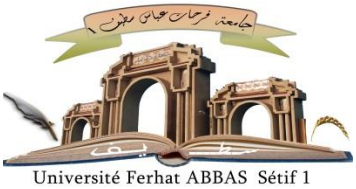
الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de L'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique



UNIVERSITÉ FERHAT ABBAS - SETIF1

FACULTÉ DE TECHNOLOGIE

THESE

Présentée au Département d'Electronique

Pour l'obtention du diplôme de

DOCTORAT EN SCIENCES

Option: Electronique

Par

M^r^. BOUCHAOUR Mounir

THÈME

Caractérisation électromagnétique de composites de matériaux ferroélectriques et de deux oxydes en hyperfréquences

Soutenue le 24/09/2020 devant le Jury:

M. AMARDJIA Nourredine	**Professeur**	**Univ. Ferhat Abbas Sétif 1**	**Président**
M. BOUZIT Nacerdine	**Professeur**	**Univ. Ferhat Abbas Sétif 1**	**Directeur de thèse**
M. JUAN PABLO Martínez Jiménez	**Professeur**	**Univ. Zaragoza Espagne**	**Co-Directeur**
M. HOCINI Abdessalem	**Professeur**	**Univ. M'Sila**	**Examinateur**
M. KHEDROUCHE Djamel	**Professeur**	**Univ. M'Sila**	**Examinateur**
M. ZEBIRI Chemseddine	**M.C.A**	**Univ. Ferhat Abbas Sétif 1**	**Examinateur**
M. BOUROUBA Nacerdine	**Professeur**	**Univ. Ferhat Abbas Sétif 1**	**Invité**
M. JUAN CARLOS Martín	**Professeur**	**Univ. Zaragoza Espagne**	**Invité**

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma gratitude envers **Mr. BOUZIT Nacerdine,** Professeur à l'université Ferhat Abbas - Setif1, pour ses soutiens, ses aides et ses efforts consentis à diriger cette thèse. Qu'il trouve ici l'expression de toute ma reconnaissance.

Je tiens également à remercier chaleureusement mon co-encadreur **Mr. Juan Pablo MARTINEZ JIMENEZ**, Professeur à l'université de Saragosse en Espagne, pour son hospitalité lors de mes séjours, pour sa générosité et sa précieuse aide et conseils, ainsi que sa confiance totale qu'il avait placée en ma personne en m'ouvrant les portes de son laboratoire à plein temps et sans aucune restriction pendant les jours de mes deux stages. Ces derniers m'ont été d'un grand apport dans mon sujet de thèse. Ils m'ont permis, pour la première fois, de voir de près le banc de caractérisation par réflectométrie temporelle et de faire toutes les caractérisations et mesures nécessaires sur plusieurs séries d'échantillons. Qu'il trouve ici l'expression de mon grand respect et toute ma reconnaissance.

Je tiens ensuite à remercier **Mr. AMARDJIA Nourredine**, Professeur à l'université Ferhat Abbas - Setif1, pour l'honneur qu'il me fait en acceptant la présidence du jury de cette thèse.

Mes remerciements s'adressent également au **Dr. ZBIRI Chemseddine**, Maître de Conférences (A) à l'université Ferhat Abbas - Setif1 et aux **Pr. KHEDROUCHE Djamel**, et **Pr. Hocini Abdessalem**, Professeurs à l'Université de M'Sila, qui ont bien voulu me faire l'honneur d'examiner ce travail et d'être membres du jury.

Je tiens à remercier en particulier **Mr. BOUROUBA Nacerdine**, Professeur à l'université Ferhat Abbas - Setif1, pour ses conseils avisés concernant les différentes techniques de synthèse et de caractérisation des matériaux, et son encouragement tout au long de ce travail. Qu'il trouve ici l'expression de ma grande reconnaissance pour l'aide qu'il m'a accordée pour l'accomplissement de mon travail.

Je tiens également à remercier **Mr Pr Juan Carlos MARTIN** Professeur à l'université de Saragosse en Espagne, pour sa disponibilité durant nos séjours, ses conseils, sa patience et son assistance et pour avoir accepté l'invitation à cette soutenance.

Je rends également hommage au regretté **Mr. José-Maria FORNIES-MARQUINA** Professeur à l'université de Saragosse en Espagne,qui, par ses connaissances, sa compétence et sa sagesse, a contribué de façon remarquable aux travaux scientifiques précédents, menés en collaboration avec notre laboratoire LIS et constituant une base solide pour élargir davantage l'axe de recherche des deux laboratoires à savoir: LIS de l'université de Sétif1 et celui de l'électromagnétisme appartenant à l'université de Saragosse (Espagne).

Merci à tous les collègues que j'ai côtoyés tout au long de ce travail.

Table des matières

Chapitre	Titres	Page
	Introduction générale	**VI**
Chaiptre1	**La théorie des diélectriques et les lois de mélanges**	**1**
	1.1 Introduction	2
	1.2 Polarisations et propriétés diélectriques	2
	a) Dipôles et moment dipolaire	2
	b) Mécanismes de polarisation	2
	1.3 Propriétés diélectriques dépendantes de la fréquence	4
	1.4 Modèles de relaxation diélectrique pour les matériaux polymères	6
	1.5 Milieu diélectrique dans un condensateur	7
	1.6 Quelques effets de polarisation	8
	1.6.1 Ferroélectricité	8
	1.6.2 Non-linéarité	8
	1.6.3 Piézo-électricité	9
	1.6.4 Pyroélectricité	9
	1.6.5 Non-localité	9
	1.7 Les lois de mélange	10
	1.7.1 Contexte historique	10
	1.7.2 Quelques modèles théoriques relatifs aux lois de mélange	13
	1.7.2.1 Le premier groupe des lois de mélange	13
	1.7.2.2 Le deuxième groupe des lois de mélange	14
	1.7.2.3 Le troisième groupe des lois de mélange	16
	1.7.3 Le concept du milieu effectif	17

1.7.4 Approche quasi-statique et principes d'homogénéisation 17

1.7.5 Mélanges de base et formule Maxwell Garnett 18

1.7.5.2 Formule de Clausius – Mossotti 19

1.7.5.3 Loi de mélange de Maxwell Garnett 20

1.7.6 Principes de mélange avancés 20

1.7.6.1 Mélanges multiphases 21

1.7.6.2 Effets de forme des inclusions 21

1.7.6.2.1 Facteurs de dépolarisation 21

1.7.6.2.2 Mélange aligné 22

1.7.6.2.3 Mélange aléatoire 23

1.7.6.3 Sous-structure d'inclusion 23

1.7.7 Modèles de mélange généralisés 23

1.7.7.1 Formule Polder – Van Santen 24

1.7.7.2 Formule du potentiel cohérent 24

1.7.7.3 Formule de mélange unifiée 24

1.7.7.4 Autres modèles de mélange 25

1.7.8 Modélisation, du comportement des matériaux binaires, proposée par Bottreau 25

1.7.9 Corrélation avec les lois de Wiener 27

1.7.9.1 Loi de WIENER directe 27

1.7.9.2 Loi de WIENER inverse 29

1.7.9.3 Loi de WIENER mixte 31

1.7.10 Relation avec les lois des mélanges les plus usuelles 34

1.7.10.1 Loi de Birchak 34

1.7.10.2 Loi de Looyenga 36

	1.7.10.3 Loi d'Hanaï	39
	1.7.10.4 Loi de Böttcher	41
	1.7.10.5 Récapitulation relative à la corrélation des différentes lois et celle de Bottreau	43
	1.7.11 Avantages et mise en œuvre pratique de la loi de modélisation de Bottreau	45
	1.8 Conclusion	45
	Références	47
Chaiptre2	**Théorie des lignes de transmission et spectroscopie temporelle**	**52**
	2.1 Introduction	53
	2.2 Analyse de circuit d'une ligne de transmission	53
	2.3 Analyse électromagnétique d'une ligne de transmission	58
	2.4 Le régime transitoire dans les lignes de transmission	60
	2.5 La spectroscopie temporelle	63
	2.6 Les méthodes expérimentales relatives à la RDT	64
	2.6.1 La méthode de la première réflexion	64
	2.6.2 Les méthodes des réflexions multiples	65
	a) La méthode de la ligne court-circuitée	67
	b) La méthode de la ligne ouverte	69
	c) La méthode de la ligne adaptée	72
	2.7 Conclusion	75
	Références	77
Chaiptre3	**Protocole expérimental**	**78**
	3-1 Introduction	79
	3-2 La démarche expérimentale suivie lors de toutes les mesures	79
	3-3 Détermination des fractions volumiques en fonction des poids des charges	79

3-4 Fabrications de composites 79
3-4-1 Les matériaux utilisés 79
3-4-1-1 Matrice hôte:(La résine époxyde) 80
3-4-1-2 Les charges 80
3-4-1-2-1 Titanate de baryum (BaTiO3) 80
3-4-1-2-2 Oxyde de calcium (CaO) 82
3-4-1-2-3 Dioxyde de manganèse MnO2 83
3-4-2 La technique de pose à la main 84
3-4-3 Code d'identification des échantillons 85
3-4-4 Usinage des échantillons 85
3-5 Caractérisation des composites par la technique RDT 85
3-6 Traitements des signaux acquis par la RTD 86
3-6-1 Détermination du coefficient de réflexion 86
3-6-2 Extraction du signal réfléchi 86
3-6-3 La fonction d'appareil 87
3-6-4 Extraction de l'admittance 87
3-6-5 L'obtention de la permittivité complexe 88
3-6-6 Calcul de la transformée de Fourier discrète (TFD) 88
3-6-6-1 Méthode de Samulon 88
3-6-6-2 Calcul de la TFD 89
3-7 Résultats expérimentaux obtenus par RDT 90
3-8 Conclusion 100
Références 101
Chaiptre4 ***Mesures, Résultats et discussions*** **103**

4.1 Introduction 104

4.2 Description du montage expérimental 104

4.3 Résultats et discussions 108

4.3.1 Analyse spectrale 108

4.3.1.1 Détermination de la permittivité complexe (ε'- j ε'') des différents composites 108

4.3.1.2 Détermination de la conductivité des différents composites 111

4.3.2 Analyse basse fréquence 112

4.3.2.1 Le comportement diélectrique du composite sous l'effet des oxydes 112

4.3.2.2 Comportement de la conductivité du composite sous l'effet des oxydes 116

4.3.2.3 Processus de modélisation 118

4.4 Etude comparative entre les valeurs expérimentales et celle de Lichtenecker modifié 122

4.5 Conclusion 123

Références 125

Conclusion générale 126

Introduction générale

Les matériaux sont devenus un symbole du progrès de la civilisation humaine et des repères pour diviser les époques de l'histoire. Du point de vue matériau, la société humaine a connu l'âge de pierre, l'âge de bronze et l'âge de fer. Les plastiques et composites à haute performance, apparus au XXe siècle, ont infiltré l'économie des nations et la vie des gens dans divers domaines, avec un rythme de développement rare dans l'histoire. Ils sont devenus des substituts aux matériaux traditionnels, montrant une performance améliorée. Maintenant, avec le développement rapide de la science et de la technologie, les matériaux jouent un rôle important dans l'économie nationale. Les nouveaux matériaux sont à la base du développement de nouvelles technologies où la science des matériaux est devenue l'un des piliers de la science et de la technologie modernes.
Avec le développement rapide de la science et de la technologie modernes, il y a des exigences spéciales plus sévères pour les matériaux. La recherche relative aux matériaux se développe dans le sens de la conception des matériaux en fonction des propriétés conçues. Les matériaux composites, constitués de matériaux métalliques, non métalliques et polymères, peuvent, grâce à certains procédés, conserver les avantages des composants d'origine, pallier certaines lacunes et présenter de nouvelles propriétés. L'émergence et le développement de tels matériaux composites est un exemple classique de la conception de matériaux.

L'objectif d'un matériau composite est de combiner deux ou plusieurs matériaux tout en créant une synergie entre ceux-ci afin qu'il en résulte un composite plus performant. Dans ce travail nous avons opté pour les composites quaternaires qui sont constitués de la résine époxyde, du titanate de barium, de l'oxyde de calcium et du dioxyde de magnésium. ($RE/TB/CaO/MnO_2$). Le choix de ces matériaux est basé sur des travaux antérieurs réalisés au laboratoire LIS sous forme de composites ternaires.

Le présent travail porte sur la caractérisation des composites quaternaires à base de titanate de baryum, d'oxyde de calcium, de dioxyde de manganèse et de résine d'époxyde en vue de déterminer leurs permittivités ainsi que leurs conductivités. Dans le but de remplir les objectifs visés, nous faisons appel à une technique de caractérisation connue sous l'appellation de spectroscopie dans le domaine temporel "SDT". En réalité, cette technique est destinée à être utilisée pour les mesures en hyperfréquences.
Cette technique consiste à faire propager dans une ligne, supposée sans perte, un échelon de tension de temps de montée très bref et étudier les caractéristiques de la réflexion émanant de l'interaction du signal précité avec l'échantillon à caractériser. La technique de réflectométrie comporte plusieurs méthodes de mesure. En ce qui concerne cette tâche, nous avons opté pour la méthode de la ligne adaptée. Notre banc de mesure est constitué essentiellement d'un générateur d'échelon, des guides d'onde coaxiaux, d'une cellule de mesure et d'un oscilloscope à échantillonnage numérique.

La corrélation des propriétés diélectriques, notamment les permittivités des matériaux composites quaternaires avec les lois de mélange appropriés à notre cas de figure, est une étape primordiale. C'est en quelque sorte la validation de ces lois du point de vue expérimental. Pour ce faire, une analyse du comportement diélectrique des composites en question est effectuée. En revanche, il s'agit de quantifier ce comportement en fonction de la permittivité et la concentration volumique des différentes inclusions.

L'étude du facteur de forme au niveau du comportement diélectrique d'un composite quaternaire granulaire est régi par sa structure. C'est un composite de plusieurs matériaux naturels qui présente des formes de grains les plus aléatoires. Les variables "microscopiques" qui interviennent sont : les propriétés géométriques de l'arrangement des grains, les propriétés physiques des grains, les forces et les orientations des contacts. Même si chaque grain est un élément simple, l'unité de grains est un système très compliqué, dans lequel le désordre et le caractère divisé du milieu jouent un grand rôle.
On peut quantifier leur forme mais le degré de précision n'est pas justifié en géotechnique. On se contente plutôt de qualifier ses formes suivant les critères : arrondies, sous-arrondies, sous angulaires et angulaires. Les échantillons sont ainsi confectionnés puis soumis à l'essai de cisaillement. Les résultats obtenus montrent que les caractéristiques de cisaillement sont fortement influencées par l'état de surface, la forme et la taille des grains.
Dans ce contexte, une série d'échantillons a été réalisée au niveau du Laboratoire d'Instrumentation Scientifique (LIS) de l'université de Sétif-1, selon différentes compositions et concentrations, et avec des pas de concentration bien précis, ce qui va nous permettre par la suite de développer une solide compréhension vis-à-vis des variations observées lors du travail expérimental.

La caractérisation de ces échantillons à été faite au niveau du laboratoire d'électromagnétisme du département de physique appliquée de l'université de Saragosse (Espagne) qui dispose du banc de mesure TDS. Il est à noter qu'on a effectué deux stages au labo précité au cours desquels le professeur Juan Pablo Martines a assuré l'encadrement à travers la mise au point du banc TDS et la consolidation des résultats obtenus.
En réalité, ce travail présente une continuation des travaux antérieurs portant sur l'étude du comportement électromagnétiques des composites binaires [1] et ternaires [2]. Ces travaux ont été effectués en collaboration entre les deux laboratoires précités.
Ce manuscrit comporte quatre chapitres. Le premier est dédie à la théorie des diélectriques où nous avons passé en revue les phénomènes de polarisation ainsi que leurs mécanismes, le concept de dipôle et le moment dipolaire et les propriétés diélectriques dépendantes de la fréquence. Nous avons également évoqué des modèles de relaxation des matériaux en polymères ainsi que quelques effets de la polarisation. Ensuite nous avons introduit un contexte historique des lois de mélange, puis nous sommes passés à la partie la plus importante, celle des différentes lois de mélange.

Quant au deuxième chapitre, il nous a paru essentiel de le consacrer à la théorie des lignes de transmission. Nous avons également introduit l'analyse électromagnétique des lignes de transmission. Ce préambule sert à faciliter la compréhension de la méthode de la spectroscopie temporelle qui regroupe, en réalité, deux aspects à savoir: la réflectométrie temporelle et l'analyse fréquentielle de ses résultats. Dans ce chapitre, nous nous sommes contentés uniquement d'étudier la réflectométrie temporelle ainsi que ses différentes méthodes à savoir celles de la première réflexion et des réflexions multiples. Cette dernière englobe à son tour quatre méthodes qui restent tributaires du type de charge placée au bout de ligne de mesure. Une étude comparative exhaustive entre ces méthodes a été menée, ce qui nous a permis d'opter pour celle de la ligne adaptée pour des raisons qui sont bien détaillées dans ce chapitre.

En ce qui concerne le troisième chapitre, il nous a semblé approprié d'exposer la démarche expérimentale suivie lors de toutes les mesures, ainsi que la technique de fabrication des matériaux composites. Dans ce contexte, nous avons tenté de donner le plus d'informations possible sur les matériaux constituants que ce soit sur le plan des différents types de propriétés

moléculaires ou sur celui de la cristallographie, ce qui pourrait certainement par la suite mieux consolider les interprétations des résultats obtenus. Par ailleurs, nous avons évoqué les différentes posologies de chaque constituant tout en respectant un pas bien déterminé ainsi que les conditions nécessaires pour l'obtention des mélanges de caractère aléatoire. D'un autre coté, comme nous l'avons déjà mentionné, la spectroscopie est basée essentiellement sur l'analyse fréquentielle des résultats de la réflectométrie temporelle. C'est pour cette raison que nous avons tenté de détailler un peu l'aspect traitement de signaux en mettant l'accent particulièrement sur la transformée de Fourier discrète et en utilisant la méthode de Samulon qui sert à simplifier les calculs et l'extraction de la permittivité. A la fin de ce chapitre, nous avons donné des résultats bruts de la réflectométrie temporelle.

Dans le quatrième chapitre, nous avons présenté une description bien détaillée du montage expérimental utilisé en montrant les différentes parties qui le composent. Ensuite, nous sommes passés à la partie la plus importante qui est notre contribution, celle des résultats et leurs discussions. Cette dernière est subdivisée en plusieurs sections: analyse spectrale, et l'analyse basse fréquence tout en mettant l'accent sur l'effet des deux oxydes en présence d'un matériau ferroélectrique, ainsi que le processus de modélisation basé sur le modèle de Lichteneker modifié qui a été toujours adopté presque dans tous les travaux du Laboratoire LIS.

