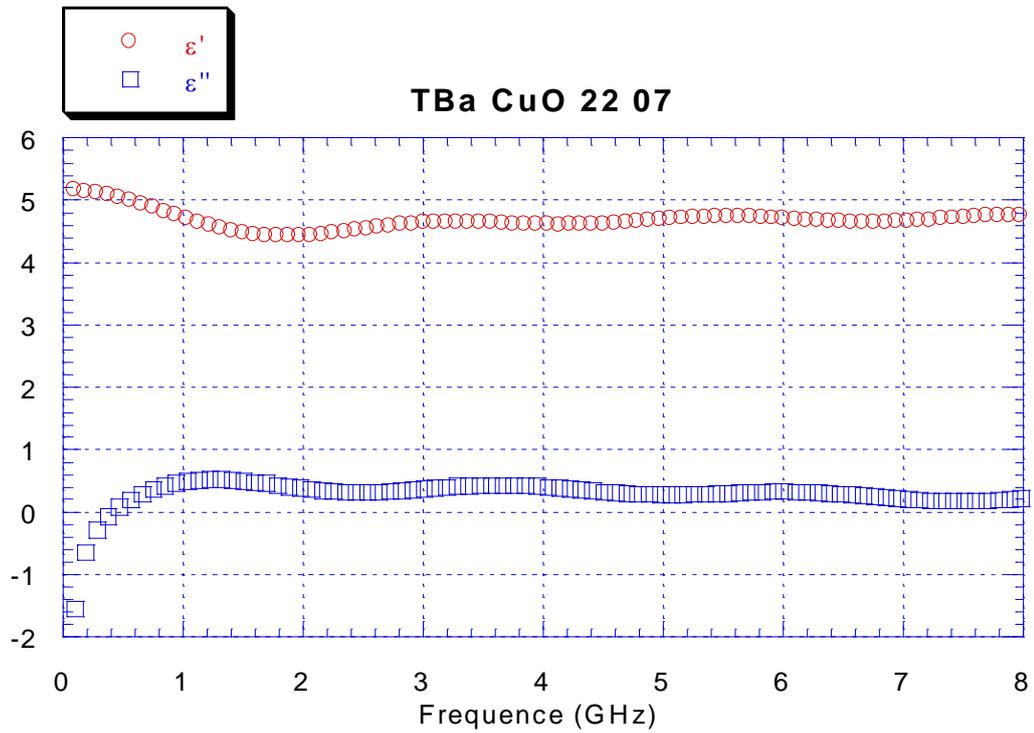


Figure 4-39: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (22.5 / 07.5 / 70) %.

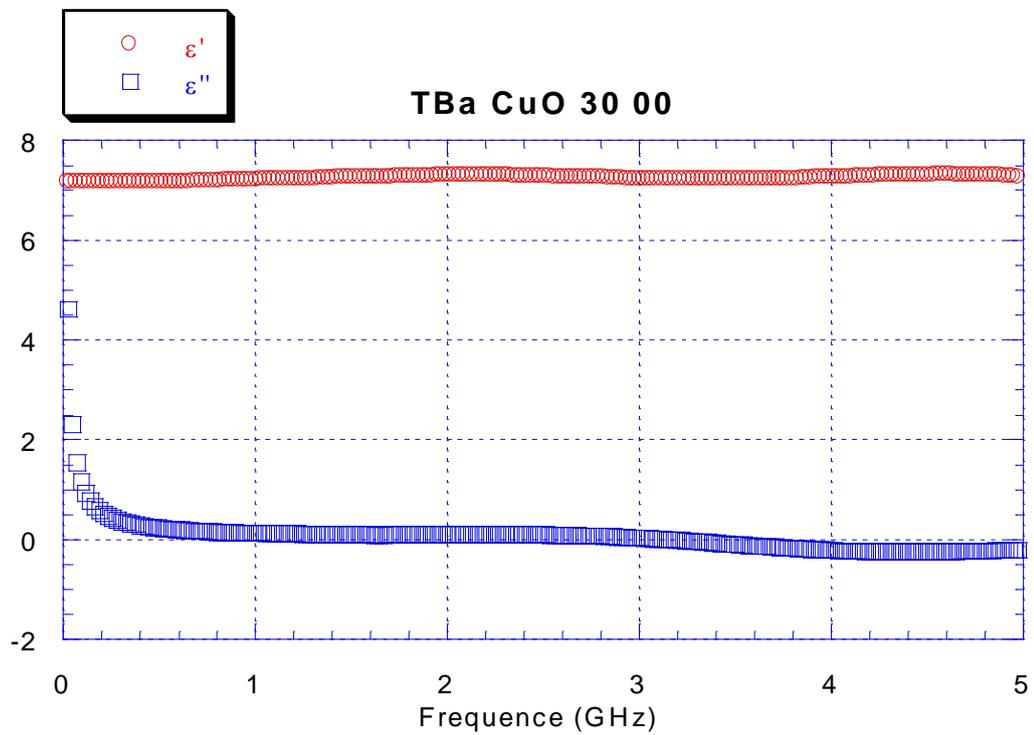


Figure 4-40: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TBa-CuO-Epoxyde à (30 / 00 / 70) %.

4.5.6 Série d'échantillons : Epoxyde, Titanates de Calcium et Oxyde de cuivre.

Sur les figures suivantes on présente les permittivités réelle et imaginaire des composites ternaires réalisés à base de résine Epoxyde, de titanates de calcium et d'oxyde de cuivre.

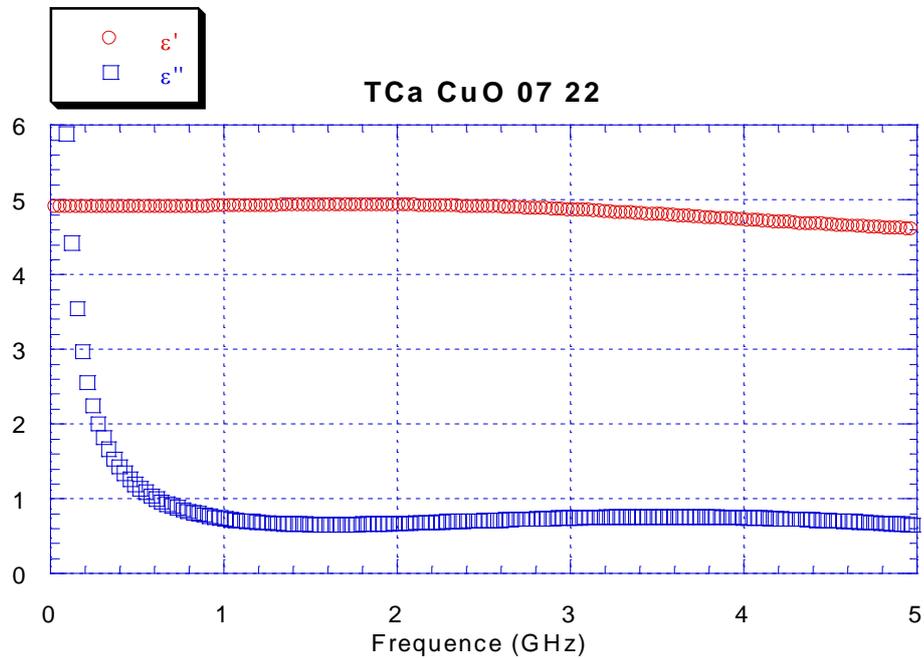


Figure 4-41: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TCa-CuO-Epoxyde à (07.5 / 22.5 / 70) %.