Références

1 *N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, A. Benhamouda, and N. Bourouba***,** *Eur. Phys. J. Appl. Phys. 38, 147–152 (2007)*

2 *N. Bourouba, K. Lalla, J.P. Martínez Jiménez, N. Bouzit, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 65, 10202 (2014)*

CHAPITRE 1

La théorie des diélectriques et les lois de mélanges

1.1 Introduction

L'étude de la permittivité effective des milieux hétérogènes ne date pas d'aujourd'hui, mais elle remonte au début du XIXè siècle, et ce, pour la détermination du comportement des différents matériaux (poudre, et mélanges). Les nouvelles applications technologiques, tels que la miniaturisation des composants électroniques, ont vraiment motivé la communauté scientifique à intensifier ses recherches. Le recours au concept de la permittivité effective est l'une des actions adoptées par les chercheurs en vue de modéliser des matériaux composites en basses fréquences, et ce, parce que dans cette gamme de fréquence, les effets de dispersion demeurent insignifiants. La variation spatiale du champ électromagnétique incident est certainement beaucoup plus grande que la taille des inhomogénéités dans le matériau. A ce stade nous pouvons considérer que les effets de dispersion dus à la présence des inclusions sont négligés. Dans ce qui va suivre, nous présentons d'abord la polarisation, les propriétés diélectriques, ensuite nous expliquons le modèle de relaxation diélectrique suivi par certaines lois de mélanges.

1.2 Polarisations et propriétés diélectriques [1]

a) Dipôles et moment dipolaire

Le dipôle est le concept fondamental de la théorie diélectrique. Un dipôle est formé suite à une séparation entre le centre des charges positives et celui des charges négatives, Figure 1.1. Généralement, il existe trois types de dipôles qui sont classés suivant les mécanismes de leurs formations: dipôles instantanés, dipôles permanents et dipôles induits.

Les dipôles instantanés existent dans toutes les molécules et les atomes. La séparation instantanée entre les centres des deux charges, positive et négative, est principalement causée par les mouvements thermiques constants dans les molécules et les atomes. Dans ce cas, les dipôles sont généralement plus petits. Au contraire, dans certaines molécules, en raison de la nature de leurs liaisons chimiques, la distribution des électrons dans les molécules n'est pas uniforme, ce qui entraîne une séparation permanente entre le centre de charge positive et celui de charge négative, c'est-à-dire dipôles permanents. Le dipôle permanent se produit lorsque les deux éléments de liaison présentent de grandes différences d'électronégativité, telles que les liaisons ioniques et certaines liaisons covalentes dans les molécules polaires. En outre, les structures moléculaires asymétriques et la liaison secondaire dans les matériaux contribuent de manière significative à la formation d'un dipôle permanent. Habituellement, les dipôles permanents sont beaucoup plus grands que les dipôles instantanés. Des dipôles peuvent également être induits, à la suite d'interactions électrostatiques, lorsque les molécules et les atomes sont exposés à des molécules polaires adjacentes.

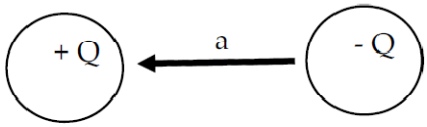


Figure 1.1 Illustration schématique d'un dipôle.

Selon la figure 1.1, il est évident que la grandeur d'un dipôle est déterminée à la fois par la distance de séparation (a) entre les charges positives et négatives et la quantité de charges (Q). Ainsi, un concept de moment dipolaire diélectrique (p) est introduit pour mesurer l'amplitude d'un dipôle, comme indiqué dans l'équation. 1.1. Ici, $\vec{P}$ est un vecteur allant de la charge négative vers la charge positive.

$$\vec{P} = Q\vec{a} \tag{1.1}$$

b) Mécanismes de polarisation

Le champ électrique externe peut non seulement être à l'origine de la formation de dipôles, mais également aligner les dipôles permanents et induits le long de la direction du champ électrique en

question. Ce processus s'appelle la polarisation. Celle-ci est responsable de nombreux phénomènes diélectriques, tels que le stockage d'énergie et la piézoélectricité. Il existe quatre types de mécanismes de polarisation: la polarisation électronique, la polarisation ionique, la polarisation d'orientation et la polarisation interfaciale. Les matériaux diélectriques présentent au moins l'un de ces quatre mécanismes de polarisation, en fonction à la fois des structures de matériaux et des conditions externes, tels que la fréquence et la température. Mathématiquement, la polarisation (P) est définie comme le moment dipolaire total par unité de volume, comme il est indiqué dans l'équation. (1.2)

$$\mathrm{P} = \frac{\sum_1^n P_i}{Volume} \tag{1.2}$$

- **La polarisation électronique** décrit le déplacement des nuages d'électrons dans une molécule ou un atome sous l'influence du champ électrique externe. Ce changement entraîne la séparation du centre de charge positif (noyaux) et celui de charge négatif (nuages d'électrons), comme le montre la figure 1.2. Cela pourrait arriver à tous les atomes et à toutes les structures moléculaires. Cependant, comparé à d'autres mécanismes de polarisation, le moment dipolaire résultant de la polarisation électronique est plutôt faible.

-

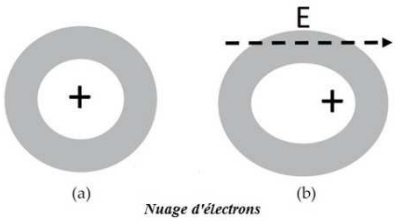


Figure 1.2 Polarisation électronique: (a) la distribution du nuage d'électrons en l'absence de champ électrique; (b) le déplacement du nuage d'électrons dans un champ électrique.

- **La polarisation ionique** ne se produit que sur les matériaux qui ont des liaisons ioniques, tels que NaCl et $BaTiO_3$. Dans les solides ioniques, chaque paire de cation et d'anion voisins peut former un dipôle et avoir un moment dipolaire. Cependant, sans un champ électrique externe, le moment dipolaire net du solide est nul, en raison de l'alignement opposé des dipôles adjacents avec la même amplitude du moment dipolaire, comme le montre la Figure 1.3. Dans un solide ionique de type AX, tel que NaCl, lorsqu'un champ électrique est appliqué au solide ionique, les cations et les anions se déplaceraient dans des directions opposées entraînées par ce champ électrique, conduisant à des séparations de charge inégales (a> b) dans les dipôles adjacents, comme indiqué sur la Figure. 1.3. Ce changement induit par un champ électrique externe crée finalement un moment dipolaire net non nul des solides ioniques.

-

- **La polarisation d'orientation** est également appelée polarisation dipolaire. De nombreuses molécules polaires ont des dipôles permanents. Cependant, les matériaux constitués de ces molécules polaires n'ont généralement pas de moment dipolaire net en raison de l'orientation aléatoire de ces dipôles permanents en l'absence de champ électrique externe, comme le montre la Figure 1.4. Les dipôles orientés aléatoirement vont s'aligner le long de la direction du champ électrique appliqué, conduisant à un moment dipolaire net.

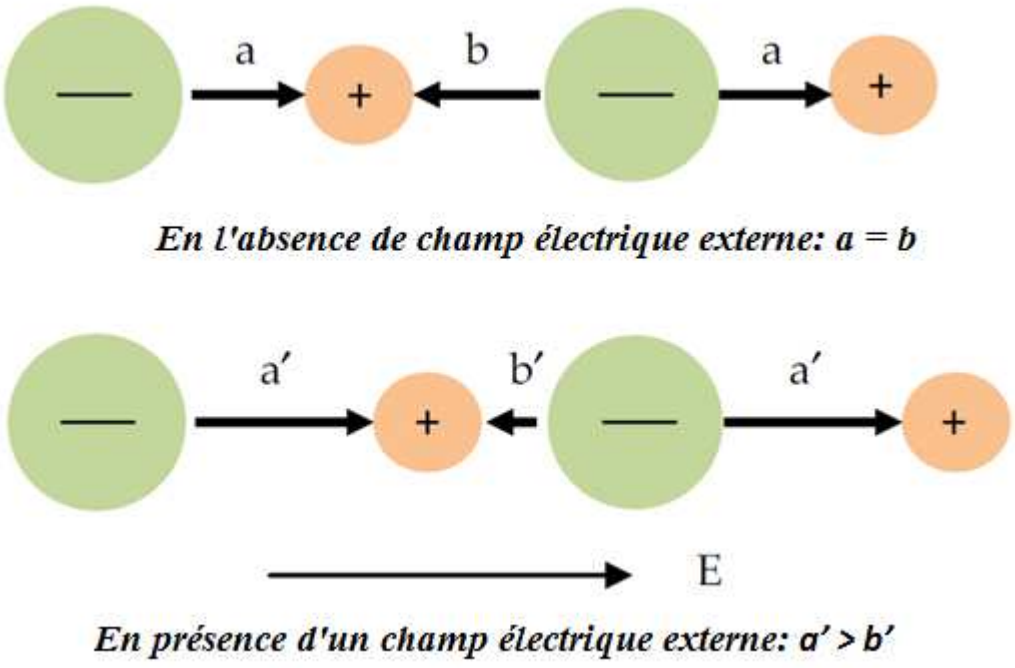


Figure 1.3 Polarisation ionique dans un solide ionique de type AX.

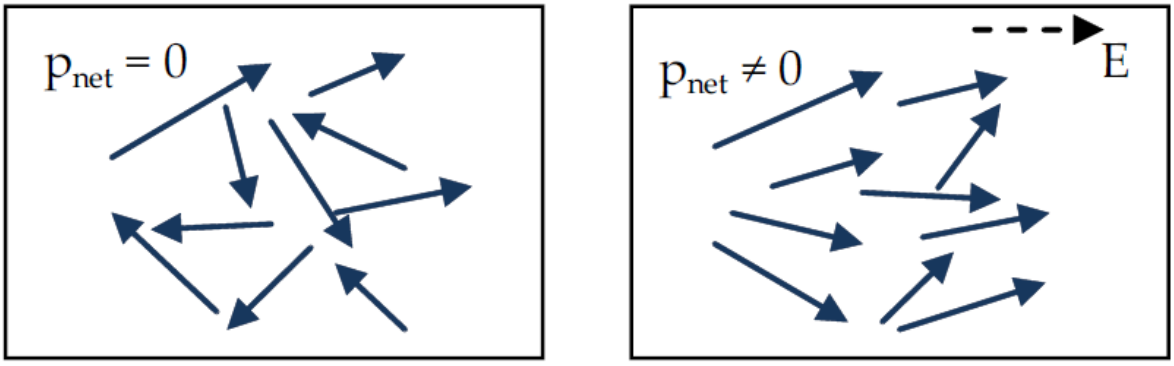


Figure 1.4 Polarisation d'orientation de dipôles permanents (flèches pleines) dans un champ électrique externe.

- **La polarisation interfaciale** existe couramment dans tous les matériaux présentant plusieurs phases/régions. En raison des différences de propriétés électroniques, l'accumulation de charge pourrait être attendue à l'interface entre différentes phases / régions, comme les joints de grains dans les polycristaux, l'interface entre phase amorphe et phase cristalline dans les polymères semi-cristallins, ainsi que certains défauts structuraux et impuretés. Dans les composites polymères, l'interface entre la matrice polymère et les matériaux (inclusions) est également capable d'accumuler des charges, ce qui a montré des effets dramatiques sur les performances diélectriques des composites polymères. Lorsque le champ électrique est appliqué, les charges positives et négatives migrent en conséquence, ce qui conduit à la formation d'une couche de charge positive et une autre de charge négative des deux côtés de l'interface, comme le montre la figure 1.5. Cette polarisation interfaciale est également importante entre les matériaux diélectriques et l'électrode métallique.

1.3 Propriétés diélectriques dépendantes de la fréquence

Les performances diélectriques dans les matériaux sont issues d'au moins un des quatre mécanismes de polarisation susmentionnés. Ces quatre mécanismes ont des fréquences de relaxation différentes.

Ainsi, les propriétés diélectriques des matériaux montrent généralement une forte dépendance en fréquence, comme le montre la figure 1.6.

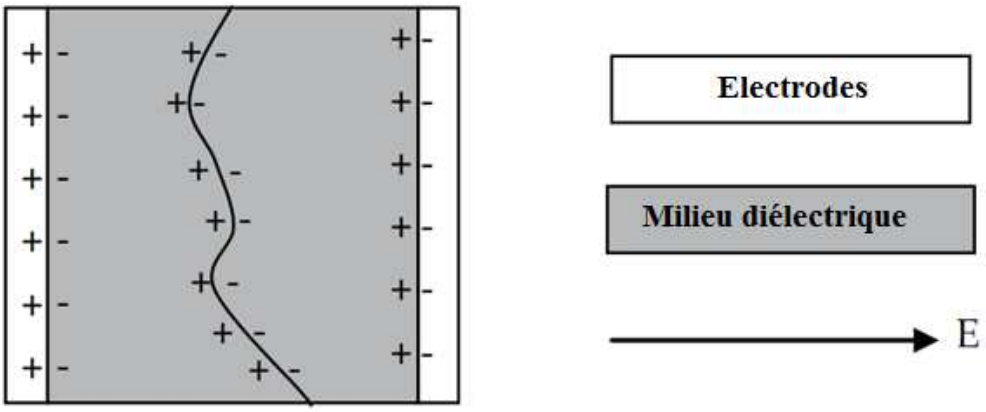


Figure 1.5 Polarisation interfaciale (accumulation de charge) à différentes interfaces en présence de champ électrique externe.

La spectroscopie de la relaxation diélectrique est utilisée pour étudier les propriétés diélectriques dépendantes de la fréquence. Cette étude des comportements de la relaxation diélectrique pourrait être utilisée pour mesurer les propriétés diélectriques à différentes fréquences, fournissant des informations utiles pour la conception optimale de matériaux pour des applications diélectriques. D'autre part, étant donné que différentes microstructures montrent typiquement différentes fréquences de relaxation, la spectroscopie de relaxation diélectrique a été communément appliquée dans les recherches relatives aux matériaux [2-8]. Les comportements de relaxation diélectrique dépendants de la température et de la fréquence sont souvent liés aux différentes structures chimiques, cristallines et de phase ainsi qu'aux divers comportements de relaxation des matériaux. Par conséquent, une compréhension approfondie des structures et des propriétés des matériaux polymères peut être obtenue par l'analyse diélectrique. Le paramètre le plus important obtenu à partir de la spectroscopie de relaxation diélectrique est la permittivité diélectrique (ε*), qui est un nombre complexe, comme indiqué dans l'équation. 1.3:

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \tag{1.3}$$

Où (ε′) représente la partie réelle de la permittivité diélectrique, et qui est en réalité la mesure des matériaux pour se polariser et stocker des charges électriques lorsqu'ils sont utilisés dans des condensateurs, tandis que la partie imaginaire (ε″) représente la perte diélectrique générée pendant la formation et l'alignement des dipôles. Hourquebie et Olmedo [9] ont établi une relation de proportionnalité de rapport k entre la perte diélectrique et la fréquence, comme indiqué dans l'équation 1.4:

$$\varepsilon'' = kf^{-n} \tag{1.4}$$

Cependant, le facteur de perte (tan δ) est plus fréquemment utilisé pour l'évaluation de la perte diélectrique, comme écrit dans l'équation 1.5:

$$\tan\delta = \varepsilon''/\varepsilon' \tag{1.5}$$

La permittivité diélectrique complexe est également liée à la conductivité électrique complexe (σ*). Cette relation est donnée dans l'équation. 1.6:

$$\sigma^* = \varepsilon'' \omega \varepsilon_0 + j\varepsilon' \omega \varepsilon_0 = \sigma' + j\sigma'' \tag{1.6}$$

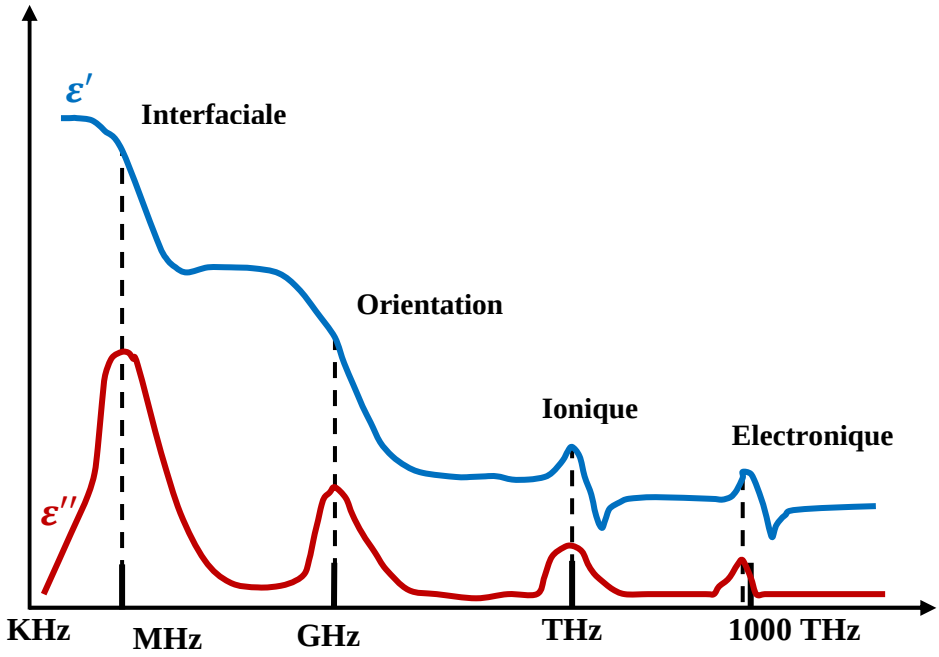


Figure 1.6 Propriétés diélectriques dépendantes de la fréquence montrant les quatre type de polarisation [1]

Ici, ω est la vitesse angulaire, σ′ est la partie réelle de la conductivité complexe (égale à la somme de la conduction DC et de la conduction AC), et σ″ est la partie imaginaire de la conductivité AC. Cette équation révèle une relation importante entre la perte diélectrique et la conductivité AC. Une conductivité électrique élevée (plus précisément, la conduction continue) contribue directement à une perte diélectrique élevée.

Le module électrique (M*) est un autre paramètre important pour l'étude de la relaxation diélectrique des nanocomposites polymères, en particulier les nanocomposites électriquement conducteurs [10,11]. Le module électrique pourrait être utilisé pour supprimer les influences de la conduction en courant continu sur la relaxation diélectrique basse fréquence. Le module électrique est donné en l'équation 1.7:

$$M^* = M' + jM'' = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} + j\frac{\varepsilon''}{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} \tag{1.7}$$

Où, M′ et M″ sont respectivement la partie réelle et imaginaire du module électrique. La fonction M″=F(M′) nous permet d'étudier les comportements de la relaxation diélectrique.