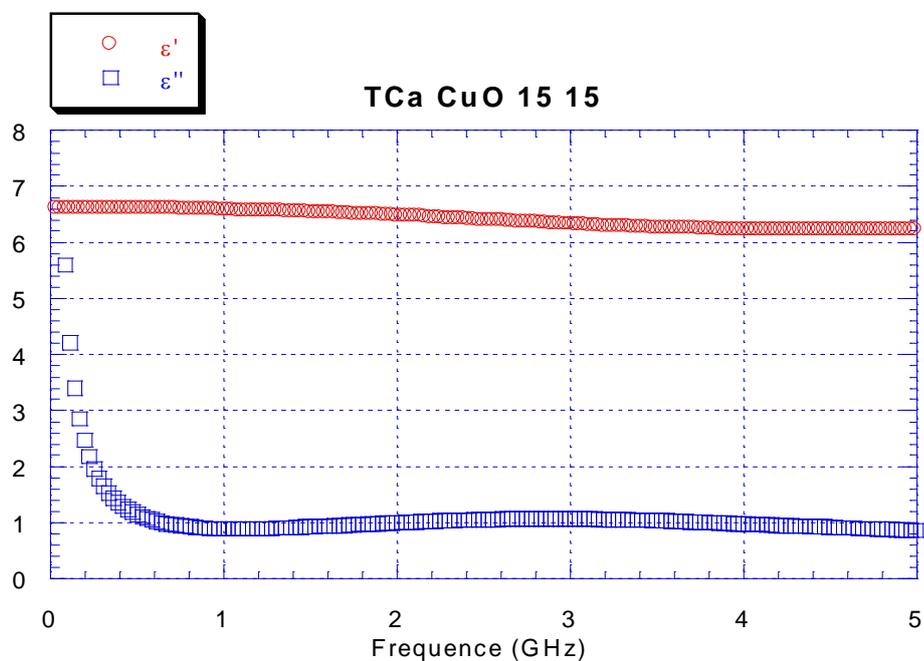


Figure 4-42: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TCa-CuO-Epoxyde à (15 / 15 / 70) %.

Nous remarquons que la permittivité réelle a diminué avec l'augmentation du CuO, est quasi-constante sur la bande de fréquence qui s'étale jusqu'à 5 GHz.

4.5.7 Série d'échantillons : Epoxyde, Titanate de Magnésium et Oxyde de cuivre.

Sur les figures suivantes on présente les permittivités réelle et imaginaire des composites ternaires réalisés à base de résine Epoxyde, de titanates de magnésium et d'oxyde de cuivre.

Dans cette série, nous remarquons que la permittivité réelle quasi-constante sur la bande de fréquence qui s'étale jusqu'à 5 GHz. Une légère augmentation de ϵ'' proportionnelle à la quantité du CuO est remarquée sur le graphe. Ceci est traduit par la nature semi-conductrice du CuO qui augmente ainsi la conductivité effective du milieu composite.

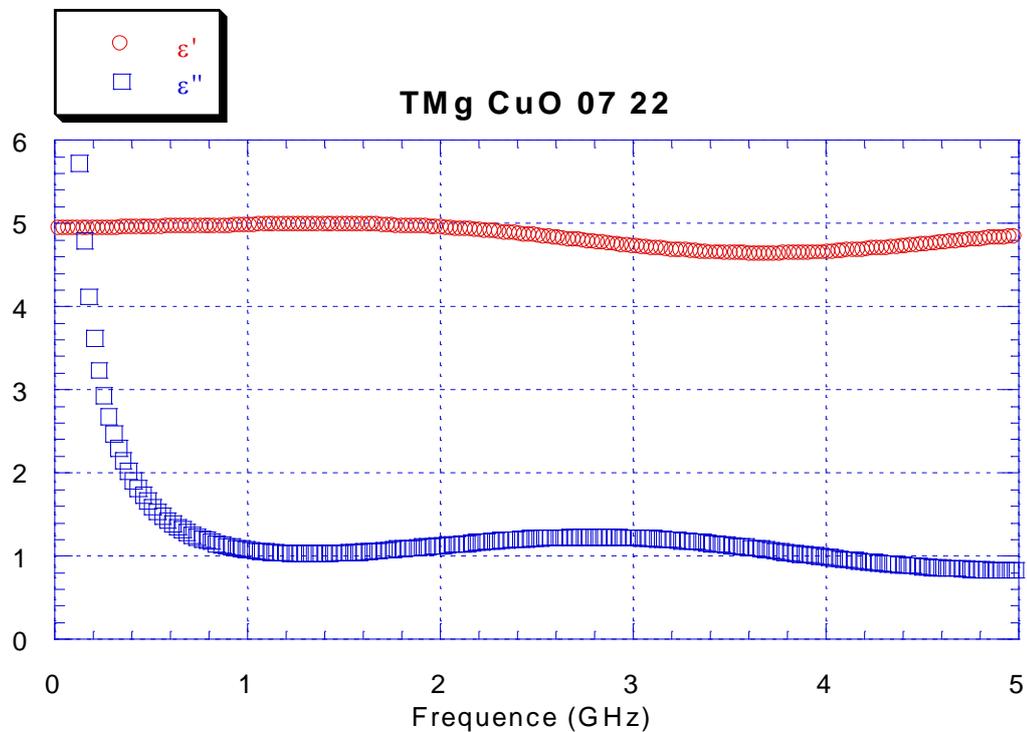


Figure 4-43: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TMg-CuO-Epoxyde à (07.5 / 22.5 / 70) %.

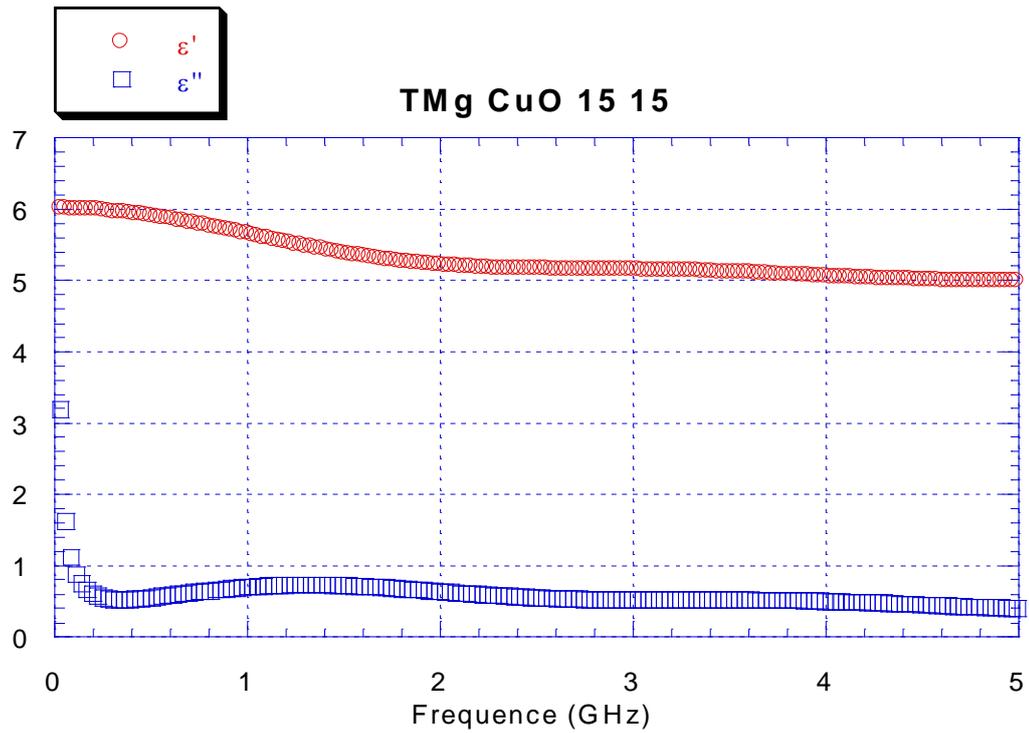


Figure 4-44: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TMg-CuO-Epoxyde à (15/ 15 / 70) %.

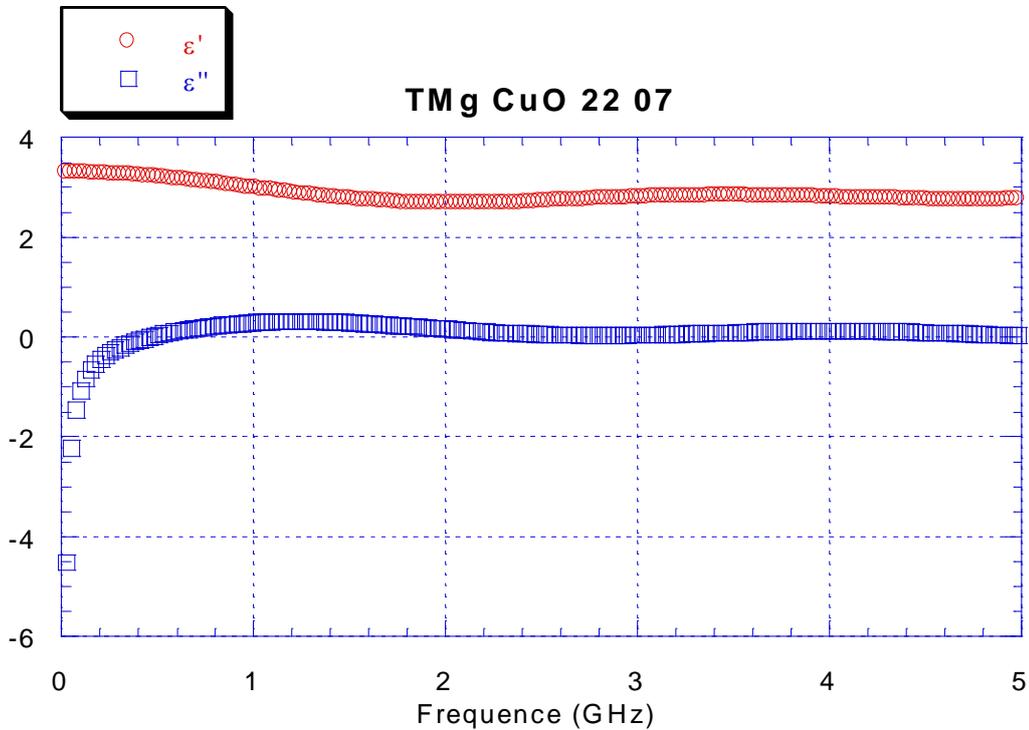


Figure 4-45: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite TMg-CuO-Epoxyde à (22.5/ 07.5 / 70) %.

En comparant les courbes obtenues avec celles des deux premières séries, on peut dire que la réponse diélectrique de cette série est plus stable. Les pertes enregistrées restent presque identiques pour l'ensemble des échantillons réalisés.

CONCLUSION
GENERALE

Conclusion générale

Cette thèse présente une étude de plusieurs matériaux diélectriques et semi-conducteur peu connus ou inconnus comme mélange, dont les propriétés attendues correspondent aux exigences des applications hyperfréquences. L'objectif tel qu'il nous a été demandé était de faire l'élaboration puis la caractérisation d'un ensemble d'échantillons à base de différents types de titanates et d'oxydes, afin d'étudier le comportement diélectrique des composites résultants de ces différentes combinaisons et fractions volumiques, ceci sur une plage de fréquence qui s'étend de 200MHz à 5 GHz, en utilisant la spectroscopie temporelle comme technique de caractérisation.

Nous avons exposé en détails toute la procédure expérimentale que nous avons suivis depuis l'élaboration des échantillons jusqu'à l'obtention des résultats finaux. Afin de mieux comprendre notre travail, nous avons jugé utile de commencer par une théorie nécessaire sur les milieux diélectriques solides et leur interaction avec le champ électrique, en exposant les notions et les formules de base nécessaires à la compréhension de l'origine de la permittivité diélectrique. Nous avons pu montrer comment un point matériel donné peut être source de polarisation et comment les différentes formes de la matière que ce soit un électron, un ion, une molécule ou un grain contribuent dans la formation de la capacité d'un matériau à emmagasiner l'énergie électrique. Nous avons aussi traité le caractère fréquentielle de la permittivité complexe en exposant le modèle de Debye et la relation entre celle-ci et la fréquence d'excitation qui dépend aussi de la nature et l'état même du milieu matériel.

Étant donné que notre étude est basée sur des milieux matériels hétérogènes et aléatoires, nous avons présenté brièvement quelques lois de mélanges les plus utilisées pour la prédiction de la permittivité effective d'un milieu matériel. Dans le cas où cette permittivité est déjà connue, par exemple à partir d'une caractérisation expérimentale du mélange, ces lois permettent de déterminer les permittivités de ses différents constituants.

Nous avons présenté aussi les différentes méthodes expérimentales utilisées en réflectométrie temporelle pour la caractérisation électromagnétique des milieux diélectriques et l'instrumentation associée. La méthode de la charge adaptée reste la plus pratique notamment qu'elle permet la détermination directe de la nature du matériau à partir des courbes temporelles expérimentales, et permet aussi de calculer la conductivité électrique du matériau à partir de la valeur asymptotique du coefficient de réflexion. Les résultats obtenus pour l'ensemble des séries d'échantillons montrent que l'évolution de la permittivité diélectrique est affectée par la nature des phases du composite, que cette évolution manifeste dans certains cas un changement d'attitude autour de certaines fractions volumiques des charges, et que la configuration du banc de caractérisation ainsi que les conditions de mesures influent sur les résultats finaux.

Comme une continuité à ce travail, nous proposons de faire d'autres expériences en élaborant cette fois-ci des composites sous différentes températures (frittage) et sous différentes pressions, ce qui permet d'obtenir des matériaux ayant des permittivités plus élevés.

Un développement théorique peut être réalisé que ce soit en terme de simulation des phénomènes d'interactions ondes-matière ou en terme de modélisation des milieux hétérogènes pour mieux comprendre avec plus de précision les mécanismes ayant conduit à ces résultats.