1.4 Modèles de relaxation diélectrique pour les matériaux polymères

Le modèle de relaxation de Debye est un modèle classique pour décrire la relaxation diélectrique des matériaux polymères, comme il est écrit dans l'équation 1.8:

$$\varepsilon^*(i\omega) = \varepsilon'_\infty + \frac{\Delta\varepsilon'}{1 + j\omega\tau_0} \tag{1.8}$$

Ici, $\Delta\varepsilon' = \varepsilon'_s - \varepsilon'_\infty$, $\varepsilon'_s \; et \; \varepsilon'_\infty$ sont la permittivité relative aux limites basse et haute fréquence et τ_0 est le temps de relaxation caractéristique déterminé par la fréquence de relaxation. Ce modèle néglige les interactions entre les différents dipôles. Actuellement, les modèles dominants de relaxation diélectrique dans les polymères sont des variantes du modèle de Debye [12-14].
Le modèle de Havriliak-Negami est basé sur la distribution continue du temps de la relaxation, comme indiqué dans l'équation. 1.9:

$$\varepsilon(i\omega) = \varepsilon'_\infty + \frac{\Delta\varepsilon'}{[1 + (j\omega\tau_0)^{1-\alpha}]^\beta} \tag{1.9}$$

Comparés au modèle de Debye, les deux exposants α et β décrivent l'asymétrie et la largeur des spectres de relaxation.
Typiquement, les valeurs de α et β sont comprises entre 0 et 1. Quand β = 1, le modèle de Havriliak-Negami est réduit au modèle de Cole-Cole, comme indiqué dans l'équation. 1.10 [15]:

$$\varepsilon(i\omega) = \varepsilon'_\infty + \frac{\Delta\varepsilon'}{1 + (j\omega\tau_0)^{1-\alpha}} \tag{1.10}$$

Lorsqu'un pic de perte diélectrique symétrique est obtenu à partir des spectres de relaxation diélectrique, Equation 1.10 peut être utilisé pour décrire ce comportement de relaxation.
Une autre variante du modèle de Havriliak-Negami est le modèle dit de Cole-Davidson, dans lequel, α = 0. Ainsi, ce modèle a une forme montrée dans l'équation. 1.11. Ce modèle est utilisé lorsque le pic de perte diélectrique montre une asymétrie sur les spectres de relaxation diélectrique.

$$\varepsilon(i\omega) = \varepsilon'_\infty + \frac{\Delta\varepsilon'}{1 + (j\omega\tau_0)^{\beta}} \tag{1.11}$$

1.5 Milieu diélectrique dans un condensateur

Lorsqu'un matériau diélectrique est placé entre deux plaques métalliques reliées à une alimentation en tension constante (V), une certaine quantité de charges électriques (Q) peut être stockée sur ces deux plaques, en raison de la polarisation des matériaux diélectriques. Ce dispositif simple, tel que représenté sur la figure 1.7, est ce que l'on appelle le condensateur à plaques parallèles. La quantité de charges électriques stockées sur chaque plaque est décrite comme une capacité, qui est donnée par l'équation. 1.12:

$$C = Q/V \tag{1.12}$$

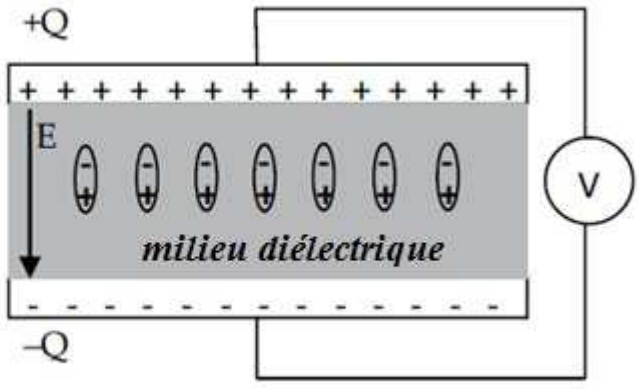


Figure1.7 Milieu diélectrique entre des deux armatures d'un condensateur [1]

L'unité de capacité (C) est des Coulombs par volt, ou Farads (F). La capacité est un paramètre dépendant de la géométrie, qui peut être écrit comme:

$$C = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{A}{d} \tag{1.13}$$

Où ε_0, La permittivité du vide, une constante universelle ayant une valeur de $8{,}85 \times 10^{-12}$ F / m; ε_r est la permittivité relative (ou constante diélectrique) du matériau diélectrique, qui est une constante de matériau; "A" est la surface des plaques et "d" est la distance qui sépare les deux plaques, égale à l'épaisseur du milieu diélectrique.

1.6 Quelques effets de polarisation [16]

Les phénomènes de polarisation électrique, en plus des effets magnétiques, peuvent aussi être plus compliqués que les réponses linéaires isotropes ou anisotropes. La cause d'un dipôle électrique n'est pas nécessairement uniquement le champ électrique et magnétique ou leurs dérivés. De plus, des phénomènes non linéaires analogues aux effets de couplage dans la polarisabilité magnétique sont autorisés. Souvent, les effets de polarisation dus à des causes non électriques sont beaucoup moins importants que les effets directs. Cependant, dans la suite, certains de ces effets sont brièvement discutés.

1.6.1 Ferroélectricité

La ferroélectricité a reçu son nom par son analogie avec le ferromagnétisme, bien que le fer et d'autres matériaux ferromagnétiques ne soient pas ferroélectriques, et en effet, peu de matériaux ferroélectriques contiennent du fer. La ferroélectricité est l'alignement spontané des dipôles électriques par interactions mutuelles [17]. Les matériaux ferroélectriques sont caractérisés par des permittivités relatives très élevées, qui peuvent atteindre des ordres de 10^3 ou même 10^4. Tout comme les matériaux ferromagnétiques, la ferroélectricité disparaît au-dessus d'une température appelée température de Curie (ferroélectrique). Des exemples de matériaux ferroélectriques sont le Sel de Rochelle et le Titanate de Baryum, dont le dernier matériau a récemment été très utilisé dans l'ingénierie des micro-ondes en tant que céramique frittée à partir de poudre. Le matériau électrique le plus analogue à un aimant permanent est l'électret, une substance électrifiée portant des charges de polarité opposée à ses extrémités. Son utilité est cependant diminuée par les charges libres qui sont attirées de l'air à ses surfaces et qui tendent à annuler la polarisation, inconvénient dont sa contrepartie, l'aimant permanent, ne souffre pas. L'irréversibilité de la structure de domaine d'un matériau ferroélectrique rend sa réponse électrique dépendante du passé et non linéaire. La polarisation électrique moyenne tracée en fonction d'un champ électrique alternatif n'est pas une courbe unique. Au contraire, c'est une boucle d'hystérésis. Le caractère non linéaire et saturant des matériaux ferroélectriques signifie que la permittivité est beaucoup plus grande pour les faibles intensités de champ que pour les hautes valeurs du champ.

1.6.2 Non-linéarité

La non-linéarité le long de la veine ferromagnétique et ferroélectrique est typiquement un phénomène statique et à basse fréquence. Mais la non-linéarité des matériaux est également très importante à l'autre extrémité du spectre électromagnétique, dans les fréquences optiques. La génération harmonique de la lumière est due au caractère non linéaire d'un milieu exposé à un champ électrique de forte amplitude. L'amplification paramétrique des signaux micro-ondes est également une conséquence bénéfique de la réponse non linéaire de la matière. Les progrès de la physique des solides et de la technologie laser dans la dernière partie du XXe siècle ont amélioré notre compréhension des propriétés non linéaires de la matière. Contrairement aux matériaux

ferroélectriques qui peuvent présenter des réponses non linéaires pour des champs relativement faibles, les applications optiques de la non-linéarité traitent de très fortes amplitudes de champ. La relation constitutive pour un matériau non linéaire est bien sûr encore plus compliquée que pour des matériaux linéaires. La polarisation électrique créée par un champ électrique a des termes qui dépendent des puissances de second ordre et d'ordre supérieur du champ [18,19]. Et cette relation peut aussi être anisotrope et dépendre différemment des différentes combinaisons des composantes du champ électrique. Par conséquent, par exemple, la susceptibilité non linéaire de second ordre est un tenseur de troisième ordre. Bien entendu, la symétrie du milieu peut à nouveau être utilisée pour réduire la complexité des tenseurs de propriétés d'un matériau non linéaire. Par exemple, le tenseur de susceptibilité de troisième ordre doit disparaître dans les milieux centro-symétriques, d'où il résulte, par exemple, que le soi-disant effet Pockels est interdit. Cependant, la non-linéarité d'ordre suivant avec une relation constitutive tétraédrique - l'effet Kerr - est autorisée.

1.6.3 Piézo-électricité

La piézoélectricité est un phénomène déjà découvert par les frères Curie en 1880. Ils ont découvert que des champs électriques pouvaient être créés dans certains cristaux asymétriques par compression mécanique dans certaines directions. Un exemple d'un tel médium est la tourmaline, qui est également fortement anisotrope et présente un dichroïsme: elle est de couleur différente lorsqu'elle est vue dans différents axes. Cet effet est souvent étiqueté comme l'effet piézoélectrique direct. Par des raisons thermodynamiques, on peut s'attendre à ce que pour de tels matériaux aussi l'effet inverse existe, ce qui est effectivement le cas: l'application d'une différence de potentiel dans le matériau crée une distorsion mécanique. Une manière naturelle d'utiliser le phénomène piézoélectrique est dans les résonateurs électromécaniques et les transducteurs, comme les microphones et les capteurs de pression. Les relations constitutives pour les matériaux piézoélectriques sont plus complexes que pour les matériaux anisotropes ordinaires car les contraintes mécaniques et les contraintes elles-mêmes sont des tenseurs de second ordre, et donc leurs relations avec le champ électrique et la densité de flux doivent être présentée par des tenseurs de troisième ordre [20]. La relation entre le champ électrique en tant que cause et la contrainte mécanique en tant qu'effet peut également contenir des termes non linéaires. Le nom de cette composante de la distorsion est l'électrostriction. Bien sûr, une compression de la matière augmente sa densité et peut aussi provoquer l'augmentation de la permittivité; par conséquent, la piézoélectricité rend le matériau non linéaire.

1.6.4 Pyroélectricité

La pyroélectricité est une propriété d'un tel matériau qui développe une polarisation électrique lorsqu'il est chauffé. Par conséquent, le matériau peut montrer une polarisation même en l'absence d'un champ électrique externe. La dilatation thermique modifie les moments permanents de l'échantillon grâce à des effets de type piézoélectrique. Les cristaux qui ont un axe polaire sont pyroélectriques en plus d'être piézoélectriques, et ces mécanismes peuvent être utilisés comme base pour la classification des différents groupes de points cristallographiques [21]. La pyroélectricité a été observée pour la première fois dans le quartz en 1824 et elle peut évidemment être utilisée comme capteur dans les thermomètres. En y regardant de plus près, il faut distinguer entre la pyroélectricité primaire et secondaire [22]. La polarisation électrique peut être une conséquence directe d'un changement de température (pyroélectricité primaire). Mais aussi l'effet secondaire (soi-disant fausse pyroélectricité) est possible: la dilatation thermique provoque une déformation, puis la polarisation électrique est créée si le matériau est piézoélectrique.

1.6.5 Non-localité

Un autre concept important dans le traitement de la réponse des matériaux est la distinction entre localité et non-localité. Dans l'une des sections précédentes, les effets de mémoire de la polarisation

diélectrique ont été discutés. Cela signifiait que, parce qu'il y avait toujours une lenteur dans la réponse de la matière, les moments dipolaires induits ne dépendaient pas seulement du champ électrique au même moment, mais aussi des valeurs du champ précédent. Ce caractère "temporellement non local" a également rendu la fonction de permittivité dépendante de la fréquence. En fait, les propriétés du matériau dans la description du domaine temporel ont leurs homologues dans le domaine fréquentiel [23]. Les champs électromagnétiques dépendent non seulement du temps mais aussi des trois coordonnées spatiales. Par conséquent, l'approche d'ingénierie commune qui implique des fonctions transformées de Fourier joue souvent non seulement avec la fréquence ω de l'onde mais souvent aussi avec un spectre d'ondes planes. Ensuite, la dépendance aux variables d'espace est cachée dans les fonctions du vecteur d'onde k. La description de la réponse matérielle signifie que la permittivité doit être écrite en fonction des deux variables de Fourier:$\varepsilon = \varepsilon(\omega, k)$. Et parce que la fréquence et le vecteur d'onde sont deux variables indépendantes, nous devons faire la distinction entre la dispersion temporelle et spatiale. La dispersion spatiale signifie que la polarisation diélectrique dans le milieu dépend des variations de champ dans l'espace en plus des valeurs de champ ponctuelles. La dispersion spatiale est un phénomène important dans la conception de matériaux artificiels avec une réponse complexe où l'on peut délibérément créer une polarisation forcée à un point voisin du milieu en utilisant, par exemple, de petits éléments de ligne de transmission mélangés en quantité suffisante.
Cette liste des différents types de mécanismes de polarisation n'est pas exhaustive. La magnétostriction, la piézo-résistivité, le mécanisme électro-optique et les effets galvano/thermomagnétiques comme les effets de Hall, Ettingshausen et Nernst sont des exemples d'autres phénomènes qui peuvent être observés dans les matériaux d'origine humaine et d'autres matériaux naturels. Bien que de grands efforts d'ingénierie aient été accomplis pour utiliser ces phénomènes dans la pratique, nous ne les détaillerons pas, l'accent sera principalement mis sur la polarisation électrique causée par les champs électriques.

1.7 Les lois de mélange

1.7.1 Contexte historique [16]

L'histoire connue de l'électrostatique a ses origines il y a quelque 2600 ans à Milet, dans la Grèce présocratique, où le philosophe Thales a fait des observations sur les propriétés particulières de l'ambre. Le mot grec pour cette précieuse résine fossile, ambre, est en effet électron. Au fil des siècles, les gens ont appris à faire la distinction entre l'électricité résineuse et vitreuse et ont inventé des moyens pour générer et accumuler de petites quantités de charges, suffisamment pour être libérées par une décharge produisant ainsi des étincelles. Les études scientifiques, cependant, des propriétés diélectriques des matériaux sont beaucoup plus récentes. Stephen Gray a montré en 1729 que l'électricité pouvait passer à travers plusieurs centaines de pieds le long d'un fil, ce qui a permis de faire la distinction entre les matériaux conducteurs et isolants. Une invention importante un peu plus tard a été la bouteille de Leyde, qui a donné aux gens la possibilité de stocker l'énergie électrique en quantités beaucoup plus grandes et pour des périodes plus longues qu'avant. La bouteille de Leyde, a peut-être joué un rôle dans l'élaboration du concept de permittivité et la constante diélectrique.
On sait que le grand Henry Cavendish s'intéressait aux corollaires électriques des différences chimiques dans les matériaux. Il a examiné minutieusement la capacité électrique spécifique de divers matériaux dans les années 1770. Ses mesures des propriétés électriques des substances sont restées inédites pendant cent ans et Michael Faraday a répété des expériences de condensateurs similaires dans les années 1830. Faraday appelait les isolants "diélectriques" et, en mesurant le changement des propriétés d'accumulation de charge de deux conducteurs lorsque divers diélectriques remplaçaient l'air entre eux, il déterminait la "capacité inductive spécifique" de ces substances. Ce terme était le choix naturel de Faraday. Il a identifié la réponse due à la force électrique comme «lignes courbées d'action inductive». Cela correspond à notre concept de densité

de flux électrique. Dans la seconde moitié du dix-neuvième siècle, le terme «constante diélectrique» est apparu dans la littérature; par exemple, James Clerk Maxwell a utilisé ce mot dans son Traité au lieu de la capacité inductive spécifique. Une raison naturelle possible d'appeler un isolant diélectrique est la suivante. Si l'on considère un condensateur chargé sans matériau entre les plaques, les plaques subissent une action électrique à distance, mais lorsque l'espace entre les plaques est rempli par un isolant, l'action est réalisée même si l'isolateur ne peut pas conduire l'électricité.

Il peut être intéressant de noter que la constante magnétique des matériaux correspondant à la capacité électrique étudiée après les études de Faraday sur les propriétés diamagnétiques du bismuth a été appelée «capacité inductive magnétique» par Maxwell. Lord Kelvin a préféré caractériser cette quantité avec le terme «perméabilité magnétique», et en réalisant l'analogie mathématique entre les problèmes concernant diverses propriétés de la matière, il a également parlé de «perméabilité thermique» et de «perméabilité électrique». Le terme "permittivité" pour la perméabilité diélectrique semble être d'origine plus tardive.

Que pouvons-nous donc dire des premières études des propriétés électriques des milieux hétérogènes? Des spéculations sur la caractérisation diélectrique effective des mélanges peuvent déjà être retrouvées chez Amedeo Avogadro et Faraday. Mais des études quantitatives sérieuses concernant les propriétés diélectriques de mélanges ou de conglomérats de matériaux différents ont commencé à émerger vers le milieu des années 1800. La théorie du magnétisme de Simeon-Denis Poisson a aidé Octavio F. Mossotti [24] à formuler des équations pour l'effet d'une inclusion diélectrique sur son environnement. Rudolf Clausius, plus connu par son travail sur l'étude de la chaleur, s'intéresse aussi à l'électrodynamique et étudie la constante diélectrique effective relative ε_r d'une collection de molécules. Son livre [25] donne une dérivation claire de la constante diélectrique effective, montrant que le rapport $(\varepsilon_r - 1)/(\varepsilon_r + 2)$ est proportionnel au nombre de molécules dans le volume unitaire. La littérature ultérieure utilise abondamment le nom de formule Clausius-Mossotti pour une relation qui contient ce rapport.

Après l'unification de J.C. Maxwell de l'électricité et du magnétisme en 1864 et la découverte de la nature électromagnétique de la lumière, une possibilité s'est ouverte pour relier les propriétés optiques et diélectriques de la matière. Cela signifiait que les propriétés optiques effectives de la matière hétérogène pouvaient être déduites des considérations de polarisabilité des inclusions dans le mélange. Ludvig Valentin Lorenz [26, 27] a développé une théorie extensive de l'indice de réfraction de la matière en supposant que la densité de la matière est déterminée par la densité des molécules rigides qui se trouvent dans l'espace libre. Il a pu montrer que l'indice de réfraction A de la matière est déterminé par son volume v de telle manière que la quantité $v\ (A^2 - 1)/(\ A^2 + 2)$ est pratiquement constante.

La nouvelle théorie de Maxwell a également inspiré le jeune Hendrik Antoon Lorentz dans l'étude de la vitesse de la lumière dans un milieu supposé constitué de molécules séparées par de l'éther. Pour l'indice de réfraction, sa découverte était la même que celle de Lorenz [28], et le résultat est fréquemment cité comme la formule de Lorenz-Lorentz.

Un traitement plus formel du problème a été entrepris par Lord Rayleigh [29] qui a calculé le paramètre matériel effectif d'un mélange où les inclusions sphériques ou cylindriques sont ordonnées dans un treillis rectangulaire. Il a vu la généralité de sa propre analyse qui s'appliquait non seulement à l'indice de réfraction mais aussi à la conductivité de la chaleur ou de l'électricité. Son résultat a donné un lien entre les propriétés des inclusions et le milieu macroscopique. Peu de temps après [30], il généralisa la théorie des inclusions ellipsoïdales, problème traité dans l'esprit Clausius-Mossotti par Anton Lampa en 1895 [31].

Un nom qui apparaît très couramment dans la littérature actuelle sur les formules de mélange est celui de J.C. Maxwell Garnett. Il a dérivé la fameuse relation entre la constante diélectrique effective d'un milieu où des sphères métalliques, ayant des propriétés optiques données, occupent au hasard une fraction volumique donnée dans le milieu hôte. Son résultat est connu comme la formule

Maxwell Garnett [32]. Garnett a concentré son attention sur l'effet que les particules et les films d'argent, d'or, de potassium et de sodium peuvent créer dans les verres. Ce n'était pas un problème nouveau: Faraday avait effectué 50 ans plus tôt [33] une série d'expériences qualitatives sur la façon dont les couleurs de la lumière sont affectées par la «grande puissance d'action» des petites particules métalliques. L'étude de Garnett était analytique. Son but était de décrire les propriétés optiques du conglomérat pour une très large gamme de fractions volumiques du métal; de zéro à l'unité, ce qui est une variation outrageusement large du point de vue de la plage d'applicabilité supposée de la formule de Maxwell Garnett. À la même époque, Gustav Mie était intéressé à expliquer le problème des couleurs claires en termes de diffusion électromagnétique [34].

Les analyses des propriétés effectives des mélanges sont devenues mieux définies et précises au début du XXe siècle. Otto Wiener a présenté [35] une théorie lucide de la constante de réfraction en 1910. Il a étendu, avec des raisonnements semi-heuristiques, le rapport Clausius dans la forme $(\varepsilon_r - 1)/(\varepsilon_r + u)$, et l'a largement utilisé pour de nouvelles prédictions de mélange. Le paramètre inclus u, Wiener l'a appelé le Formzahl, 'le coefficient de forme'. La valeur de formzahl peut être facilement connectée au facteur de dépolarisation de l'inclusion, et est, bien sûr, u = 2 pour les inclusions sphériques. Les règles de mélange pour la conductivité effective des mélanges, où des formes d'inclusions ellipsoïdales ont été autorisées, ont été dérivées légèrement plus tard par H.C. Burger [36].
D'autres scientifiques travaillant à l'homogénéisation de mélanges pendant ces périodes et auparavant incluaient E. Ketteler, T.H. Havelock et K. Lichtenecker. Une analyse rigoureuse conduisant à la formule de Lorenz-Lorentz a été fournie par le "théorème d'extinction" qui a été dérivé pour les milieux cristallins par P.P. Ewald [37] et pour les milieux isotropes par C.W. Oseen [38]. Ce "Ausloschungssatz" [39] permet aux dipôles du milieu de rayonner avec l'effet d'éteindre l'onde incidente et de la remplacer par une autre onde ayant une vitesse de propagation différente.
Une interprétation évidente de cet état de choses est que le continuum possède effectivement un autre indice de réfraction.
Un grand pas en avant dans les théories phénoménologiques de mélange a été pris dans les années 1930 lorsque de nombreuses études de Dirk Anton George Bruggeman ont été publiées (par exemple, [40]). Bruggeman a proposé de nouvelles approches de mélange qui ont conduit à mélanger des règles qualitativement différentes par rapport aux principes d'homogénéisation précédents. Aux Pays-Bas, des recherches très poussées sur les propriétés diélectriques et magnétiques des matériaux ont été menées dans les universités et les laboratoires de recherche de la société Philips avant et après la guerre [41]. C'était en rapport avec le travail de développement de ferrite avec des matériaux magnétiques pulvérisés, et en raison de l'analogie entre les problèmes de matériaux électriques et magnétiques.

En plus des descriptions électriques des solides et des gaz, des modèles pour le comportement diélectrique des liquides ont été suggérés. Peter Debye a publié des études sur le comportement des molécules polaires [42] dès 1912. Cependant, la méthode classique de Clausius-Mossotti pour calculer le champ local, censé exciter une molécule donnée, appliquée aux liquides dipolaires, n'a pas satisfait aux expériences. Lars Onsager en 1936 a affiné le calcul du champ d'excitation en ajoutant un «champ de réaction» [43] qui est en fait un effet du moment dipolaire permanent sur lui-même à travers la polarisation environnante. La théorie d'Onsager et ses développements ultérieurs par John Kirkwood sont en bon accord avec le comportement diélectrique observé de l'eau.
La monographie de Bottcher [44] passe en revue les principes de mélange utilisés jusqu'au milieu des années 1900. Depuis lors, la croissance explosive de l'importance de la science des matériaux a créé une énorme quantité de littérature traitant des problèmes d'homogénéisation au cours des dernières décennies.

Des études à l'état solide et plus tard des analyses sur des milieux désordonnés, nous ont fourni de nombreuses théories de milieu effectif qui peuvent être utilisées avec plus ou moins de succès pour prédire les propriétés macroscopiques des mélanges diélectriques. La signification technologique de divers colloïdes, cermets, émulsions photographiques, mousses, sols métalliques et autres suspensions, qui sont des matériaux avec des inclusions petites mais non microscopiques, a maintenu la recherche particulièrement forte dans le domaine des mélanges diélectriques. Il a été déclaré que, d'après les études de la science des colloïdes, des films discontinus minces et des centres de couleurs, une discipline totalement nouvelle s'est formée, la science des clusters.

1.7.2 Quelques modèles théoriques relatifs aux lois de mélange [45]

Les modèles théoriques que nous allons aborder dans ce paragraphe comportent uniquement deux phases et ils sont classés en trois groupes. En ce qui concerne le premier, il s'agit d'un groupe qui est basé sur le calcul de la constante diélectrique d'un composite en supposant que des sphères diélectriques sont dispersées dans une matrice continue. Ce groupe comprend: Rayleigh [46], Maxwell–Garnett [47], Lichtenecker [48], Sillars [48] et Furukawa [49]. Il est à noter qu'aucune interaction entre les constituants n'est prise en compte.

Quant au deuxième groupe, ce dernier envisage les interactions entre la charge et les particules voisines ainsi que le champ électrique appliqué. Ces modèles comprennent notamment Bruggeman [46], Maxwell– Garnett [47], Böttcher [50], Kerner [46], Looyenga [51], Paletto [46], Tinga [52], Bergman [53], Jayasundere [54] et Poon [55].

Les modèles du troisième groupe introduisent un facteur de dépolarisation, qui prend en considération la forme et l'orientation des inclusions. Les fonctions respectives sont Wiener [56], van Beek [57], Tinga [52], Bergman [53], Yamada [58], Yonezawa [46] et Rother [56].

Dans les équations présentées ci-dessous (1.14) à (1.38), υ est la fraction volumique et ε la constante diélectrique, les indices 1 et 2 représentent respectivement la matrice et la charge.

1.7.2.1 Le premier groupe des lois de mélange

Ces modèles ont été historiquement les premiers et ils considèrent généralement que les systèmes composites sont des inclusions sphériques qui sont incorporées dans une matrice polymère. En outre, ces modèles ne prennent en compte ni les interactions entre particules, ou particule et matrice, ni la taille des inclusions. En 1892, Rayleigh développa l'équation suivante pour une dispersion de sphères homogènes dans un milieu continuum [46].

$$\varepsilon = \frac{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2 - 2\upsilon_2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \upsilon_2(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)}\varepsilon_1 \tag{1.14}$$

On en déduit l'expression de Maxwell–Garnett, initialement proposée de manière approximative par Maxwell, pour la constante diélectrique d'un composite dans lequel des particules sphériques de tailles différentes sont immergées dans un milieu isotrope et homogène [47,53].

$$\varepsilon = \varepsilon_1\left[1 + \frac{3\nu_2\gamma}{1 - \nu_2\gamma}\right] \tag{1.15}$$

Où,

$$\gamma = \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon_1} \tag{1.16}$$

Dans le cas des inclusions diélectriques sphériques incrustées dans un milieu diélectrique isotrope, Lichtenecker et Sillars ont trouvé les équations suivantes, respectivement [48]

$$\ln(\varepsilon) = \nu_1 \ln(\varepsilon_1) + \nu_2 \ln(\varepsilon_2) \tag{1.17}$$

$$\varepsilon = \varepsilon_1 \left[1 + \frac{3\nu_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2}\right] \tag{1.18}$$

Éq. (1.18) a également été déduit par Landau et Lifshtiz [48]. Comme la constante diélectrique des charges est généralement beaucoup plus grande que celle du polymère, Furukawa et al. ont conclu que l'équation (1.14) (Rayleigh) pourrait être approchée à [49],

$$\varepsilon = \frac{1 + 2\nu_2}{1 - \nu_2}\varepsilon_1 \tag{1.19}$$

Lorsque $\varepsilon_2 \gg \varepsilon_1$

1.7.2.2 Le deuxième groupe des lois de mélange

Les équations de ce groupe ont également été développées pour prédire la constante diélectrique d'un composite dans lequel des inclusions sphériques sont noyées dans une matrice polymère. Ces modèles prennent en compte la polarisation des matériaux par un champ électrique appliqué, ainsi que les variations du champ local, les interactions avec ce champ et celles existant entre les particules de charge. Avec de faibles concentrations, les interactions entre les inclusions peuvent être négligées, mais deviennent pertinentes lorsque le contenu de la charge augmente. Lorsqu'un champ électrique est appliqué à un matériau composite, les particules diélectriques deviennent polarisées. En gros, chaque particule se comporte comme un dipôle électrique, créant son propre champ et modifiant le champ électrique de son environnement. Au fur et à mesure que le nombre de particules dans le composite augmente, les interactions entre chaque particule et ses voisines deviennent significatives et ne peuvent pas être ignorées [54]. En 1935, Bruggeman développa une expression symétrique pour les deux constituants, ce qui signifie que, si les fractions volumiques ne sont pas modifiées, la valeur de la constante diélectrique reste inchangée lorsque les phases 1 et 2 sont interchangées [46,53].

$$\nu_1 \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon}{\varepsilon_1 + (d-1)\varepsilon} + \nu_2 \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon}{\varepsilon_2 + (d-1)\varepsilon} = 0 \tag{1.20}$$

Où d est la dimensionnalité du système. Quelques années plus tard, Landauer a déduit cette même expression pour d = 3 [46]. Une variante de l'équation de Maxwell–Garnett (équation (1.15)) a été proposée, prenant en compte les interactions entre les inclusions [47],

$$\varepsilon = \varepsilon_1 \left[1 + \frac{3\nu_2\gamma}{1 - \nu_2\gamma - \frac{2}{3}\nu_2\gamma \ln\left(\frac{8+\gamma}{8-2\gamma}\right)}\right] \tag{1.21}$$

Ici, γ est défini dans Equation (1.16). En 1952, Böttcher a déduit une expression de la constante diélectrique d'un système composite dans lequel les interactions entre domaines sont considérées. L'expression est valide lorsqu'il n'y a pas de chemins continus de la phase 2 dans tout le matériau [50].

$$\frac{3\varepsilon}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon}\nu_1 + \frac{3\varepsilon}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon}\nu_2 = 1 \tag{1.22}$$

Kerner a développé une expression pour la constante diélectrique d'un composite en considérant le rapport des champs électriques moyens à l'intérieur de chaque phase, dans la direction du champ électrique externe, ce qui a conduit à l'expression suivante [46,54].

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_1(1-\nu_2) + \nu_2\varepsilon_2\xi}{(1-\nu_2) + \nu_2\xi} \tag{1.23}$$

où

$$\xi = \frac{3\varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \tag{1.24}$$

Looyenga a déduit l'équation suivante [51] en considérant une distribution presque aléatoire de particules sphériques dans un milieu et prenant en compte les interactions entre les sphères.

$$(\varepsilon)^{1/3} = (\varepsilon_1)^{1/3}\nu_1 + (\varepsilon_2)^{1/3}\nu_2 \tag{1.25}$$

Dans une procédure similaire mais avec une redéfinition du champ électrique à l'intérieur des inclusions, Paletto et al ont proposé l'expression suivante [46],

$$\varepsilon = \nu_2 \frac{(1-\nu_2)\varepsilon_1\gamma^2 + \nu_2\varepsilon_2}{[1+(1-\nu_2)(\gamma-1)]^2} + (1-\nu_2)\frac{(1-\nu_2)\varepsilon_1 + \nu_2\varepsilon_2\xi^2}{[(1-\nu_2)+\nu_2\xi]^2} \tag{1.26}$$

où

$$\gamma = \frac{3\varepsilon_2}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon_2} \tag{1.27}$$

et

$$\xi = \frac{3\varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \tag{1.28}$$

Tinga et al ont présenté une solution autocohérente pour la constante diélectrique des mélanges multiphases, en considérant les interactions de premier ordre entre inclusions de forme arbitraire. Dans le cas particulier d'un système binaire à inclusions sphériques [52], nous avons

$$\frac{\varepsilon - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} = \nu_2 \frac{3(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2 - \nu_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)} \tag{1.29}$$

La solution pour le cas particulier des charges ellipsoïdales est montrée plus loin dans Equation (1.36). Bergman a établi une équation pour la constante diélectrique d'un matériau composite dans un champ électrostatique, dans lequel des sphères de tailles différentes sont dispersées dans un milieu homogène [53].

$$\left(\frac{1}{d\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon - \varepsilon_1}\right)^{-1} = \nu_2\left(\frac{1}{d\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}\right)^{-1} \tag{1.30}$$

Où "d" est la dimensionnalité du système. En 1993, Jayasundere et Smith ont développé une expression pour la constante diélectrique des systèmes binaires à connectivité 0–3. Cette expression envisage les interactions entre des inclusions sphériques identiques dispersées de manière aléatoire dans un milieu diélectrique continu [54].

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_1\nu_1 + \varepsilon_2\gamma}{\nu_1 + \gamma} \tag{1.31}$$

où

$$\gamma = \frac{3\varepsilon_1\nu_2}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2}\left(1 + 3\nu_2\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2}\right) \tag{1.32}$$

Quelques années plus tard, Equation (1.18) a également été dérivé par Bhima Sankaram et al. [46]. En 2004, Poon et Shin ont déduit une équation pour la constante diélectrique d'un système binaire avec une connectivité de 0–3. Les sphères de la deuxième matière sont dispersées de manière homogène à travers le milieu et le champ qui agit sur chacune d'elles est la somme du champ externe et du champ dû à la polarisation de ses voisins [55].

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + \frac{\nu_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{\nu_2 + (1-\nu_2)\frac{\varepsilon_2 + 2\varepsilon_1 - \nu_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{3\varepsilon_1}} \tag{1.33}$$

Équation. (1.33) perd sa validité quand ε_1 est plus grand que ε_2.

1.7.2.3 Le troisième groupe des lois de mélange

Les modèles théoriques du troisième groupe prennent en compte les mêmes effets que ceux du deuxième groupe, mais ils vont plus loin en incluant des informations sur la forme et l'orientation relative des inclusions, qui sont considérées comme ellipsoïdes dans la plupart des cas. Cette information apparaît dans les équations sous la forme d'un facteur de dépolarisation, n, ou d'un paramètre de forme, n '. Le facteur de dépolarisation dépend de la longueur relative des axes principaux de l'ellipsoïde et de l'orientation du champ appliqué par rapport à la particule et il ne peut prendre que des valeurs positives [59–61]. Wiener a développé l'expression suivante [56],

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + n'} = \frac{\nu_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{\varepsilon_2 + n'} + \frac{(1-\nu_2)(\varepsilon_1 - 1)}{\varepsilon_1 + n'} \tag{1.34}$$

Où n' dépend de la forme des particules. Pour une dispersion de petites particules dans un milieu continu uniforme, van Beek a proposé une expression qui est une extension du travail développé par Sillars [57].

$$\varepsilon = \varepsilon_1 \frac{\varepsilon_1 + [n(1-\nu_2) + \nu_2](\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{\varepsilon_1 + n(1-\nu_2)(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)} \tag{1.35}$$

Pour le cas particulier d'un système binaire avec inclusions ellipsoïdales, Tinga et al. ont déduit l'expression suivante [52],

$$\frac{\varepsilon - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} = \nu_2 \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{\varepsilon_1 + n_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) - n_1\nu_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)} \tag{1.36}$$

En 1978, Bergman a dérivé une expression en calculant le champ électrique à l'intérieur et autour d'un ellipsoïde incorporé dans un milieu homogène, le champ appliqué étant déformé par l'inclusion [53].

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + \nu_2\varepsilon_2 \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_2 + n(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)} \tag{1.37}$$

Où n, est le facteur de dépolarisation dans la direction du champ appliqué.

Pour une dispersion aléatoire de particules ellipsoïdales dans une matrice de continuum, Yamada et al. ont déduit l'expression suivante, où n', est un paramètre de forme attribué à celle des particules [58],

$$\varepsilon = \varepsilon_1 \left[1 + \frac{n'\nu_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{n'\varepsilon_1 + (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)(1-\nu_2)}\right] \tag{1.38}$$

Yonezawa et Cohen ont présenté une expression de la constante diélectrique d'un système composite dilué [37],

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + n'} = \sum \nu_i \frac{\varepsilon_i - 1}{\varepsilon_i + n'} \tag{1.39}$$

Où i, est le nombre de phases du composite et n 'dépend de la géométrie des particules. L'équation suivante a été développée par Rother–Lichtenecker, incluant le paramètre de forme n′ [46].

$$\ln(\varepsilon) = \ln(\varepsilon_1) + \nu_2(1 - n') \ln\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}\right) \tag{1.40}$$

1.7.3 Le concept du milieu effectif [62]

Les lois de mélange diélectrique sont des formules algébriques avec lesquelles la permittivité effective du mélange peut être calculée en fonction des permittivités des constituants, de leurs fractions volumiques et éventuellement de quelques autres paramètres caractérisant la microstructure du mélange. Le mélange peut être discret, ce qui signifie que des inclusions homogènes sont incorporées dans un autre milieu homogène, ou alors la fonction de permittivité peut être continue. L'utilisation du concept de permittivité effective, ou macroscopique, implique que le mélange réagisse à l'excitation électromagnétique comme s'il était homogène.
Cette vision de l'homogénéisation des milieux hétérogènes n'est évidemment pas exacte, car l'utilisation des ondes électromagnétiques de fréquence de plus en plus haute a toujours permis de voir avec plus de précision le milieu, et examiner ses détails structurels. Par conséquent, une quantité telle que la permittivité effective n'a de sens que dans la limite de longueur d'onde longue. Cette limite correspond aux basses fréquences. En effet, les lois de mélange sont très souvent dérivées par le biais des arguments statiques ou quasi-statiques. La taille des inclusions dans le mélange et la longueur de corrélation spatiale de la fonction de permittivité doivent être petites par rapport à la longueur d'onde.

La permittivité effective peut être complexe, "eff", où les parties réelle et imaginaire sont certaines moyennes de celles des matériaux composant. Dans une certaine mesure, la validité de la permittivité effective peut être généralisée pour inclure les effets de diffusion du premier ordre des inclusions. La diffusion entraînant des pertes, son effet contribue à la partie imaginaire de la permittivité effective, que l'on peut estimer en calculant l'énergie rayonnante par les dipôles électriques qui sont à leur tour induits par les inhomogénéités du mélange. D'autre part, bien que le caractère basse-fréquence de la description du milieu effectif limite les théories du mélange, ces modèles peuvent être étendus aux matériaux magnétiques, anisotropes et même magnétoélectriques.