REFERENCES
BIBLIOGRAPHIQUES

Bibliographie

1. **C. Kittel.** Physique de l'état solide. *Dunod, 7^o Edition.* 1998.
2. **A. Balana.** Etude du comportement électromagnétique des milieux hétérogènes en ondes centimétriques, modélisation. *Thèse de Doctorat, Université de Bordeaux I.* 1990.
3. **N. Bouzit.** Caractérisation Diélectrique de Matériaux Hétérogènes par Spectroscopie Temporelle: Application à l'Etude de Composites Polyesters Chargés par des Titanates. *Thèse de Doctorat.* UFAS : s.n., 2002.
4. **B. K. Diefenderfer.** Development and Testing of a Capacitor Probe to Detect Deterioration in Portland Cement Concrete. *Thesis of Master.* 1998.
5. **D. Hamzaoui.** Etude par spectroscopie en domaine fréquentielle de l'évolution de la permittivité complexe en fonction de la charge et la fréquence. Application au polyester chargé par les céramiques: BaTiO₃ et SrTiO₃. *Mémoire de magister, Sétif.* 1998.
6. **K. Fenske, D. Misra.** Dielectric Materials at Microwave Frequencies. *Applied Microwave & Wireless.* 2000. pp. 92-100.
7. **M. Sabi.** Etude de la permittivité et de la perméabilité des matériaux hétérogènes en espace libre aux hyperfréquences. *Mémoire de Magister, UFAS.* 1998.
8. **Appendix B & C.** Debye Equation & Review of Dielectric Mixture Rules.
9. **V. Pouilles.** Caractérisation diélectrique de matériaux composites isolants: contribution à la modélisation de leur vieillissement. *thèse de doctorat, université Paul SABATIER.* 1995.
10. **C.K., Wong, Y.W., Wong et F.G., Shin.** Effect of Interfacial Charge on Polarization Switching of Lead Zirconate Titanate Particles in Lead Zirconate Titanate/Polyurethane Composites. *Journal of Applied Physics.* October 2002. Vol. 92, 7.
11. **W. Ching-ping, R. Yang.** High dielectric constant of nano-structure polymer-ceramic composite. *Georgia Tech Research Corp.* 2003.
12. **Enis, Tuncer, Bo, Nettelblad et Stanistaw M., Gubański.** Non-Debye Dielectric Relaxation in Binary Dielectric Mixtures (50-50): Randomness and Regularity in Mixture Topology. *Journal of Applied Physics.* October 2002. Vol. 92, 8.
13. **Zhi, Yu et Chen, Ang.** Maxwell-Wagner Polarization in Ceramic Composites BaTiO₃-(Ni_{0.3}Zn_{0.7})Fe_{2.1}O₄. *Journal of Applied Physics.* January 2002. Vol. 91, 2.
14. **P. Debye.** Polar Molecules. *Chemical Catalog Co., New York.* 1929.
15. **K.S. Cole, R.H. Cole.** *J. Chem. Phys.* 9, 341. 1941.
16. **R.H. Cole, D.W. Davidson.** *I. Chem. Phys.* 20, 1389. 1952.
17. **T. Samiha, Bishay.** Numerical Methods for Calculation of Cole-Cole Parameters. *Egypt J. Sol., Vol. 23, N°2.* 2000.
18. **A. Martinez et A. P. Byrnes.** Modeling Dielectric Constant Values of Geologic Materials: An Aid to Ground-Penetrating Radar Data Collection and Interpretation. *Current Research in Earth Sciences, Bulletin 247, Part I.* 2001.
19. **J. J. Makosz, P. Urbanowicz.** Relaxation and resonance absorption in dielectrics. *Zeitschrift fur Naturforschung.* 57 a, 119-125. 2002.

20. **A. Benhamouda.** Caractérisation électromagnétique de composites par spectroscopie temporelle. *Mémoire de magistère UFAS*. 2004.
21. **D-H. Yoon, J. Zhang, B. I. Lee.** Dielectric constant and mixing model of BaTiO₃ composite thick films. *Materials Research Bulletin* 38, 765–772. 2003.
22. **A. Mejdoubi.** Étude par simulation numérique des propriétés diélectriques d'hétérostructures multiphasiques contenant des inclusions de forme arbitraire. *thèse de doctorat*. 2007.
23. **A. Mdarhri.** Propriétés électromagnétiques de matériaux hétérogènes: Approche expérimentale et modélisation. *thèse de doctorat*. 2007.
24. **L. Jylhä.** Modeling of electrical properties of composites. *Thesis for the degree of Doctor of Science in Technology*. 2008.
25. **D.A. Payne, L.E. Cross.** Microstructure—Properties for Dielectric Ceramics: I. Mixing of Isotropic Homogeneous Linear Dielectrics. *Ceramic Microstructure '76*, Westview Press, Boulder, CO, pp. 584–595. 1977.
26. **S. Liang, S. Chong, E. Giannelis.** Barium titanate/epoxy composite dielectric materials. *Proceedings of the 48th ECTC*, pp. 171–175. 1998.
27. **H. Savakus, K. Klicker, R. Newnham.** PZT-epoxy piezoelectric transducers: a simplified fabrication procedure. *Mater. Res. Bull.* 16, 677–680. 1981.
28. **V.F. Janas, A. Safari.** Overview of fine-scale piezoelectric ceramic/polymer composite processing. *J. Am. Ceram. Soc.* 1978.
29. **R.W. Schwartz, P.G. Glem, J.A. Voigt, E.R. Byhoff, M. Van Stry, T.J. Headly, N.A. Missert.** Control of microstructure and orientation in solution—deposited BaTiO₃ and SrTiO₃ thin films. , *J. Am. Ceram. Soc.* 82 (9) 2359–2367. 1999.
30. **J. Zhang, B.I. Lee.** Preparation, structure evolution and dielectric properties of BaTiO₃ thin films and powders by an aqueous sol–gel process. *Thin Solid Films* 388 , 107–113. 2001.
31. **J. Zhang.** Preparation and characterization of BaTiO₃ dielectric thin/thick films for MLCC applications. *Ph.D. dissertation, Clemson University*, . 2000.
32. **B.I. Lee, J. Zhang.** Dielectric thick films deposition by particle coating method. *Mater. Res. Bull.* 36 ,1065–1074. 2001.
33. **G. Heartling.** Dielectric and electrooptic properties of acetatic derived PLZT X/65/35 thin films. *Integr. Ferroelectr.* 3 (3), 207–215 . 1993.
34. **J. Zhang, B.I. Lee.** Electrophoretic deposition and characterization of micrometer-scale BaTiO₃ based X7R dielectric thick films. *J. Am. Ceram. Soc.* 83 (10) , 2417–2422. 2000.
35. **W.A. Yarbrough, T.R. Gururaja, L.E. Cross.** Materials for IC packaging with very low permittivity via colloidal sol–gel processing. *Am. Ceram. Soc. Bull.* 66 (4) , 692–698. 1987.
36. **L. Rayleigh.** On the influence of obstacles arranged in rectangular order upon properties of the medium. *Philosophical Magazine*, 34:481–502. 1892.
37. **C. Bottcher.** *Rec. Trans. Chim.*, 47, 64. 1945.
38. **O. Wiener.** *Berichteüber Verhandlungen Königlich-Sächsischen Gesellschaft Wissenschaften Leipzig*, pp. 256–277. 1910.
39. **K. Lichtenecker, K. Rother.** *Physik. Zeitschr.*, 32,255. 1931.