1.7.4 Approche quasi-statique et principes d'homogénéisation [62]

Lorsque la taille de l'inclusion diélectrique exposée à un champ électromagnétique est petite, on peut supposer en toute sécurité que son champ interne momentané est le même que dans le problème de l'excitation statique. L'inclusion crée une perturbation du champ qui, au niveau le plus bas, est celle d'un dipôle électrique. La polarisabilité de l'inclusion peut être énumérée en résolvant l'équation de Laplace pour le champ à l'intérieur du diffuseur, autrement dit en négligeant les processus d'ondes dynamiques. Il n'est pas facile de donner une limite de fréquence supérieure exacte pour la validité du concept de permittivité effective car la réponse exacte d'un milieu hétérogène au hasard est au-delà de l'analyse. Toutefois, la règle empirique suivante est souvent utilisée: la taille d'une inclusion dans le mélange ne doit pas dépasser le dixième de la longueur d'onde du milieu effectif. En fait, ce critère est une estimation du côté conservateur. Une fois que les polarisabilités des inclusions composant le mélange sont connues, leur interaction au sein du

milieu doit être prise en compte. Si la densité des inclusions est élevée, il est important d'analyser la manière dont les moments dipolaires «se communiquent». Un autre problème auquel on doit faire face dans la théorie des mélanges diélectriques est le fait qu'il n'est pas du tout évident de savoir comment énumérer le «réel» champ d'excitation pour un diffuseur donné dans un mélange dense et aléatoire. Ces questions sont en fait discutées dans la littérature électromagnétique actuelle. Différentes solutions à ces problèmes conduisent à des lois de mélange différentes qui s'appliquent aujourd'hui à divers problèmes, non seulement en télédétection, en aquamétrie à micro-ondes et en technologie souterraine, mais également en science des matériaux, par exemple pour la conception de nouveaux matériaux composites. La première histoire des lois de mélange diélectrique remonte au milieu du XIXe siècle [24] et il y a cent ans, les formules de mélange diélectrique étaient plus ou moins actuelles [63]. Des noms célèbres comme Clausius, Mossotti, Maxwell, L.V. Lorenz, H.A. Lorentz, Rayleigh et Garnett sont associés aux propriétés diélectriques et optiques des matériaux.

Plus tard au cours du dernier siècle, lorsque les résultats expérimentaux sur les propriétés diélectriques des matériaux ont commencé à s'accumuler, les effets de forme dans la microstructure du mélange dans les modèles théoriques ont fait l'objet d'une attention particulière. Le fait que différentes lois de mélange prédisent des résultats différents pour le même mélange est une autre direction de la recherche. Cela a forcé les chercheurs à rechercher des limites supérieures et inférieures pour la permittivité effective d'un mélange donné. C'est là que le travail pionnier de Hashin et Shtrikman [64] constitue la référence de base. Pour un aperçu de l'évolution des mélanges au cours du siècle, voir Landauer [65] et Sihvola [66]. La recherche actuelle sur les formules de mélange se concentre beaucoup sur les mélanges de matériaux complexes, par exemple les milieux bi-anisotropes et non linéaires (voir, par exemple, [67,68]).

1.7.5 Mélanges de base et formule Maxwell Garnett [62]

Cette section présente le principe de base permettant de dériver la formule de mélange la plus simple, appelée lois de Maxwell Garnett. Le mélange à analyser est constitué d'un milieu de fond dans lequel des inclusions sphériques sont dispersées conformément à la figure 1.8 Les deux composants constituant le mélange sont souvent appelés phases. La phase du milieu peut également être appelée matrice ou hôte tandis que celle d'inclusion est connue en tant qu'invité.

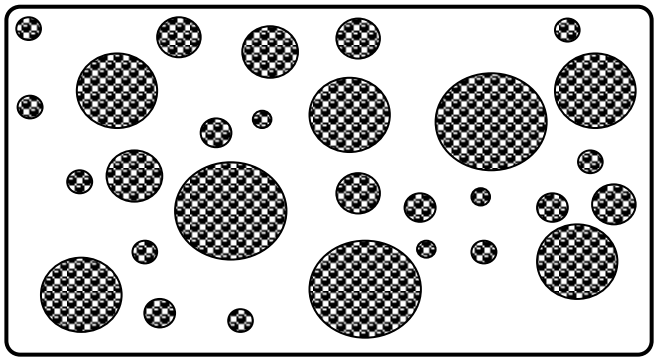


Figure1.8 un mélange simple: inclusions sphériques dans un milieu homogène

1.7.5.1 Polarisation d'une sphère diélectrique

La polarisabilité d'une inclusion est une mesure de sa réponse à un champ électrique incident. La polarisabilité d'une particule α est la relation entre le moment dipolaire $\vec{\mathrm{p}}$ induit dans l'inclusion par la polarisation et le champ électrique externe$\vec{E}_e$:

$$\vec{\mathrm{p}} = \alpha\vec{E}_e \tag{1.41}$$

Pour le cas d'une sphère, le calcul de sa polarisabilité est facile. Elle est proportionnelle au champ interne de l'inclusion, à son volume et au contraste diélectrique entre l'inclusion et le milieu. Compte tenu que le champ électrique Ei induit dans une sphère soumis à un champ externe E_e uniforme et statique est également uniforme, statique et parallèle au champ externe [69, section 4.4] donc on a,

$$\vec{E}_i = \frac{3\varepsilon_e}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_e}\vec{E}_e \tag{1.42}$$

La polarisabilité peut être écrite immédiatement:

$$\alpha = V(\varepsilon_i - \varepsilon_e)\frac{3\varepsilon_e}{\varepsilon_i - 2\varepsilon_e} \tag{1.43}$$

Où les permittivités de l'inclusion et de son milieu sont désignées par ε_i et ε_e, respectivement. Le volume de la sphère est V. Notez que la polarisabilité est une quantité scalaire. En effet, le matériau d'inclusion est isotrope et sa forme est sphérique symétrique.

1.7.5.2 Formule de Clausius – Mossotti

Maintenant que la polarisabilité d'une seule sphère est connue, la permittivité effective d'un mélange peut être calculée en fonction de la densité de nombre des sphères dans le milieu de fond avec la permittivité ε_e. La permittivité effective est la relation entre le champ externe et la densité de flux électrique moyenne $\langle\vec{D}\rangle$:

$$\langle\vec{\mathrm{D}}\rangle = \varepsilon_{\mathrm{eff}}\vec{\mathrm{E}}_{\mathrm{e}} = \varepsilon_{\mathrm{e}}\vec{\mathrm{E}}_{\mathrm{e}} + \langle\vec{\mathrm{P}}\rangle \tag{1.44}$$

Où la polarisation moyenne $\langle\mathrm{P}\rangle$ est liée à la densité de moment dipolaire dans le mélange:

$$\langle\vec{P}\rangle = n\vec{\mathrm{p}} \tag{1.45}$$

n est la densité de nombre des moments dipolaires $\vec{p}$ dans le mélange.
Dans un mélange, surtout quand il est dense, on ne peut pas supposer que le champ excitant une inclusion est le champ externe $\vec{E}_e$. La polarisation environnante augmente l'effet de champ et doit être prise en compte [70]. Le champ qui excite une inclusion $\vec{E}_L$ est souvent appelé champ local ou champ Lorentzien. Cela dépend de la forme de l'inclusion [71], et pour une sphère c'est

$$\vec{\mathrm{E}}_L = \vec{\mathrm{E}}_e + \frac{1}{3\varepsilon_e}\vec{\mathrm{P}} \tag{1.46}$$

Où 1/3 est le facteur de dépolarisation de la sphère. La combinaison de cette équation avec $\mathrm{P} = \alpha\mathrm{E}_L$ nous laisse avec la polarisation moyenne, puis la permittivité effective peut être écrite (voir équation (1.44)):

$$\varepsilon_{\mathrm{eff}} = \varepsilon_{\mathrm{e}} + \frac{\mathrm{n}\alpha}{1 - \mathrm{n}\alpha/(3\varepsilon_{\mathrm{e}})} \tag{1.47}$$

L'équation peut souvent être vue sous la forme suivante:

$$\frac{\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_{\text{e}}}{\varepsilon_{\text{eff}} - 2\varepsilon_{\text{e}}} = \frac{n\alpha}{3\varepsilon_{\text{e}}} \tag{1.48}$$

Cette relation porte le nom de la formule Clausius – Mossotti, bien qu'elle mérite également l'appellation de la formule de Lorenz – Lorentz [72]. L'approximation du mélange dilué peut être écrite en prenant n<<1:

$$\varepsilon_{\text{eff}} \approx \varepsilon_{\text{e}} + n\alpha \tag{1.49}$$

1.7.5.3 Loi de mélange de Maxwell Garnett

Dans les applications pratiques, les quantités telles que les polarisabilités et les densités de diffuseur ne sont pas toujours les plus pratiques à utiliser. On préfère plutôt jouer avec les permittivités des composants du mélange. Dans ce cas, il est avantageux de combiner la formule de Clausius – Mossotti avec l'expression de polarisabilité (1.43). Ensuite, nous pouvons écrire

$$\frac{\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_{\text{e}}}{\varepsilon_{\text{eff}} + 2\varepsilon_{\text{e}}} = f\frac{\varepsilon_i - \varepsilon_e}{\varepsilon_i - 2\varepsilon_e} \tag{1.50}$$

où $f = nV$ est, une quantité sans dimension, la fraction volumique des inclusions dans le mélange. Cette formule s'appelle la formule de mélange de Rayleigh. Notez que, dans la mesure où seules la fraction de volume et les permittivités apparaissent dans la loi de mélange, les sphères n'ont pas besoin d'être de la même taille si seulement elles sont toutes petites par rapport à la longueur d'onde. La loi de mélange la plus courante est peut-être la formule de Maxwell Garnett, qui est la loi de Rayleigh (1.50) écrite explicitement pour la permittivité effective:

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_e + 3f\varepsilon_e\frac{\varepsilon_i - \varepsilon_e}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_e - f(\varepsilon_i - \varepsilon_e)} \tag{1.51}$$

Cette formule est largement utilisée dans des domaines d'application très divers. La beauté de la formule Maxwell Garnett réside dans son apparence simple, associée à sa large applicabilité. Elle satisfait aux processus limitant la phase d'inclusion qui s'annule

$$f \to 0 \Rightarrow \varepsilon_{\text{eff}} \to \varepsilon_e \tag{1.52}$$

$$f \to 1 \Rightarrow \varepsilon_{\text{eff}} \to \varepsilon_i \tag{1.53}$$

L'expansion des perturbations de la loi de Maxwell Garnett donne l'équation de mélange pour les mélanges dilués ($f = 1$):

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_e + 3f\varepsilon_e\frac{\varepsilon_i - \varepsilon_e}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_e} \tag{1.54}$$

1.7.6 Principes de mélange avancés [62]

Le traitement de base d'un mélange en tant que milieu effectif dans la section ci-dessus était le modèle le plus idéalisé que l'on puisse imaginer: un mélange à deux phases avec des composants diélectriques isotropes et la géométrie d'inclusion était sphérique. Il existe dans le monde réel des "matériaux" qui suivent assez bien ce modèle, par exemple les nuages, le brouillard ou même une pluie légère. Le brouillard est formé de gouttelettes d'eau dans l'air qui sont certainement sphériques et le mélange est très dilué. Tant que les effets de diffusion peuvent être négligés, l'atténuation et les retards de phase dans les problèmes de propagation des ondes radioélectriques

dans les brouillards et les nuages peuvent être analysés avec une grande précision grâce aux principes de Maxwell Garnett.
Mais la plupart des classes de milieux géophysiques rencontrées dans les applications de télédétection n'obéissent pas aux hypothèses du mélange de base de Maxwell Garnett. Par conséquent, sa généralisation dans des hétérogénéités plus complexes est nécessaire. C'est l'objectif de la présente section.

1.7.6.1 Mélanges multiphases

La neige mouillée, par exemple, est un mélange de trois phases: air, glace et eau liquide. Comment utiliser l'analyse précédente pour la neige? Pour écrire la loi de mélange pour les mélanges contenant plusieurs composants, nous devons choisir l'un des composants comme hôte et ensuite traiter l'effet de polarisation de toutes les phases invité séparément. L'analyse en deux phases précédente peut être suivie de très près. Lorsque la polarisation au-dessus de la polarisation totale a été calculée à partir des moments dipôles individuels selon (1.45), chaque phase d'invité contribue maintenant à l'un de ces termes. Le résultat final est (comparer (1.50))

$$\frac{\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_{\text{e}}}{\varepsilon_{\text{eff}} + 2\varepsilon_{\text{e}}} = \sum_{n=1}^{N} f_n \frac{\varepsilon_{i,n} - \varepsilon_{\text{e}}}{\varepsilon_{i,n} + 2\varepsilon_{\text{e}}} \tag{1.55}$$

Où f_{n} est la fraction volumique des inclusions de la nième phase du mélange et $\varepsilon_{i,n}$ est sa permittivité, cela peut être résolu ainsi:

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_{\text{e}} + 3\varepsilon_{\text{e}} \frac{\sum_{n=1}^{N} f_n \frac{\varepsilon_{i,n} - \varepsilon_{\text{e}}}{\varepsilon_{i,n} - 2\varepsilon_{\text{e}}}}{1 - \sum_{n=1}^{N} f_n \frac{\varepsilon_{i,n} - \varepsilon_{\text{e}}}{\varepsilon_{i,n} - 2\varepsilon_{\text{e}}}} \tag{1.56}$$

Là encore, toutes les inclusions de toutes les phases ont été supposées sphériques.

1.7.6.2 Effets de forme des inclusions

L'hypothèse d'une forme sphérique pour les inclusions doit être relâchée car de nombreux milieux naturels possèdent des inclusions d'autres formes. La polarisabilité de petites particules peut bien sûr être calculée pour n'importe quelle forme, mais en général, cela nécessite un effort numérique. Les ellipsoïdes sont les seules formes pour lesquelles des solutions analytiques simples peuvent être trouvées. Heureusement, les ellipsoïdes permettent de nombreux cas particuliers pratiques, comme les disques et les aiguilles.

1.7.6.2.1 Facteurs de dépolarisation

Les paramètres importants dans la géométrie d'un ellipsoïde sont ses facteurs de dépolarisation. Si les demi-axes d'un ellipsoïde dans les trois directions orthogonales sont ax, ay et az, le facteur de dépolarisation Nx (le facteur dans la direction a_x) est égal à

$$N_x = \frac{a_x a_y a_z}{2} \int_0^{\infty} \frac{ds}{(s + a_x^2)\sqrt{(s + a_x^2)(s + a_y^2)(s + a_z^2)}} \tag{1.57}$$

Pour l'autre facteur de dépolarisation $N_y(N_z)$, il suffit d'échanger a_y et a_x (a_z et a_x) dans l'intégrale ci-dessus.
Les trois facteurs de dépolarisation pour tout ellipsoïde satisfont

$$N_x + N_y + N_z = 1 \tag{1.58}$$

Une sphère a trois facteurs de dépolarisation égaux de 1/3. Les deux autres cas spéciaux sont un disque (facteurs de dépolarisation 1,0,0) et une aiguille (0, 1/2, 1/2). Pour les ellipsoïdes de révolution, les ellipsoïdes prolatés et oblats, on peut trouver des expressions de forme fermée pour l'intégrale (1.57) [73]. Les sphéroïdes de Prolate (ax> ay = az) ont

$$N_x = \frac{1-e^2}{2e^3}\left(\ln\frac{1+e}{1-e} - 2e\right) \tag{1.59}$$

et

$$N_y = N_z = \frac{1}{2}(1 - N_x) \tag{1.60}$$

Où l'excentricité est $e = \sqrt{1 - a_y^2/a_x^2}$. Pour les sphéroïdes prolates presque sphériques, qui ont une petite excentricité, ce qui suit est valable:

$$N_x \cong \frac{1}{3} - \frac{2}{15}e^2 \tag{1.61}$$

$$N_y = N_z \cong \frac{1}{3} + \frac{1}{15}e^2 \tag{1.62}$$

Pour les sphéroïdes oblates (a_x=a_y>a_z),

$$N_z = \frac{1+e^2}{e^3}(e - \operatorname{arctg} e) \tag{1.63}$$

$$N_x = N_y = \frac{1}{2}(1 - N_z) \tag{1.64}$$

Où

$$e = \sqrt{\frac{a_x^2}{a_z^2} - 1}$$

Pour sphéroïdes oblates presque sphériques,

$$N_z \cong \frac{1}{3} + \frac{2}{15}e^2 \tag{1.65}$$

$$N_x = N_y \cong \frac{1}{3} - \frac{1}{15}e^2 \tag{1.66}$$

Pour un ellipsoïde général à trois axes différents, les facteurs de dépolarisation doivent être calculés à partir de l'intégrale (1.57). Osborn et Stoner ont totalisé les facteurs de dépolarisation d'un ellipsoïde général [74,75].

1.7.6.2.2 Mélange aligné

Considérons maintenant un mélange dans lequel des ellipsoïdes de permittivité ε_i sont noyés dans le milieu ε_e. Supposant que tous les ellipsoïdes sont alignés. La permittivité effective du mélange est

alors anisotrope, c'est-à-dire qu'elle a différentes composantes de permittivité dans les différentes directions principales. La formule Maxwell Garnett pour ce mélange est

$$\varepsilon_{\text{eff,x}} = \varepsilon_e + f\varepsilon_e \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_e}{\varepsilon_e + (1-f)N_x(\varepsilon_i - \varepsilon_e)} \tag{1.67}$$

et pour obtenir $\varepsilon_{\text{eff,y}}$ et $\varepsilon_{\text{eff,z}}$, il suffit de remplacer N_x par N_y et N_z, respectivement.

1.7.6.2.3 Mélange aléatoire

Si, en revanche, tous les ellipsoïdes du mélange sont orientés de manière aléatoire, il n'y a plus de direction préférée macroscopiquement. Le mélange est isotrope et la permittivité effective ε_{eff} est un scalaire:

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_{\text{e}} + \varepsilon_{\text{e}} \frac{\frac{f}{3}\sum_{j=x,y,z} \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_{\text{e}}}{\varepsilon_e + N_j(\varepsilon_i - \varepsilon_e)}}{1 - \frac{f}{3}\sum_{j=x,y,z} \frac{N_j(\varepsilon_i - \varepsilon_e)}{\varepsilon_e + N_j(\varepsilon_i - \varepsilon_e)}} \tag{1.68}$$

Enfin, si les inclusions ne sont ni alignées ni orientées de manière aléatoire, mais suivent plutôt une distribution d'orientation, les sommes de (1.68) doivent être remplacées par des termes dans lesquels les densités des moments dipolaires sont pondérées par la fonction de distribution et intégrées dans toutes les directions spatiales pertinentes.

1.7.6.3 Sous-structure d'inclusion

Jusqu'à présent, l'analyse a été limitée à des mélanges discrets. Les inclusions sont supposées être, du point de vue diélectrique, homogènes. Le problème des formes non homogènes est encore une fois la difficulté de calculer la polarisabilité de telles inclusions. Il existe cependant certaines formes pour lesquelles une solution analytique peut être trouvée dans le problème électrostatique. Une sphère en couches est un exemple d'un tel cas particulier. Il n'y a pas de restriction pour le nombre de couches, et même le cas d'un profil de permittivité radialement continu de la sphère a été corrigé [76]. A titre d'exemple, voici la généralisation de la règle de mélange (1.50) pour le cas où les inclusions sont des sphères à deux composants:

$$\frac{\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_{\text{e}}}{\varepsilon_{\text{eff}} + 2\varepsilon_{\text{e}}} = f\frac{(\varepsilon_l - \varepsilon_e)(\varepsilon_c + 2\varepsilon_l) + w(\varepsilon_c - \varepsilon_l)(\varepsilon_e + 2\varepsilon_l)}{(\varepsilon_l + 2\varepsilon_e)(\varepsilon_c + 2\varepsilon_l) + w(\varepsilon_c - \varepsilon_l)(\varepsilon_l - \varepsilon_e)} \tag{1.69}$$

La sphère d'inclusion est constituée d'un noyau sphérique de permittivité ε_c qui est recouvert d'une coque sphérique de permittivité ε_l. Le paramètre $w = (b/a)^3$ est la fraction du volume du noyau du volume total des inclusions ("a" est le rayon de l'inclusion et "b" est le rayon du noyau) et "*f*" est la fraction volumique des inclusions dans le mélange.