40. **M. Robinovitch.** Contribution à l'étude de la permittivité des poudres diélectriques et des mélanges de poudres à 10 GHz. *Thèse de doctorat, Bordeaux.* 1964.
41. **J. R. Birchak, L. G. Gardner, J.W. Hipp, and J. M. Victor.** High dielectric constant microwave probes for sensing soil moisture. *Proc. IEEE, vol. 62, pp. 93–98.* 1974.
42. **D. A. G. Bruggeman.** *Ann. Phys., pp. 636–664.* 1935.
43. **T. Hanai.** *Bull. Inst. Chem. Res. Tokyo, 39, 341.* 1961.
44. **J.C. Maxwell-Garnett.** *Philos. Trans. R. Soc. London Ser. A, 203, 385.* 1904.
45. **J-M, Berthlot.** Matériaux Composites: Comportement Mécanique & Analyse des Structures. *TEC&DOC 3ème Edition.* 1999.
46. **Tarik, Zakri.** Contribution A L'etude Des Proprietes Dielectriques De Materiaux Poreux En Vue De L'estimation De Leur Teneur En Eau : Modeles De Melange Et Resultats Experimentaux. *These De Doctorat, Institut National Polytechnique De Grenoble.* France : s.n., 1997.
47. **A. Priou.** Matériaux en électromagnétisme: Caractérisation des matériaux composites. *Techniques de l'Ingénieur AF3373.* 1999.
48. **G., Vicq et J.M., Fornies-Marquina.** Comportement Dielectriques Micro-Ondes De Melanges De Deux Liquides Polaires: Eau & Ethylene – Glycol Entre 0° Et 60°C. 2002.
49. Time Domain Reflectometry Theory. *Agilent Application Note 1304-2.* 2002.
50. **F. Sischka.** Characterization Handbook. TDR. 2002.
51. **J. R. Andrews.** TDR, Step Response & 'S' Parameters Measurements in the Time Domain. *Picosecond Pulse Labs AN-3044, Revision 1, 5/89.* 1989.
52. **J. Aubic, A. M. Bottreau.** Utilisation de la TDR pour l'Etude des Transferts d'Humidité en Milieux Poreux Perméable. *Journal of Hydrology, 57.* 1982. pp. 337-357.
53. **M. Abdelguerfi, A. Soualmia.** Utilisation de techniques fréquentielles et temporelles pour analyse diélectrique. *B4-5, 17ème Colloque International Optique Hertzienne & Dielectrique, Calais.* 2003.
54. **N.E. Hager.** Broadband Time-Domain-Reflectometry Dielectric Spectroscopy Using Variable-Time-Scale Sampling. *Dielectric Spectroscopy, Rev. Sci. Instrum. Vol. 65, N° 4.* April 1994.
55. **S. Ahire, A. Chaudhari, M. Lokhande, S. C. Mehrotra.** Complex Permittivity Spectra of Binary Pyridine-Amide Mixtures Using Time Domain Reflectometry. *Journal of Solution Chemistry, Vol. 27, N° 11.* 1998.
56. **Orlowska, S.** Conception et prédiction des caractéristiques diélectriques des matériaux composites a deux et trois phases par la modélisation et la validation expérimentale. *Thèse de Doctorat, Lyon.* 2003.
57. **Adous, M.** Caractérisation Electromagnétique Des Matériaux Traités De Génie Civil Dans La Bande De Fréquences 50 MHz – 13 GHz. *thèse de doctorat (Nantes).* 2006.
58. **P. Todoroff.** Modélisation de la Propagation de Microondes dans le Sol afin d'obtenir un Profil Hydrique par Réflectométrie Temporelle. *Thèse de Doctorat.* 1998.
59. **S. R. Evett.** Soil Water Measurement by Time Domain Reflectometry. *Encyclopedia of Water Science, Marcel Dekker, Inc. New York.* 2003. pp. 894-898.

60. **G. Moradi, A. Abdipour.** Measuring the Permittivity of Dielectric Materials Using Str Approach. *Progress In Electromagnetics Research, PIER 77*,. 2007. pp. 357–365.
61. **V. Dobrinu, S. B. Balmus, G. N. Pascariu, D. D. Sandu.** Characterization of dielectric mixtures by the time domain reflectometry (TDR). *Journal of optoelectronics and advanced materials, Vol. 8, No. 3, p. 956 - 961.* 2006.
62. **A. Abu Obaid, S. Yarlagadda, M. K. Yoon, N. E. Hager et R. C. Domszy.** A TDR method for automated measurement of crack propagation in composites during mode I DCB testing. *Journal of composite materials, Vol. 40, N° 22.* 2006.
63. **E. Mattei, A. De Santis, A. Di Matteo, E. Pettinelli, G. Vannaron.** Electromagnetic parameters of dielectric and magnetic mixtures evaluated by TDR. *IEEE Geoscience and remote sensing letters, Vol. 5, N° 4.* 2008.
64. **S. Ramo, J. R. Whinnery, T. Van Duzer.** Fields & Waves In Communication Electronics. *Second Edition John Wiley & Sons.* 1984.
65. **D. B. Leeson.** Waves & Impedances On Transmission Lines. *Tl Waves & Impedances, IEEE 194.* 1994.
66. **J. P. Faroux, J. Renault.** Electromagnétisme 2: équations de maxwell et phénomènes d'induction. *Edition DUNOD.* 1998.
67. **M. Garcia Gracia.** Caracterizacion Electromagnetica De Dielectricos En El Domino Del Tiempo. *Memoria de Doctor en Ciencias, ZARAGOZA.* 1995.
68. **A. Badev.** Matériaux diélectriques à faibles pertes utilisés comme résonateurs et filtres dans les circuits micro-ondes. *thèse de doctorat.* 2008.
69. **A. Benhamouda, J.M. Fornies-Marquina, N. Bouzit, N. Bourouba.** Dielectric behavior of ternary composites of epoxy/BaTiO₃/(CuO or MgO). *Eur. Phys. J. Appl. Phys. 46, 20404.* 2009.
70. **A. Benhamouda, N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, N. Bourouba, E. Bakhti.** Analyse expérimentale basse fréquence de la variation de la constante diélectrique d'un composite bititanates en fonctions des concentrations. . *Proceeding JIPMA '07 – Annaba.* 1978.
71. **A. Benhamouda, N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, N. Bourouba, E. Bakhti.** Mesures de la permittivité diélectrique d'un mélange de (CuO – BaTiO₃ – Résine Epoxyde) dans la bande de fréquence de 0 à 5 GHz. *Proceeding JIPMA '07 – Annaba.* 2007.
72. **N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, A. Benhamouda, N. Bourouba.** Modelling and dielectric behavior of ternary composites of epoxy (BaTiO₃/CaTiO₃). *Eur. Phys. J. Appl. Phys. 38, 147-152.* 2007.
73. **S. W. Smith.** The Scientist & Engineer's Guide to Digital Signal Processing. 2001.
74. **B. Parruck, S. M. Riad.** TDR, Step response and 'S' parameters measurements in the time domain. *Picosecond pulse labs AN-3044, Revision 1, 5/89.* 1989.
75. **H. A. Samulon.** *Proc. IRE, 39, 175.* 1951.
76. **A. M. Shaarawi, S. M. Riad.** Computing the complete fast fourier transform of a step-like waveform. *IEEE Transactions on instrumentation & measurement, Vol. IM-35, N° 1.* March 1986.
77. **A. Bennis, S. M. Riad.** An optimization technique for iterative frequency domain deconvolution. *IEEE transactions on instrumentation and measurement, Vol. 39, N° 2.* 1990.
78. **W. L. Gans.** *école d'été du Trégor, Lanion.* 1978.

79. **A. M. Nicolson.** *Electorn. Lett.*, 9, 317. 1973.
80. **P. Gasner.** Measurement of Complex Permittivity by Time Domain Reflectometry Comparison with Frequency Domain Reflectometry. 1995.
81. **N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, A. Benhamouda, N. Bourouba.** Comportement diélectrique d'un mélange Epoxyde - BaTiO₃ – CaTiO₃, . *Proceeding ICMM'06, Sétif.* 2006.

***TABLE DES
ILLUSTRATIONS***

Table des illustrations

Figure 1-1: Déplacement des barycentres des charges positives et négatives en présence d'un champ électrique externe.	4
Figure 1-2: Dipôle électrique.	5
Figure 1-3: Induction d'un dipôle sur un point matériel M	6
Figure 1-4: Représentation d'un point matériel M entouré par 3 dipôles ponctuels.	6
Figure 1-5: Application d'un champ externe sur un point matériel M entouré de 3 dipôles.	7
Figure 1-6: Représentation des distances inter-particules dans le cas de trois milieux matériels à différentes densités.	7
Figure 1-7: Mécanisme de la polarisation électronique.	8
Figure 1-8 : Mécanisme de la polarisation ionique	9
Figure 1-9: Mécanisme de la polarisation dipolaire.	10
Figure 1-10: Mécanisme de la polarisation interfaciale.	10
Figure 1-11: Contribution des différents mécanismes de la polarisation dans la valeur de la permittivité complexe en fonction de la fréquence d'excitation.	11
Figure 1-12: Schématisation des cas extrêmes du modèle de Wiener pour un composite ternaire.	18
Figure 2-1: Modèle d'une ligne de transmission.	23
Figure 2-2: Tronçon de longueur ' dx ' d'une ligne de transmission.	23
Figure 2-3: L'instrumentation utilisée en Spectroscopie Temporelle.	30
Figure 2-4: Dispositif expérimental pour la première réflexion.	31
Figure 2-5: Les réflexions dans le cas d'un long échantillon.	32
Figure 2-6: Réflexions multiples dans un échantillon.	34
Figure 2-7: Dispositif expérimental en ligne court-circuitée.	36
Figure 2-8: Les impédances dans la ligne de mesure court-circuitée.	36
Figure 2-9: Dispositif expérimental en ligne ouverte.	39
Figure 2-10: les impédances dans la ligne de mesure ouverte.	39
Figure 2-11: Dispositif expérimental en ligne adaptée.	42
Figure 3-1: Structure pérovskite.	50
Figure 3-2: Structure cristalline du $MgTiO_3$	50
Figure 3-3: L'ilménite	50
Figure 3-4: La ténorite.	51
Figure 3-5: L'oxyde de Magnésium	51
Figure 3-6: La balance électronique utilisée dans la pesée des différentes poudres.	52
Figure 3-7: Représentation des inclusions (charges) dans la matrice hôte (résine).	53
Figure 3-8: La forme du guide et de l'échantillon.	54
Figure 3-9: Instruments utilisés pour l'ajustement de la forme des échantillons.	55

Figure 3-10: Le banc de réflectométrie utilisé.....	55
Figure 3-11: Photo de la cellule de mesure APC-7.	56
Figure 3-12: Composition de la cellule de mesure APC-7.....	56
Figure 3-13: Les charges terminales : 50 Ω , court-circuit et 75 Ω	56
Figure 3-14: Exemple de réponse TDR d'un Court-Circuit.....	57
Figure 3-15: Système de réflectométrie temporelle en ligne adaptée.	57
Figure 3-16: le court-circuit placé dans l'extrémité de la cellule de mesure.....	58
Figure 3-17: l'échantillon placé dans l'extrémité de la cellule de mesure.	58
Figure 3-18: Réponse TDR de la résine époxyde pure (100%).....	65
Figure 3-19: Réponse TDR du composite (RE, TBa, CuO) à (70%, 7,5%, 22,5%).	65
Figure 3-20: Réponse TDR du composite (RE, TBa, CuO) à (70%, 15%, 15%).	66
Figure 3-21: Réponse TDR du composite (RE, TBa, CuO) à (70%, 22,5%, 7,5%).	66
Figure 3-22: Réponse TDR du composite (RE, TBa, CuO) à (70%, 0%, 30%).	67
Figure 4-1: Résumé des composites réalisés.	69
Figure 4-2: Constante diélectrique ϵ_s et conductivité $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la concentration du TCA pour le mélange binaire Résine Epoxyde - TCA.	70
Figure 4-3: Constante diélectrique ϵ_s et conductivité $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ pour le mélange binaire RE/TBA.	71
Figure 4-4: Variation de ϵ_s en fonction du pourcentage du TBA (courbes RE=cte, TCA=cte).	72
Figure 4-5: Variation de $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ pour les mélanges ternaires en fonction du pourcentage du TBA (RE=cte).	73
Figure 4-6: Variation de $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ pour les mélanges ternaires en fonction du pourcentage du TBA (TCA=cte).	73
Figure 4-7: Evolution de ϵ_s pour le mélange binaire RE/TBa (comparaison avec le modèle).	74
Figure 4-8: Evolution de ϵ_s pour le mélange binaire RE/TCA (comparaison avec le modèle).	75
Figure 4-9: Variation des facteurs de forme A_L , B_L et C_L en fonction de la concentration de résine.....	75
Figure 4-10: Evolution de ϵ_s pour les mélanges binaires RE/TBa – RE/TCA.	76
Figure 4-11: Evolution de ϵ_s en fonction du taux de la Résine pour les mélanges ternaires...76	76
Figure 4-12: Famille de courbes ϵ_s en fonction du TBA dans les mélanges ternaires (o Lichtecker; • Experimental).	77
Figure 4-13: variation de ϵ_s en fonction de la fraction volumique du CuO pour le mélange RE.BT.CuO (RE = const., BT = const.).	78
Figure 4-14: Variation de ϵ_s en fonction de la fraction volumique du BT pour le mélange RE.BT.CuO (CuO = const.).....	79

Figure 4-15: Variation de $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la fraction volumique du BT pour le mélange RE.BT.CuO (CuO = const.).....	80
Figure 4-16: Variation de $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la fraction volumique du CuO pour le mélange RE.BT.CuO (BT = const.).....	80
Figure 4-17: Variation de ε_s en fonction de la fraction volumique du MgO pour le mélange RE.BT.MgO (RE = const., BT = const).	82
Figure 4-18: Variation de ε_s en fonction de la fraction volumique du BT pour le mélange RE.BT.MgO (RE = const., Mg = const.).....	82
Figure 4-19: Variation de $\sigma_s \times 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la fraction volumique du MgO pour le mélange RE.BT.MgO (BT = const.).....	83
Figure 4-20: Evolution de ε_s en fonction de la fraction volumique du CuO pour les trois mélanges RE.BT.CuO, RE.CT.CuO et RE.MT.CuO (RE = 70%).....	84
Figure 4-21: Evolution de $\sigma_s \cdot 10^{-3} (\Omega.m)^{-1}$ en fonction de la fraction volumique du CuO pour les trois mélanges RE.BT.CuO, RE.CT.CuO et RE.MT.CuO (RE = 70%).....	85
Figure 4-22: Comparaisons entre ε_{s_exp} et $\varepsilon_{s_Lichtenecker}$ en fonction de la fraction volumique du CuO pour les trois mélanges RE.BT.CuO, RE.CT.CuO et RE.MT.CuO (RE = 70%).	86
Figure 4-23: Evolution des facteurs BL, CL et ML en fonction de la fraction volumique du CuO pour les trois mélanges RE.BT.CuO, RE.CT.CuO et RE.MT.CuO (RE = 70%).	86
Figure 4-24: Comportement diélectrique de l'Époxyde-BaTiO ₃ -CuO (70-7.5-22.5) selon différentes fenêtres d'observation.	88
Figure 4-25: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	89
TBa-CuO-Epoxyde à (30 / 00 / 70) %	89
Figure 4-26: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	89
TBa-CuO-Epoxyde à (25 / 05 / 70) %	89
Figure 4-27: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	90
TBa-CuO-Epoxyde à (20 / 10 / 70) %	90
Figure 4-28: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	90
TBa-CuO-Epoxyde à (15 / 15 / 70) %	90
Figure 4-29: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	91
TBa-CuO-Epoxyde à (10 / 20 / 70) %	91
Figure 4-30: composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	91
TBa-CuO-Epoxyde à (05 / 25 / 70) %	91
Figure 4-31 : Permittivité complexe de la résine époxyde en fonction de la fréquence.....	92
Figure 4-32: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	93
TBa-MgO-Epoxyde à (40 / 10 / 50) %	93
Figure 4-33: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	93
TBa-MgO-Epoxyde à (30 / 20 / 50) %	93
Figure 4-34: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite ..	94