1.7.7 Modèles de mélange généralisés [62]

Il n'y a pas de résultat exact pour la permittivité effective d'un mélange à géométrie aléatoire. Dans l'analyse de supports aléatoires, le problème est de savoir comment prendre en compte correctement l'interaction entre les diffuseurs. Pour les mélanges clairsemés, ces effets d'interaction sont faibles et peuvent être inclus en entourant l'inclusion de la polarisation moyenne $\langle P \rangle$, comme cela a été fait dans la dérivation ci-dessus de la loi de Maxwell Garnett. Cependant, lorsque des mélanges denses sont traités, cette approche peut ne pas être correcte. Dans la présente section, des règles de mélange sont présentées pour des mélanges qui prévoient des résultats différents par rapport à la loi de Maxwell Garnett.

1.7.7.1 Formule Polder – Van Santen

La loi de mélange importante qui, dans la communauté de la télédétection, porte le nom de formule Polder–van Santen [77] mérite une attention particulière. Dans les recherches théoriques en électromagnétique, cette formule est appelée formule de Bruggeman [78], et le nom formule de Böttcher [44] peut également être trouvé dans la littérature.
La forme de base de cette formule pour les formes sphériques est

$$(1-f)\frac{\varepsilon_e-\varepsilon_{\text{eff}}}{\varepsilon_e+2\varepsilon_{\text{eff}}}+f\frac{\varepsilon_i-\varepsilon_{\text{eff}}}{\varepsilon_i+2\varepsilon_{\text{eff}}}=0 \tag{1.70}$$

Cette formule de loi de Polder – van Santen a la propriété particulière de traiter les inclusions et le milieu de manière symétrique. En fait, il n'y a pas de différence entre les deux phases. L'interprétation de l'équation (1.70) est que la formule équilibre les deux composants du mélange par rapport au milieu effectif inconnu, en utilisant la fraction volumique de chaque composant comme poids (f pour les inclusions et (1-f) pour le milieu). Cette propriété de symétrie indiquée par (1.70) établit une distinction radicale entre la loi de Maxwell Garnett et celle de Polder – van Santen. L'approche de Maxwell Garnett est intrinsèquement non symétrique. La formule de Polder – van Santen pour le cas où les inclusions sont des ellipsoïdes à orientation aléatoire est

$$\varepsilon_{\text{eff}}=\varepsilon_e+\frac{f}{3}(\varepsilon_i-\varepsilon_e)\sum_{j=x,y,z}\frac{\varepsilon_{\text{eff}}}{\varepsilon_{\text{eff}}+N_j(\varepsilon_i-\varepsilon_{\text{eff}})} \tag{1.71}$$

Où N_j sont encore les facteurs de dépolarisation des ellipsoïdes d'inclusion dans les trois directions orthogonales.

1.7.7.2 Formule du potentiel cohérent

Une autre formule bien connue qui est pertinente dans les études théoriques de la propagation des ondes dans des milieux aléatoires est la formule dite du potentiel cohérent [79, p. 475]:

$$\varepsilon_{\text{eff}}=\varepsilon_e+\frac{f}{3}(\varepsilon_i-\varepsilon_e)\sum_{j=x,y,z}\frac{(1-N_j)\varepsilon_{\text{eff}}-N_j\varepsilon_e}{\varepsilon_{\text{eff}}+N_j(\varepsilon_i-\varepsilon_{\text{eff}})} \tag{1.72}$$

Cette formule pour les inclusions sphériques est

$$\varepsilon_{\text{eff}}=\varepsilon_e+f(\varepsilon_i-\varepsilon_e)\frac{3\varepsilon_{\text{eff}}}{3\varepsilon_{\text{eff}}+(1-f)(\varepsilon_i-\varepsilon_e)} \tag{1.73}$$

Il est à noter que pour les mélanges dilués (f <<1), les trois règles de mélange, Maxwell Garnett, Polder – van Santen et potentiel cohérent, prévoient les mêmes résultats. Jusqu'au premier ordre en f, les formules sont les mêmes et peuvent être rapprochées à l'expression suivante :

$$\varepsilon_{\text{eff}}\cong\varepsilon_e+3f\varepsilon_e\frac{\varepsilon_i-\varepsilon_e}{\varepsilon_i+2\varepsilon_e} \tag{1.74}$$

1.7.7.3 Formule de mélange unifiée

Une approche de mélange unifié [80] rassemble tous les aspects précédents des lois de mélange diélectrique en une seule famille. Pour le cas des inclusions sphériques isotropes ε_i et un milieu isotrope ε_e, la formule est donnée par:

$$\frac{\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_e}{\varepsilon_{\text{eff}} + 2\varepsilon_{\text{e}} + \nu(\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_{\text{e}})} = f\frac{\varepsilon_{\text{i}} - \varepsilon_e}{\varepsilon_{\text{i}} + 2\varepsilon_{\text{e}} + \nu(\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_{\text{e}})} \tag{1.75}$$

Cette formule contient un paramètre sans dimension " ν". Les lois de mélange précédentes sont récupérées pour les différents choix de ν: ν=0 donne la loi de Maxwell Garnett, ν=2 donne la formule de Polder – van Santen et ν=3 donne l'approximation du potentiel cohérent.

1.7.7.4 Autres modèles de mélange

Dans les applications pratiques de télédétection et les théories sur les supports aléatoires, un très grand nombre d'autres lois de mélange sont utilisées. Parmi celles-ci, mentionnons les suivants. Une classe de modèles de mélange largement utilisée est constituée par les approximations de la «loi de puissance»:

$$\varepsilon_{\text{eff}}^{a} = f\varepsilon_i^a + (1-f)\varepsilon_e^a \tag{1.76}$$

Par exemple, dans la formule de Birchak [81], le paramètre a=1/2, ce qui signifie que les racines carrées des permittivités des composants s'additionnent à la racine carrée de la permittivité du mélange. Une autre formule connue est celle de Looyenga [82] pour laquelle a= 1/3. On peut également trouver dans la littérature (voir par exemple [83, p. 1080]) la loi linéaire

$$\varepsilon_{\text{eff}} = f\varepsilon_i + (1-f)\varepsilon_e \tag{1.77}$$

Ce qui correspond à a=1 dans (1.76). Cette loi de mélange peut avoir une configuration théorique si le mélange est formé de plaques ou d'autres inclusions pour lesquelles aucune dépolarisation n'est induite. Si le facteur de dépolarisation est Nx=0, on peut récupérer la formule (1.77) de (1.57). D'autres modèles résultant d'une analyse différentielle sont:

$$\frac{\varepsilon_i - \varepsilon_{\text{eff}}}{\varepsilon_i - \varepsilon_e} = (1-f)\left(\frac{\varepsilon_{\text{eff}}}{\varepsilon_e}\right)^{1/3} \tag{1.78}$$

et son «complément» [84]

$$\frac{\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_e}{\varepsilon_i - \varepsilon_e} = f\left(\frac{\varepsilon_{\text{eff}}}{\varepsilon_i}\right)^{1/3} \tag{1.79}$$

Qui ont en commun le tiers des puissances.

Il existe également des formules pour les mélanges avec des inclusions sphériques dans un tableau cubique dans une matrice d'arrière-plan. Ces formules peuvent être considérées comme des améliorations successives du résultat classique de Rayleigh, Equation (1.50). Celles-ci ont été présentées par Runge [85], Meredith et Tobias [86], McPhedran, McKenzie et Derrick [87,88], Doyle [89] et par Lam [90]. Cependant, ces formules sont dérivées pour des mélanges ordonnés, bien que toutes ne soient pas nécessairement pour des réseaux cubiques centrés, et du point de vue de l'application à un support aléatoire, elles présentent l'inconvénient de prédire des permittivités effectives infinies lorsque les inclusions entrent en contact les unes avec les autres.

1.7.8 Modélisation, du comportement des matériaux binaires, proposée par Bottreau [91]

Bottreau a proposé une loi de modélisation simple qui peut traduire le comportement diélectrique des matériaux composites. Ou la permittivité diélectrique d'un binaire peut se traduire par [92]:

$$\left[\left(\frac{V_2}{V_i}\right)^{\alpha} + \left(\frac{V_1}{1-V_i}\right)^{\alpha}\right] Ln(\varepsilon) = \left(\frac{V_2}{V_i}\right)^{\alpha} Ln(\varepsilon_2) + \left(\frac{V_1}{1-V_i}\right)^{\alpha} Ln(\varepsilon_1) \tag{1.80}$$

Ou "1",et "2" sont des indices qui représentent respectivement la matrice hôte et la charge, v_i est la fraction volumique des charges pour laquelle la relation $\varepsilon = (\varepsilon_1\varepsilon_2)^{1/2}$ est vérifiée, la dynamique de la variation du logarithme de la permittivité normalisée ,en ce point, est déterminée par α, la permittivité normalisée étant donné par [92]

$$Ln(\varepsilon_N) = \frac{2Ln(\varepsilon) - Ln(\varepsilon_1\varepsilon_2)}{Ln\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}\right)} \tag{1.81}$$

Cette relation peut être développée ainsi

$$Ln(\varepsilon) = \frac{\left(\frac{V_2}{V_i}\right)^{\alpha}}{\left[\left(\frac{V_2}{V_i}\right)^{\alpha} + \left(\frac{V_1}{1-V_i}\right)^{\alpha}\right]} Ln(\varepsilon_2) + \frac{\left(\frac{V_1}{1-V_i}\right)^{\alpha}}{\left[\left(\frac{V_2}{V_i}\right)^{\alpha} + \left(\frac{V_1}{1-V_i}\right)^{\alpha}\right]} Ln(\varepsilon_1) \tag{1.82}$$

Par l'utilisation de la variable normalisée qui est donnée par

$$V_N = \frac{V_2(1-V_i)}{V_1V_i} \tag{1.83}$$

$$Ln(\varepsilon) = \frac{(V_N)^{\alpha}}{[1+(V_N)^{\alpha}]} Ln(\varepsilon_2) + \frac{1}{[1+(V_N)^{\alpha}]} Ln(\varepsilon_1) = p_2 Ln(\varepsilon_2) + p_1 Ln(\varepsilon_1) \tag{1.84}$$

Ou $p_1 + p_2 = 1$ et $V_1 + V_2 = 1$, d'après les propriétés des logarithmes, une loi qui s'applique aussi à une caractéristique physique donnée ainsi que son inverse.
Botreau a même reconnu la loi de probabilité des corps mixtes telle que l'a définie K. Lichtenecker [93] qui écrivait en 1929 [94] par la citation suivante:
«*j'ai montré ailleurs [3] que la théorie des corps mixtes, qui découle des équations phénoménologiques, se ramène à des problèmes de statiques, c'est-à-dire de probabilités…*» puis quelques lignes plus loin *«Si le phénomène que nous voulons décrire par la théorie des corps mixtes repose seul, dans toutes sa généralité, sur les probabilités isolés de processus élémentaire, ainsi que nous devons nous y attendre pour les corps composés…. il vient immédiatement la loi logarithmique des mélanges:* $x = x_1^{p1}x_2^{p2}$*, la valeur spécifique des deux parties constitutives* x_1 *et* x_2 *donne alors une mesure qui s'applique à tout l'espace. Concernant la probabilité individuelle de l'événement élémentaire pour l'une des deux parties constitutives de sorte que la probabilité totale, en tant que produit des probabilités élémentaires dépendra en général seulement de la fréquence relative des deux constituants à l'intérieur de tout l'espace…*»

Bottreau ne s'est contenté pas seulement de mentionner ce passage, mais il disait que loi de modélisation proposée par lui-même confirme cet énoncé, et fait nouveau déduire les probabilités p_l et p_2, ce qui reste le problème fondamental.
D'après Bottreau, lorsque le contraste diélectrique entre les constituants est relativement faible, le comportement de matériaux se traduit par un cas particulier ou $p_1=V_1$, $p_2=V_2$, qui est, en fait, la loi de Lichtenecker.

Du point de vue statique, la partie réelle et imaginaire doivent être considéré comme indépendantes, c'est pour cette raison que ε′ et ε"obéissent à un même type de loi de modélisation.
Enfin, Bottreau a noté que pour $V_2=V_i$ c'est-à-dire $V_N=1$, il obtient $p_1=p_2=1/2$, donc une mesure donnera $\varepsilon = (\varepsilon_1\varepsilon_2)^{1/2}$ dans le cas ou la probabilité des événements 1 et 2 est identique.

K. Lichtenecker a appliqué cette loi à de nombreux domaine de la physique [93-100], et de la même manière Bottreau a tenté de chercher sa corrélation avec les différentes lois généralement utilisées en les regroupant sous le terme de "lois de milieu effectif'.

1.7.9 Corrélation avec les lois de Wiener [101].

Bottreau a essayé d'appliquer sa modélisation aux lois de Wiener en suivant la démarche de Lichtenecker. Par analogie avec les circuits électriques. Il a considéré que les lois de Wiener, sont de trois types qui correspondent à des montages séries, parallèles et mixtes. Les deux premières sont les limites qui doivent généralement inclure le comportement d'un système complexe. Elles sont appelés respectivement Wiener directe (WD), Wiener inverse (WI) et Wiener mixte (WM).

1.7.9.1 Loi de WIENER directe.

La loi de WIENER directe est donnée par $\varepsilon_{WD} = V_1\varepsilon_1 + V_2\varepsilon_2$, lorsque $V_2 = V_{iWD}(\varepsilon = \sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2})$, ce qui permet d'obtenir $\sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2} = \varepsilon_1 + V_{iWD}(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)$, qui mène à $V_{iWD} = \frac{\sqrt{\varepsilon_1}}{\sqrt{\varepsilon_1}+\sqrt{\varepsilon_2}}$, alors $V_{NWD} = \frac{V_2}{V_1}\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}$, dans ces conditions, la pente à l'origine α_{WD0} peut s'exprimer par:

$$\frac{d[Ln(\varepsilon_{NWD})]}{d\left[\frac{1}{2Ln(V_{NWD})}\right]}(pour\ V_{NWD} = 1)$$

donne à partir de la formulation que Bottreau a suggérée à:

$$\alpha_{WD0} = \frac{4}{\mathrm{Ln}\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}\left[\frac{\sqrt{\varepsilon_2}-\sqrt{\varepsilon_1}}{\sqrt{\varepsilon_2}+\sqrt{\varepsilon_1}}\right] \tag{1.85}$$

en remplaçant V_1 et V_2 par leurs fonctions de la variable normalisée V_{NWD}

$$V_1 = \frac{1}{1+\frac{V_{iWD}V_{NWD}}{1+V_{iWD}}}\ et\ V_2 = \frac{\frac{V_{iWD}V_{NWD}}{1+V_{iWD}}}{1+\frac{V_{iWD}V_{NWD}}{1+V_{iWD}}} \tag{1.86}$$

dans l'expression ε_{WD}

D'après la figure1.9, il est claire qu'il y a une assez bonne concordance entre les variations de $th[\alpha/2Ln(V_{NWD})]$ et celles de $Ln(\varepsilon_{NWD})$ et ce, pour ε_2=9, 100, 400 et 900. Il est à noter également que l'on ne peut considérer α comme une constante, c'est pour cela que Bottreau a tracé les variations des différences relatives définies par:

$$D(\varepsilon_2, \varepsilon_1) = \left\{Ln(\varepsilon_{NWD}) - th\left[\frac{1}{2} * \alpha_{WD0} * LnV_{NWD}\right]\right\}/Ln(\varepsilon_{NWD}) \tag{1.87}$$

La figure 1.10 représente des courbes qui sont obtenues pour les mêmes permittivités que précédemment. Les variations de $D(\varepsilon_2, \varepsilon_1)$ demeurent faibles, parce que pour des contrastes supérieurs à 200 elles sont toujours inferieures à 6%.

Par conséquent, Bottreau, en première approximation, a représenté la loi de Wiener directe par celle de probabilité logarithmique avec $\alpha_{WD} = \alpha_{WD0} = C^{te}$. Les contributions des deux constituants en terme de probabilités s'exprimeront par:

$$P_{1D} = \frac{\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{WD}}}{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{WD}} + \left(\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{WD}}} \quad (1.88)$$

Et

$$P_{2D} = \frac{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{WD}}}{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{WD}} + \left(\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{WD}}} \quad (1.89)$$

Les variations de $Ln(\varepsilon_{ND})$ et la loi de modélisation avec $\alpha_{WD} = \alpha_{WD0} = C^{te}$ présentent des écarts qui demeurent faibles et inferieurs aux incertitudes de mesures.

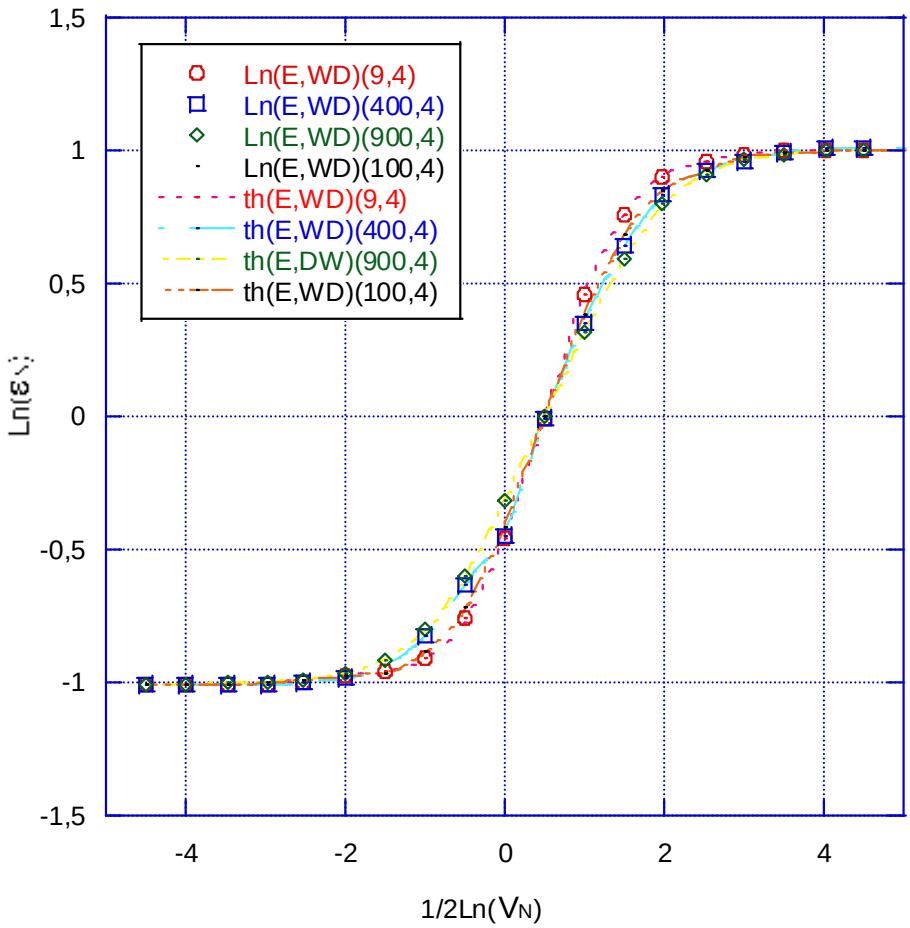


***Figure1.9 Comparaison de $Ln(\varepsilon_{NWD})$avec les courbes théoriques obtenues avec α_{WD0} en fonction de $\frac{1}{2}Ln(V_{NWD})$* [91]**

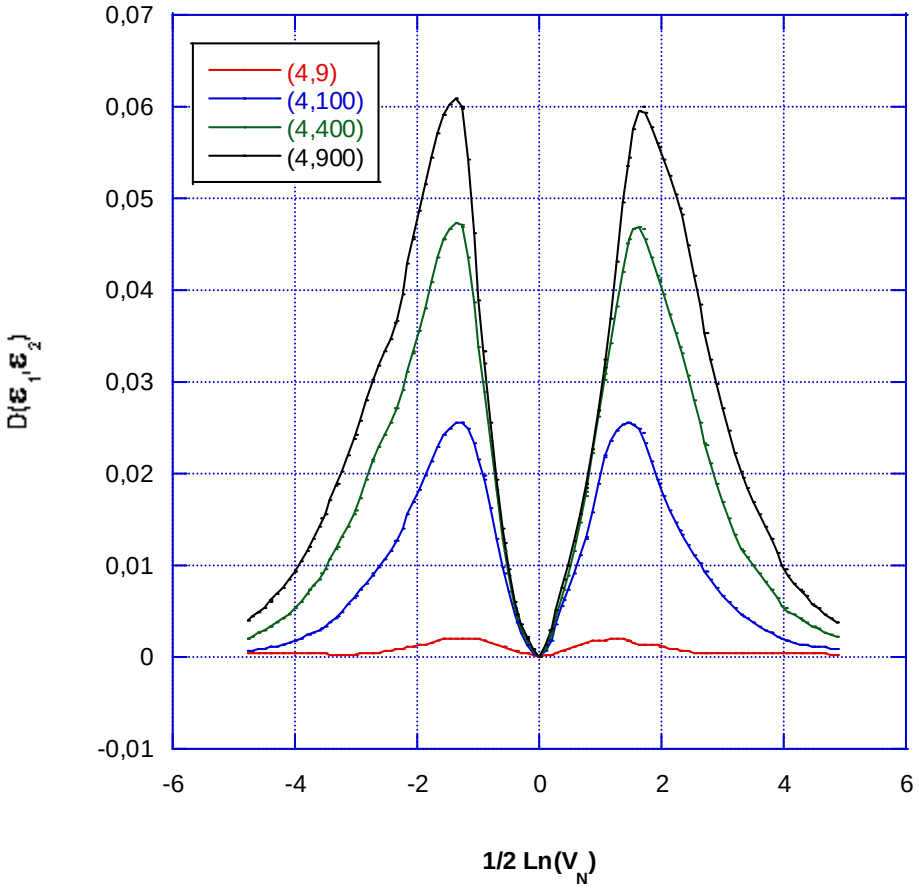


***Figure1.10 : variations de $D(\varepsilon_2, \varepsilon_1)$ en fonction de $^1/_2\, LnV_{NWD}$* [91]**

1.7.9.2 Loi de WIENER inverse

La loi de Wiener inverse est donnée par $\frac{1}{\varepsilon_{W1}} = V_1/\varepsilon_1 + V_2/\varepsilon_2$ ce qui conduit à l'expression $\varepsilon_{W1} = \varepsilon_1\varepsilon_2/(V_1\varepsilon_2 + V_2\varepsilon_1)$, en suivant la même démarche qu'auparavant, pour $V_2 = V_{iW1}$ où $\varepsilon = \sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}$, on obtient $V_{iW1} = \frac{\sqrt{\varepsilon_2}}{\sqrt{\varepsilon_1}+\sqrt{\varepsilon_2}}$ dans ce cas, la variable normalisée devient,

$$V_{NW1} = \frac{V_2(1 - V_{iW1})}{V_1 V_{iW1}} = \frac{V_1}{V_2}\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}} \tag{1.90}$$

Alors que le calcul relatif à la pente à l'origine peut se faire à partir des expressions de V_1 et V_2

$$V_1 = \frac{1}{1 + \frac{V_{iWI}V_{NWI}}{1 + V_{iWI}}}$$

et

$$V_2 = \frac{\frac{V_{iWI}V_{NWI}}{1 + V_{iWI}}}{1 + \frac{V_{iWI}V_{NWI}}{1 + V_{iWI}}} \tag{1.91}$$

est égale à

$$\alpha_{WI0} = \frac{4}{\mathrm{Ln}\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}\left[\frac{\sqrt{\varepsilon_2}-\sqrt{\varepsilon_1}}{\sqrt{\varepsilon_2}+\sqrt{\varepsilon_1}}\right] = \alpha_{WD0} \tag{1.92}$$

Alors que les probabilités p_{1I} et p_{2I} peuvent être donné par

$$p_{1I} = \frac{\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}\right)^{\alpha_{WI}}}{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{WI}} + \left(\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}\right)^{\alpha_{WI}}} \tag{1.93}$$

Et

$$p_{2I} = \frac{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{WI}}}{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{WI}} + \left(\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}\right)^{\alpha_{WI}}} \tag{1.94}$$

Par conséquent, les variables de $Ln(\varepsilon_{NWD})$ et de $Ln(\varepsilon_{NWI})$ seront strictement semblables en fonction des variables normalisées respectives (V_{NWD} et V_{NWI}) qui ont été définies et qui leurs sont propres. Il en sera de même quant à leur écart comparé à la loi logarithmique des corps mixtes en prenant $\alpha_{W(\mathrm{Dou\ I})=}\alpha_{W(\mathrm{D0ou\ I0})=}C^{te}$.
D'ailleurs, il est possible de compenser ces écarts en établissant la fonction généralisée qui est définie par

$$\alpha_{\varepsilon_1\varepsilon_2} = \frac{Argth[ln(\varepsilon_N)]}{\frac{1}{2}Ln(V_N)} \tag{1.95}$$

Qui est très semblable à une fonction de distribution classique (figure1.11).
$\varepsilon_1 = 4$ et $\varepsilon_2 = 900$, représente le cas le plus défavorable que Bottreau a traité, et il a obtenu un excellant accord avec une fonction de type

$$\alpha(\varepsilon_1, \varepsilon_2) = \alpha_{W(D\ ouI)0} + \left\{1 - exp\left[\frac{\left(\frac{1}{2}Ln(V_N)\right)^2}{a}\right]\right\} * b \tag{1.96}$$

Avec

$$a = 2Ln\left(\frac{\varepsilon_2}{\sqrt{\varepsilon_1}+\sqrt{\varepsilon_2}}\right) \tag{1.97}$$

Et

$$b = \alpha_{(W(D\ ou\ I)0)} - \frac{\sqrt{\varepsilon_2}-\sqrt{\varepsilon_1}}{\sqrt{\varepsilon_2}+\sqrt{\varepsilon_1}} \tag{1.98}$$

Elle mène à la représentation ci-dessous

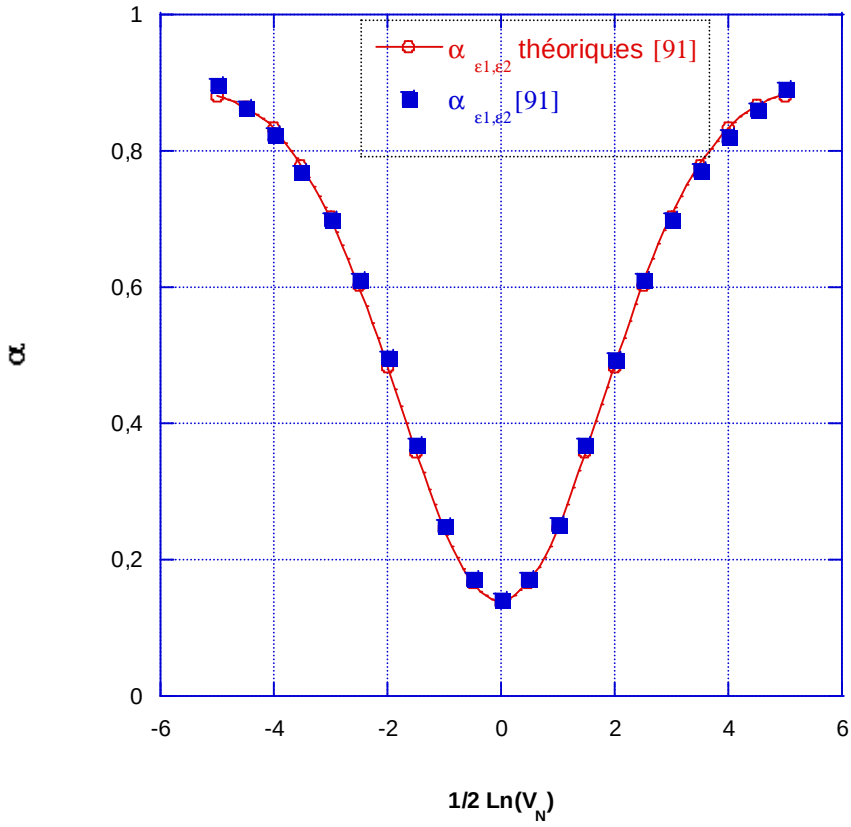


***Figure1.11 : variation de $\alpha_{\varepsilon_1,\varepsilon_2}$ et valeurs théoriques en fonction de $^1/_2\, Ln(V_N)$* [91]**

A partir de la fonction$\alpha_{\varepsilon_1\varepsilon_2}$, Bottreau a confirmé la validité de sa modélisation en utilisant la représentation de $Ln\left(\varepsilon_{N(D\ ou\ I)}\right)$ donnée sur la figure1.12
De cela, Bottreau a conclu que les lois de Wiener, directe et inverse, peuvent donc se décrire par une loi de la forme $x = x^{p1}x^{p2}$ qui est invariable lorsque il permute D avec I et inversement.

1.7.9.3 Loi de WIENER mixte.
En se basant sur la démarche de Lichteneker [94] Bottreau a considéré un ensemble mixte constitué d'éléments indépendants, Wiener directe et inverse, s'excluant mutuellement avec, par conséquent, une probabilité de présence respectivement égale à u et à 1-u. ce qui permet d'obtenir alors, en prenant en considération les résultats antérieurs:

$$\varepsilon_{WM} = (V_1\varepsilon_1 + V_2\varepsilon_2)^u * (\frac{\varepsilon_1\varepsilon_2}{V_1\varepsilon_1 + V_2\varepsilon_2})^{1-u} = (\varepsilon_1^{p1D}\varepsilon_2^{p2D})^u * (\varepsilon_1^{p1I}\varepsilon_2^{p2I})^{1-u} \qquad (1.99)$$

Soit encore:

$$\varepsilon_{WM} = \varepsilon_1^{(u*p1D+(1-u)*p1I)}\varepsilon_2^{(u*p2D+(1-u)*p2I)} = \varepsilon_1^{p1M}\varepsilon_2^{p2M} \qquad (1.100)$$

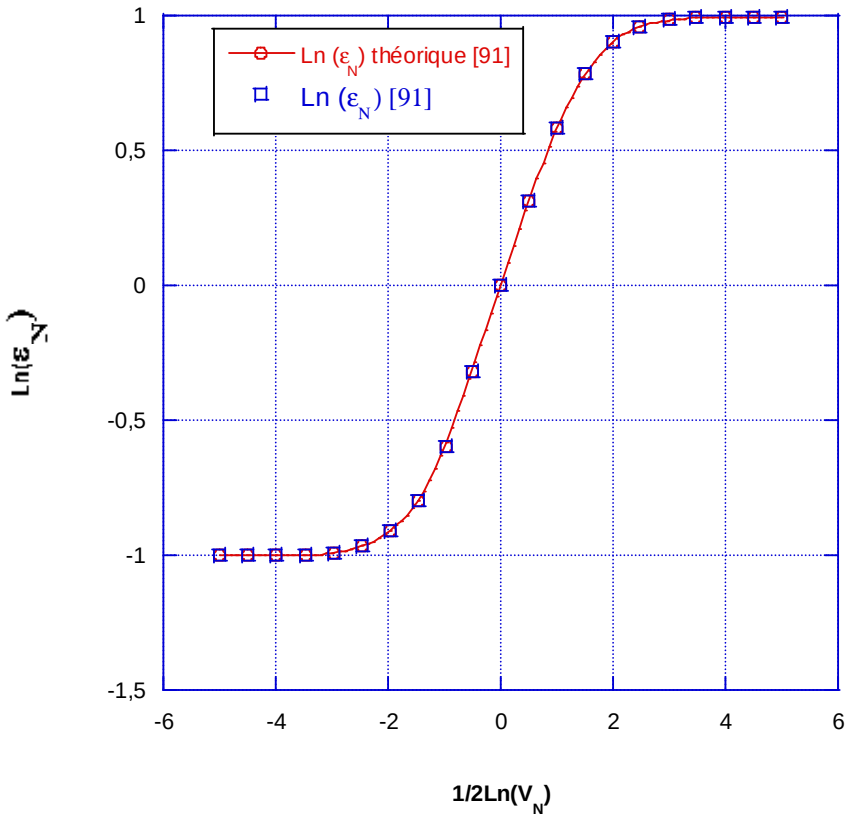


***Figure1.12: $Ln(\varepsilon_N)$et valeurs théoriques en fonction de $^1/_2\, Ln(V_N)$* [91]**

Quand à la résolution de cette expression, Bottreau écrivait la première relation sous forme logarithmique, il a obtenu

$$Ln(\varepsilon_{WM}) = uLn(\varepsilon_{WM}) + (1-u)Ln(\varepsilon_{WI}) \tag{1.101}$$

L'utilisation de l'expression des permittivités normalisées a permis d'obtenir la relation suivante

$$\frac{2Ln(\varepsilon_{WM}) - 2Ln(\varepsilon_1\varepsilon_2)}{Ln\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}\right)} = u * th\left(\frac{\alpha_W}{2}Ln(V_{ND})\right) + (1-u) * th\left(\frac{\alpha_W}{2}Ln(V_{NI})\right) \tag{1.102}$$

Pour$V_{NM} = 1$, en d'autres termes $\varepsilon_{WM} = \sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}$, l'équation précédente sera nulle. En mettant

$$X^\alpha = \left[{V_i}/{1 - V_i}\right]^{\alpha_{WM}} \tag{1.103}$$

(avec $\alpha = \alpha_{WM}$)
Bottreau a obtenu

$$u\left[X^{2\alpha} + X^\alpha\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}^{\alpha} - \sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}^{\alpha}\right) - 1\right] = (u-1)\left[X^{2\alpha} + X^\alpha\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}^{\alpha} - \sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}^{\alpha}\right) - 1\right] \tag{1.104}$$

Ce qui lui a permis d'obtenir une équation du second degré

$$X^{2\alpha} + (2u-1)\left(\frac{\varepsilon_2^{\alpha} - \varepsilon_1^{\alpha}}{\sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}^{\alpha}}\right)X^{\alpha} - 1 = 0 \tag{1.105}$$

La seule racine positive étant à retenir, lui a permis d'écrire

$$X^{\alpha} = \frac{\varepsilon_2^{\alpha} - \varepsilon_1^{\alpha}}{2\sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}^{\alpha}}\left[\sqrt{4u(u-1) + \left(\frac{\varepsilon_2^{\alpha} + \varepsilon_1^{\alpha}}{\varepsilon_2^{\alpha} - \varepsilon_1^{\alpha}}\right)^2} - (2u-1)\right] \tag{1.106}$$

Pour le cas ou u=1 et u=0 aux valeurs de $[V_i/1-V_1]^{\alpha}$ propre respectivement aux Wiener directe et Wiener inverse. Les probabilités de ces deux événements seront alors:

$$P_{1M} = \frac{X^{\alpha}}{X^{\alpha} + \left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha}} = up_{1D} + (1-u)p_{1I} \tag{1.107}$$

$$P_{2M} = \frac{X^{\alpha}}{X^{\alpha} + \left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha}} = up_{2D} + (1-u)p_{2I} \tag{1.108}$$

Malgré ce cas plus compliqué, Bottreau a pu trouver un parfait accord avec la loi des corps mixtes en utilisant comme variable

$$\frac{\alpha}{2}Ln(V_{NM}) = \frac{\alpha}{2}Ln\left(\frac{V_2}{V_1 X}\right) \tag{1.109}$$

Ce qui lui a permis d'obtenir alors des courbes strictement identiques (pour des permittivités ε_1 et ε_2 données) à celles obtenues pour Weiner directe et inverse, la fonction α_W se gardant comme l'indique le calcul que Bottreau a réalisé à partir de la relation

$$\varepsilon_{WM} = (V_1\varepsilon_1 + V_2\varepsilon_2)^u * \left(\frac{\varepsilon_1\varepsilon_2}{V_1\varepsilon_2 + V_2\varepsilon_1}\right)^{1-u} \tag{1.110}$$

Pour u=1/2, traité par K. Liclitenecker[4], Bottreau a obtenu X^{α}(u=1/2)=1 alors

$$p_{1M(u=\frac{1}{2})} = 1/\left[1 + \left(V_2/V_1\right)^{\alpha}\right] \tag{1.111}$$

Et

$$p_{2M(u=\frac{1}{2})} = \left(V_2/V_1\right)^{\alpha}/\left[1 + \left(V_2/V_1\right)^{\alpha}\right] \tag{1.112}$$

Ce qui est très raisonnable puisque les abscisses normalisées, utilisées pour Wiener directe et inverse sont symétriques dans le système d'abscisse $1/2\, Ln\left(V_2/V_1\right)$

Enfin, Bottreau considérait que sa loi de modélisation était suffisamment générale pour régir le comportement électromagnétique des matériaux, et elle permet, par analogie électrique, de déduire

l'impédance de circuits séries ou parallèles (qui représentent les deux opposants) et l'association des deux. Par ailleurs Bottreau écrivait à propos de ce qu'on vient de citer *«ce que n'avait pu montrer K. Lichtenecker, certainement par manque de moyens informatiques (début du siècle)»*.

1.7.10 Relation avec les lois des mélanges les plus usuelles.

Après que la loi de modélisation proposée par Bottreau ait permis de rendre compte d'un comportement aussi opposé que Wiener directe et inverse en passant par Wiener mixte, Bottreau s'est posé la question quant à la validité de son modèle au regard des lois de mélange effectif fréquemment utilisées, et la définition des fonctions α qui les caractérisent par rapport à la loi de probabilité des corps mixtes.