TBa-MgO-Epoxyde à (20 / 30 / 50) %	94
Figure 4-35: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	94
TBa-MgO-Epoxyde à (10 / 40 / 50) %	94
Figure 4-36: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	95
TBa-MgO-Epoxyde à (00 / 50 / 50) %	95
Figure 4-37: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	96
TBa-CuO-Epoxyde à (07.5 / 22.5 / 70) %	96
Figure 4-38: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	96
TBa-CuO-Epoxyde à (15 / 15 / 70) %	96
Figure 4-39: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	97
TBa-CuO-Epoxyde à (22.5 / 07.5 / 70) %	97
Figure 4-40: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	97
TBa-CuO-Epoxyde à (30 / 00 / 70) %	97
Figure 4-41: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	98
TCa-CuO-Epoxyde à (07.5 / 22.5 / 70) %	98
Figure 4-42: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	98
TCa-CuO-Epoxyde à (15 / 15 / 70) %	98
Figure 4-43: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite .	99
TMg-CuO-Epoxyde à (07.5 / 22.5 / 70) %	99
Figure 4-44: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite	100
TMg-CuO-Epoxyde à (15/ 15 / 70) %	100
Figure 4-45: Composantes réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du composite	100
TMg-CuO-Epoxyde à (22.5/ 07.5 / 70) %	100

ANNEXES

Annexe 1

Ceci est le Programme de calcul de la permittivité complexe que j'ai développé sous Mathematica.

```
(* PROGRAMME DE CALCUL DE LA PERMITTIVITE *)
```

```
(* Mesures TDR en Ligne Adaptée *)
```

```
ClearAll["Global*"];
```

```
(* Chargement des PAKCAGES *)
```

```
<<Miscellaneous`PhysicalConstants`
```

```
eps0=VacuumPermittivity
```

```
(* SAISIE DU NOM DE FICHER *)
```

```
nf=InputString["Saisir le nom du fichier"];
```

```
fmue=nf<>".mue";
```

```
fcor=nf<>".cor";
```

```
chemin="d:/text/";
```

```
fmue=chemin<>fmue;
```

```
fcor=chemin<>fcor;
```

```
(* LECTURE DES FICHIERS TDR *)
```

```
OpenRead[fmue];
```

```
param=Read[fmue,Table[Real,{11}]];nbr=param[[3]]
```

```
temp=ReadList[fmue,{Table[Real,{11}],Byte,Byte,Table[{Number,Byte,Byte},{nbr}]]};
```

```
mue=Table[temp[[1]][[4]][[k]][[1]],{k,1,nbr}];
```

```
Close[fmue];
```

```
OpenRead[fcor];
```

```

temp=ReadList[fcor,{Table[Real,{11}],Byte,Byte,Table[{Number,Byte,Byte},{nbr}]}
];
cor=Table[temp[[1]][[4]][[k]][[1]},{k,1,nbr}];
Close[fcor];

(* ----- TRAITEMENT -----*)

d=2.7;(*EPAISSEUR DE L'ECHANTILLON EN mm*)
deltat=param[[5]]*10^12; (*TIME DIVISION EN ps*)
deltat=deltat/1000;(*en ns*)
ne=nbr;(*nombre d'échantillons dans le fichiers*)

deltaf=1000/(ne*deltat);(*en MHz*)
lim=Round[10000/deltaf];
gama=I 2*Pi/(3*10^5);
decalj=0;

(*****1-Données brutes*****)
cc=cor;
ec=mue;
ListPlot[Table[{i,ec[[i]]},{i,1,ne}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle-
>{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"          TDR
échantillon","ech(t)"},PlotLabel->"EpTBFe70/00/30"];

ListPlot[Table[{i,cc[[i]]},{i,1,ne}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle-
>{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"          TDR          Court-
Circuit","cc(t)"},PlotLabel->"EpTBFe70/00/30"];

pcu=Input["Entrez le PCU:"];
dcu=Input["Entrez le DCU:"];

ca=1;
ecr=ec-ca;

```

```
ccr=cc-ca;
```

```
ListPlot[Table[{i,ecr[[i]]},{i,1,ne}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon", "ech_r(t)"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30"];
```

```
ListPlot[Table[{i,ccr[[i]]},{i,1,ne}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon", "cc_r(t)"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30"];
```

(*3-Signal dérivé*)

```
ne=ne-1;
```

```
dec=Table[ecr[[i+1]]-ecr[[i]},{i,1,ne}];
```

```
dcc=Table[ccr[[i+1]]-ccr[[i]},{i,1,ne}];
```

```
ListPlot[Table[{i,dec[[i]]},{i,1,ne}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon", "ech_r'(t)"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30"];
```

```
ListPlot[Table[{i,dcc[[i]]},{i,1,ne}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon", "cc_r'(t)"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30"];
```

(*4-Signal optimisé par l'application d'une fenêtre temporelle*)

```
zer=Table[0,{i,1,ne+pcu-dcu}];
```

```
ecl=Table[dec[[i]},{i,pcu,dcu}];
```

```
ccl=Table[dcc[[i]},{i,pcu,dcu}];
```

```
ecz=Join[ecl,zer];
```

```
ccz=Join[ccl,zer];
```

```
ListPlot[Table[{i,ecz[[i]]},{i,1,ne}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon", "ech_r'(t) tronqué"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30"];
```

```
ListPlot[Table[{i,ccz[[i]]},{i,1,ne}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon","cc_r'(t) tronqué"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30";
```

(*5-TFD*)

```
nec=N[InverseFourier[ecz],15];
```

```
dec=N[InverseFourier[ccz],15];
```

```
ListPlot[Table[{i,Abs[nec[[i]]}],{i,1,ne/2}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon","ech_r(w)"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30";
```

```
ListPlot[Table[{i,Abs[dec[[i]]}],{i,1,ne/2}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon","cc_r(w)"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30";
```

(*6-Le coefficient de réflexion*)

```
limi=ne/2;
```

```
(*limi=limi+1;*)
```

```
For[i=1,i<limi+1,i++,freq[i]=(i-1)*deltaf/1000;
```

```
rec[i]=-nec[[i]]/dec[[i]];gec[i]=rec[i];
```

```
rec1=gec[1];
```

```
For[i=1,i<limi+1,i++,rec[i]=N[gec[i]-rec1,10]];
```

```
ListPlot[Table[{i,Re[rec[i]]},{i,1,limi}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon","Re[R(w)"}],PlotLabel->"EpTbFe70/00/30";
```

```
ListPlot[Table[{i,Im[rec[i]]},{i,1,limi}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon","Im[R(w)"}],PlotLabel->"EpTbFe70/00/30";
```

(*7-L'admittance*)

```
For[i=1,i<limi+1,i++,yec[i]=N[(1-rec[i])/(1+rec[i]),10]];
```

```
ListPlot[Table[{i,Re[yec[i]]},{i,1,limi}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon", "Re[Y(w)]"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30"];
```

```
ListPlot[Table[{i,Im[yec[i]]},{i,1,limi}],PlotRange->All,PlotJoined->True,PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{"N\[Degree] échantillon", "Im[Y(w)]"},PlotLabel->"EpTbFe70/00/30"];
```

(*8-Calcul de la permittivité complexe*)

```
limi=lim+1;
```

```
soln[1]=N[Sqrt[(yec[2]-1)/(gama*d*deltaf)+yec[2]]];eps[1]=soln[1]^2;
```

```
For[i=2,i<limi+1,i++,y[n_]:=n*(1+n*Tanh[gama*d*n*freq[i]*1000])/(n+Tanh[gama*d*n*freq[i]*1000])-yec[i];
```

```
soln[i]=np/.FindRoot[y[np]==0,{np,soln[i-1]}];eps[i]=soln[i]^2;
```

(*COURBES*)

```
ReEpsilon=ListPlot[Table[{freq[i],Re[eps[i]]},{i,1,limi}],PlotRange->{{freq[1],freq[limi]},{0,6}},PlotJoined->True,AxesOrigin->{freq[1],0},PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{f[GHz],Epsilon'},PlotLabel->"EpTbCuO 70/00/30"];
```

```
ImEpsilon=ListPlot[Table[{freq[i],Abs[Im[eps[i]]]},{i,1,limi}],PlotRange->{{freq[1],freq[limi]},{0,1}},PlotJoined->True,AxesOrigin->{freq[1],0},PlotStyle->{Thickness[0.005],RGBColor[0,0,0]},AxesLabel->{f[GHz],Epsilon"},PlotLabel->"EpTbCuO 70/00/30"];
```

```
Show[ReEpsilon,ImEpsilon,AxesLabel->{f[GHz],Permittivité},PlotLabel->"EpTbCuO 70/00/30"];
```

Annexe 2 caractéristiques des éléments utilisés pour la préparation des matériaux composites.

Matériau	Fabricant	Forme	Couleur	Densité [g/cm ³]	Pureté	Dimension	F.W.	Structure Cristalline
BaTiO ₃	SIGMA-ALDRICH	Poudre	Blanche	6,080	99%	<3μm	233,24	Pérovskite
CaTiO ₃	SIGMA-ALDRICH	-325 Mesh	Jaune	4,10	99+%	<3μm	135,98	Pérovskite
MgTiO ₃	SIGMA-ALDRICH	Poudre	Blanche	6,10	99+%	<3μm	135,98	Ilménite
CuO	SIGMA-ALDRICH	Poudre	Noir	6,10				
MgO	SIGMA-ALDRICH	Poudre	Blanche	3,6				
Résine Epoxyde (Scapa 43 002)	Scapa Polymerics	Liquide visqueux (Résine + Durcisseur)	Vert-Noir	1.07 (25°C)				

***TRAVAUX
SCIENTIFIQUES***

Travaux scientifiques réalisés

Je cite ici la liste des publications internationales et des communications internationales et nationales auxquelles nous avons participé.

Publications internationales :

1. A. Benhamouda, J.M. Fornies-Marquina, N. Bouzit, N. Bourouba, Dielectric behavior of ternary composites of epoxy/BaTiO₃/(CuO or MgO), Eur. Phys. J. Appl. Phys. 46, 20404 (2009).
2. N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, A. Benhamouda, N. Bourouba, Modelling and dielectric behavior of ternary composites of epoxy (BaTiO₃/CaTiO₃), Eur. Phys. J. Appl. Phys. 38, 147-152 (2007).

Communication internationale:

1. N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, A. Benhamouda, N. Bourouba, Journées Scientifiques Rennes - Sétif - Strasbourg 2007. (Rennes)
2. A. Benhamouda, N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, N. Bourouba, Journées Scientifiques Rennes - Sétif - Strasbourg 2009. (Sétif)

Communications nationales:

1. A. Benhamouda, N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, N. Bourouba, E. Bakhti, Mesures de la permittivité diélectrique d'un mélange de (CuO – BaTiO₃ – Résine Epoxyde) dans la bande de fréquence de 0 à 5 GHz. JIPMA'07 – Annaba 2007.
2. E. Bakhti, N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, N. Bourouba, A. Benhamouda, Analyse expérimentale basse fréquence de la variation de la constante diélectrique d'un composite bi-titanates en fonctions des concentrations. JIPMA'07 – Annaba 2007.
3. A. Benhamouda, N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, E. Bakhti, N. Bourouba, Analyse spectrale du comportement diélectrique d'un mélange Epoxyde - BaTiO₃ – CaTiO₃. IMESE'06. Djelfa 2006
4. N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, A. Benhamouda, N. Bourouba, Comportement diélectrique d'un mélange Epoxyde - BaTiO₃ – CaTiO₃, ICMM'06, Sétif 2006.
5. A. Benhamouda, N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, Application de la spectroscopie temporelle pour l'étude de la permittivité diélectrique d'un composite bi-titanates. CGE'04, Bordj El Bahri, Alger 2005.
6. A. Benhamouda, N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, Détermination à 9,455 GHz de la permittivité diélectrique d'un mélange de deux types de titanate liés par un polymère en fonction de leurs fractions volumiques. JCH'01, Bordj El Bahri, Alger 2005.

ملخص

إن الهدف من هذا العمل هو القيام بدراسة تجريبية على مواد مركبة ثلاثية تتكون من مزيج من تيتانات، أكسيد و ريسين قصد تطبيقات الميكرو موجات. قمنا بتحضير العينات المختلفة وذلك بمزج تيتانات وأكاسيد مختلفة داخل ريسين ايبوكسي وفق مقادير حجميه محددة. أردنا بهذا دراسة أثر نوع الحمولة و كذا تركيزها على سلوك العزل الكهربائي لمركباتنا ثلاثية المواد، وهذا في مجال ترددات من الساكن حتى 5 جيجا هرتز. النتائج المتحصل عليها في مجموع العينات تظهر بأن تطور السماحية يتأثر بطبيعة مكونات المركب (تيتانات أو أكسيد) و أن هذا تطور يأخذ منحى آخر من اجل مقادير حجميه معينة (ظاهرة الترابط).

المفاتيح: العازل الكهربائي ، مواد مركبة، السماحية، القياس بالانعكاس الزمني، الطيفية الزمنية.

Résumé

L'objectif de ce travail consiste à faire l'étude expérimentale des matériaux composites ternaires à base de titanates et d'oxydes et de résine pour des applications micro-ondes. Nous avons ainsi élaboré les différents échantillons nécessaires en utilisant une résine Epoxyde comme matrice hôte dans laquelle on a ajouté différents types de charges : les Titanates de Baryum ($BaTiO_3$), les Titanates de Calcium ($CaTiO_3$), les Titanates de Magnésium ($MgTiO_3$), l'oxyde de cuivre (CuO) et l'oxyde de Magnésium (MgO).

Nous avons cherché à étudier l'effet de la nature des charges (titanates ou oxydes) ainsi que de leur concentrations sur le comportement diélectrique de nos composites ternaires, ceci sur une large bande de fréquence qui s'étale du statique jusqu'à 5 GHz.

Les résultats obtenus pour l'ensemble des séries d'échantillons montrent que l'évolution de la permittivité diélectrique est affectée par la nature des phases du composite et que cette évolution manifeste dans certains cas un changement d'attitude autour de certaines fractions volumiques des charges (phénomène de percolation).

Mots clés : diélectrique, matériaux composites, permittivité, réflectométrie temporelle, spectroscopie temporelle.

Abstract

The goal of this work consists in doing an experimental study of a ternary composite material composed of titanate, oxides and resin for microwaves applications. So we have elaborated the different necessary samples using a Epoxy resin like matrix host in which we added different types of loads: the Titanate of Barium ($BaTiO_3$), the Titanate of Calcium ($CaTiO_3$), the Titanate of Magnesium ($MgTiO_3$), the oxide of copper (CuO) and the oxide of Magnesium (MgO).

We tried to study the effect of the load nature (titanate or oxides) as well as of their concentrations on behavior dielectric of our composite ternary, this on a large range of frequency that spreads the static until 5 GHz.

Results gotten for the whole of sets of samples show that the evolution of dielectric permittivity is affected by the nature of phases of the composite, that this evolution shows in certain cases a change of attitude around certain volumes' fractions of loads (phenomenon of percolation), and that the configuration of the characterization bench as well as conditions of measures influence on final results.

Keywords: dielectric, composite materials, permittivity, temporal reflectometry, temporal spectroscopy.