Malgré que Bottreau a mentionné les articles de base [102-104] qui présentent d'après lui une bibliographie complète des lois des mélanges, il s'est limité uniquement à quelque lois en justifiant ce choix soit par leurs ressemblances avec les lois précédentes (Birchac, Looyenga), soit par l'intérêt porté pour interpréter un certain nombre de mesures (Hanaï). Il a terminé par une loi plus classique proposée par Bruggeman, Bottcher, puis par Landauer, sous des formes différentes, pour les conductivités. En vue d'exalter les différences éventuelles avec la loi des corps mixtes, Bottreau a pris un cas particulier ou $\varepsilon_1 = 4$ et $\varepsilon_2 = 900$ et qui conduit à un contraste diélectrique important.

1.7.10.1 Loi de Birchak [105].

L'idée derrière cette loi est de supposer que la constante de propagation d'un mélange est égale à la somme pondérée par les fractions volumiques de la constante de propagation des constituants. Nous obtenons alors,

$$\gamma = V_1\gamma_1 + V_2\gamma_2 \tag{1.113}$$

Soit

$$\sqrt{\varepsilon} = V_1\sqrt{\varepsilon_1} + V_2\sqrt{\varepsilon_2} \tag{1.114}$$

Il s'agit ici d'une loi semblable à celle de Wiener directe dans laquelle les permittivités ont été substituées par les indices électromagnétiques.

En agissant comme auparavant, pour $\sqrt{\varepsilon} = \sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}$ nous obtenons

$$V_i = \frac{\sqrt[4]{\varepsilon_1}}{\sqrt[4]{\varepsilon_2} - \sqrt[4]{\varepsilon_1}} \tag{1.115}$$

et par suite

$$\frac{V_i}{1 - V_i} = \frac{\sqrt[4]{\varepsilon_1}}{\sqrt[4]{\varepsilon_2}} \tag{1.116}$$

Dans ce cas la variable de normalisation V_N devient

$$V_N = \frac{V_2}{V_1}\frac{(1 - V_i)}{V_i} \tag{1.117}$$

et qui mène à :

$$\frac{V_2}{V_1} = V_N\frac{V_i}{(1 - V_i)} \tag{1.118}$$

Et étant donné que nous avons

$$V_2 = \frac{V_2}{V_1 + V_2} = \frac{\frac{V_2}{V_1}}{1 + \frac{V_2}{V_1}} \tag{1.119}$$

Et

$$V_1 = \frac{1}{1 + \frac{V_2}{V_1}} \tag{1.120}$$

Il est possible de calculer les variations de ε relatives à la loi de Birchac puis celles de $Ln(\varepsilon_N)$ en fonction de V_N, ce qui va nous permettre de les comparer avec la fonction donné par $Arg\ th(^1/_2\, Ln(V_N))$ et déduire la fonction α en utilisant la relation suivante :

$$\alpha = {Arg\ th[Ln(\varepsilon_N)]}\Big/{^1/_2\, Ln(V_N)} \tag{1.121}$$

Ou encore par

$$\alpha = d[Ln(\varepsilon_N)] \,/\, d[(1 \,/\, 2\, Ln(V_N)] \tag{1.122}$$

qui présente la fonction caractéristique de la loi de Birchac, comme Bottreau l'a appelée, par rapport à celle des corps mixtes.
Ces fonctions sont représentées par les courbes de la figure1.13
Il est à noter que les variations obtenues sont parfaitement conformes aux précédentes, en prenant en considération la similitude entre les lois de Birchac et celle de Wiener directe, Botreau a considéré que seule la variable normalisée est affectée et il a obtenu une pente à l'origine qui devient:

$$\alpha_{Bir0} = \frac{8}{Ln\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}\left[\frac{\sqrt{\varepsilon_2}^{1/2} - \sqrt{\varepsilon_1}^{1/2}}{\sqrt{\varepsilon_2}^{1/2} + \sqrt{\varepsilon_1}^{1/2}}\right] \tag{1.123}$$

alors que les probabilités des événements ε_1 et ε_2 sont données par:

$$p_{1Bir} = \frac{\left(\sqrt[4]{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{Bir}}}{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{Bir}} + \left(\sqrt[4]{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{Bir}}} \tag{1.124}$$

et

$$p_{2Bir} = \frac{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{Bir}}}{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha_{Bir}} + \left(\sqrt[4]{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{Bir}}} \tag{1.125}$$

Bottreau, à travers la courbe relative à α donnée sur la figure1.14, a confirmé cette similitude en prenant en considération la condition suivante qui consiste à remplacer la permittivité par l'indice électromagnétique. Il s'est limité à constater que la fonction caractéristique reste très proche de l 'unité en donnant comme raison la valeur de $\alpha_{Bir0}(4{,}900) = 0{,}871$ obtenue pour $V_N = 1$

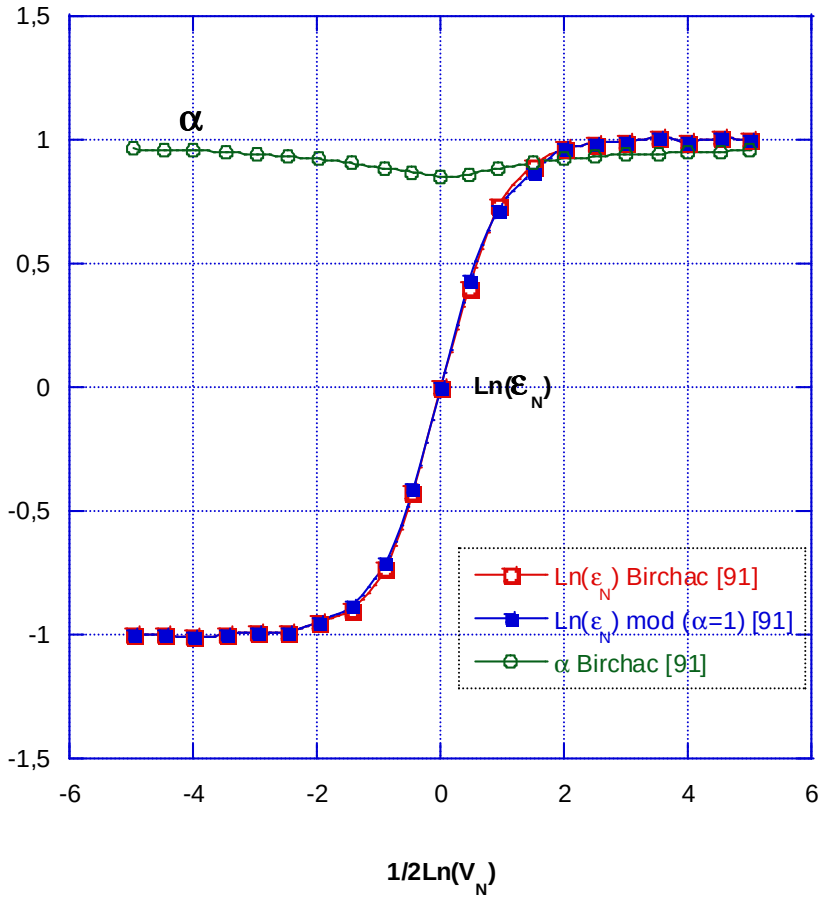


***Figure1.13 : comparaison entre la loi de Birchac et modélisation (pour $\alpha = 1$)* [91]**

1.7.10.2 Loi de Looyenga [106]

Looyenga s'est basé sur le développement de Taylor de V_2 en fonction de la permittivité, suivi d'une intégration, ce qui lui permet d'obtenir:

$$\sqrt[3]{\varepsilon} = V_1\sqrt[3]{\varepsilon_1} + V_2\sqrt[3]{\varepsilon_2} \tag{1.126}$$

Vu que celle-ci présente une forme analogue à celle de Wiener directe, Bottreau a procédé au remplacement des permittivités par leurs racines cubique, ce qui conduit à la relation suivante :

$$V_i = \frac{\sqrt[6]{\varepsilon_1}}{\sqrt[6]{\varepsilon_2} - \sqrt[6]{\varepsilon_1}} \tag{1.127}$$

Soit

$$\frac{V_i}{1 - V_i} = \frac{\sqrt[6]{\varepsilon_1}}{\sqrt[6]{\varepsilon_2}} \tag{1.128}$$

La variable de normalisation est donnée par

$$V_N = \frac{V_2}{V_1}\frac{(1 - V_i)}{V_i} = \frac{V_2}{V_1}\frac{\sqrt[6]{\varepsilon_1}}{\sqrt[6]{\varepsilon_2}} \tag{1.129}$$

La figure1.15 comporte d'une part une comparaison des variations du logarithme de la permittivité à la tangente hyperbolique de la variable normalisée, et d'autre part les variations de la fonction α.

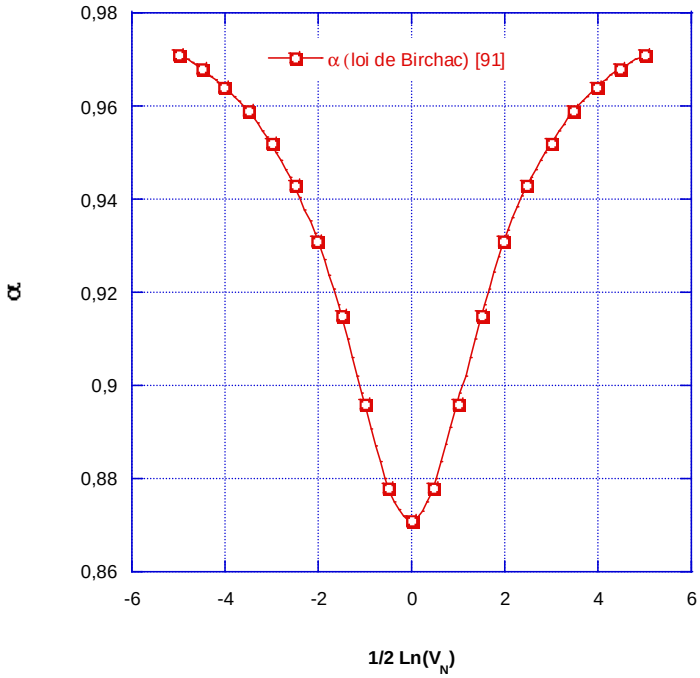


***Figure1.14 : fonction caractéristique de la loi de Birchac.* [91]**

La pente à l'origine des variations de la permittivité normalisée qui correspond au minimum de α est:

$$\alpha_{looo} = \frac{12}{Ln\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}\left[\frac{\sqrt{\varepsilon_2}^{\frac{1}{3}} - \sqrt{\varepsilon_1}^{\frac{1}{3}}}{\sqrt{\varepsilon_2}^{\frac{1}{3}} + \sqrt{\varepsilon_1}^{\frac{1}{3}}}\right] = 0{,}937 \qquad (1.130)$$

Encore une fois cette valeur est proche de l'unité, le contraste dans ce cas, la loi de Looyenga, est très petit $\sqrt[3]{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}} = 7{,}663$ si nous le comparons avec celui de la loi de Birchac $\sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}} = 15$ et celui de la loi de Wiener.

$$\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} = \frac{900}{4} = 225 \qquad (1.131))$$

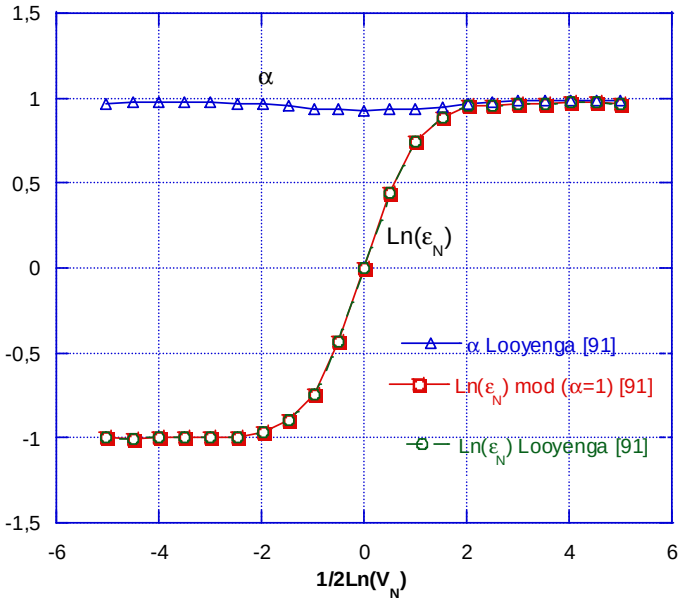


***Figure1.15 : comparaison entre la loi de Looyenga et modélisation (pour $\alpha = 1$)* [91]**

En se basant sur la similitude des de ces trois lois, Bottreau a conclu que la fonction α aura la même forme que celle qu'il avait établie pour les lois Wiener à la condition de remplacer les permittivités par leur racine carré et cubique dans les cas de lois de Birchac et Looyenga respectivement.
La figure1.16 représente les variations de la fonction caractéristique "α" en fonction du logarithme de la variable normalisée.

Il est très remarquable que les probabilités des deux événements ε_1, ε_2 peuvent être donnés par les relations suivantes:

$$P_{1Loo} = \frac{1}{1 + {V_N}^{\alpha}} = \frac{\left(\sqrt[6]{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{Loo}}}{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha Loo} + \left(\sqrt[6]{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{Loo}}} \tag{1.132}$$

$$P_{2Loo} = \frac{{V_N}^{\alpha}}{1 + {V_N}^{\alpha}} = \frac{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha Loo}}{\left(\frac{V_2}{V_1}\right)^{\alpha Loo} + \left(\sqrt[6]{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\alpha_{Loo}}} \tag{1.133}$$

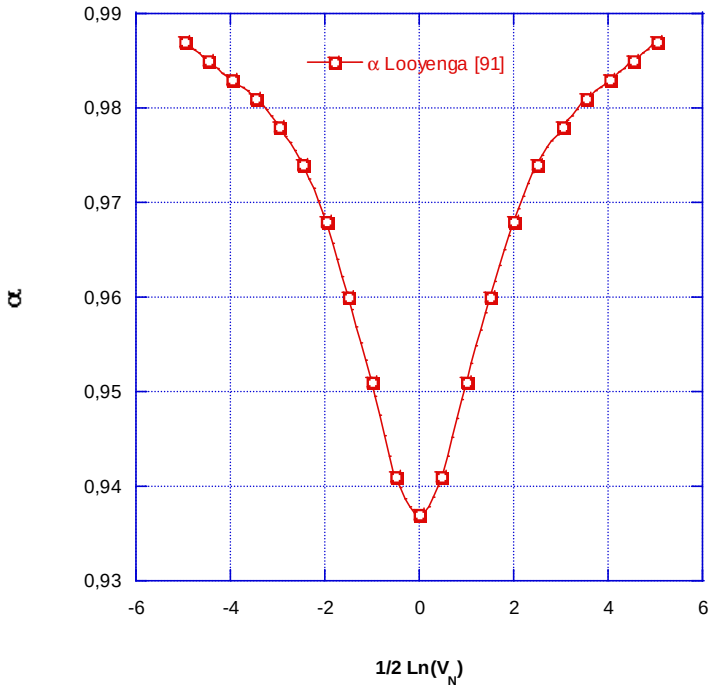


***Figure1.16 : fonction caractéristique de la loi de Looyenga* [91]**

1.7.10.3 Loi d'Hanaï [107-109]

En réalité, la loi d'Hanaï résulte d'une différentiation suivie d'une intégration à partir de $\boldsymbol{\varepsilon = \varepsilon_1}$, de la loi de Bruggeman [110], d'où elle mérite l'appellation de loi de Bruggeman – Hanaï, malgré qu'elle est issue d'une formulation plus complexe que les lois précédentes, elle est souvent en bon accord avec les résultats expérimentaux, surtout lorsqu'il s'agit des milieux micellaires (émulsions et microémulsions) et même sur différents types de composites [111], et malgré que certains auteurs restent critiques du fait de son absence de symétrie par rapport aux fractions volumiques, inhérente à la méthode de calcul utilisée pour son établissement, l'étude de cette loi revêt une grande importance pour Bottreau.

Elle est donnée par

$$\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}\left(\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon}\right)^{\frac{1}{3}} = 1 - V_2 \tag{1.134}$$

Qui mène pour $\varepsilon = \sqrt{\varepsilon_1 \varepsilon_2}$ à:

$$\frac{V_i}{1 - V_i} = \frac{\sqrt{\varepsilon_2} + \sqrt{\varepsilon_1}\left(1 - \left(\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\frac{1}{3}}\right)}{\sqrt{\varepsilon_1}\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\frac{1}{3}}} \tag{1.135}$$

Dans le cas de la loi d'Hanaï, la variable normalisée est donnée par:

$$V_N = \frac{V_2}{V_1} = \frac{\sqrt{\varepsilon_1}\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\frac{1}{3}}}{\sqrt{\varepsilon_2} + \sqrt{\varepsilon_1}\left(1 - \left(\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\frac{1}{3}}\right)} \tag{1.136}$$

En vue de calculer la permittivité, Bottreau s'est servi d'un logiciel Mathématica, en fonction de V_N en portant dans l'équation de base:

$$1 - V_2 = 1 - \frac{V_2}{V_1 + V_2} = \frac{1}{1 + \frac{V_2}{V_1}} = \frac{1}{1 + V_N \frac{V_i}{1 - V_i}} = V_1 \tag{1.137}$$

La figue1.17 montre que les résultats issus suivant la même représentation que précédemment.

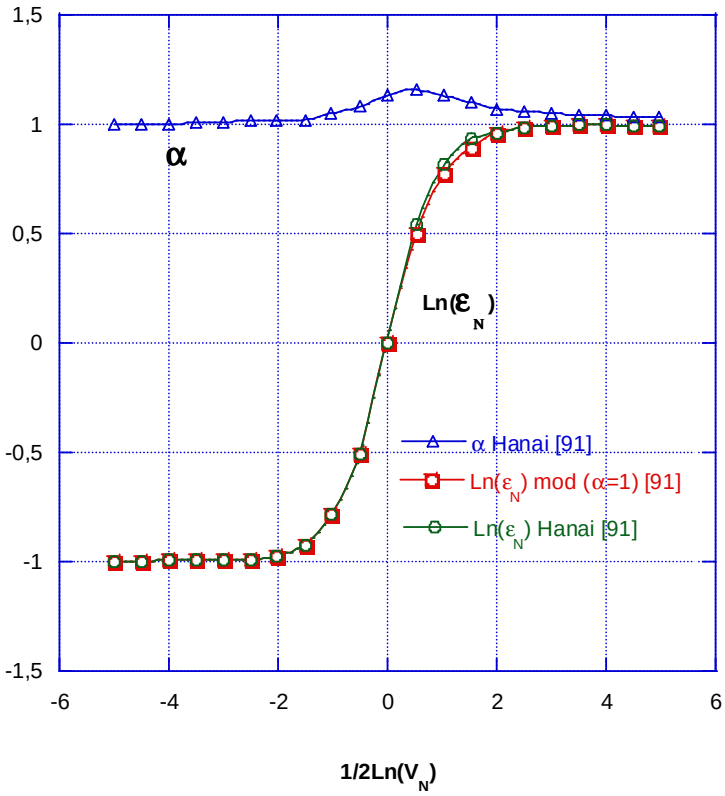


***Figure1.17 :comparaison entre la loi d'Hanaï et modélisation (pour $\alpha = 1$)* [91]**

À travers la figure1.18 qui représente la fonction α nous nous pouvons constater la dissymétrie de la loi d'Hanaï

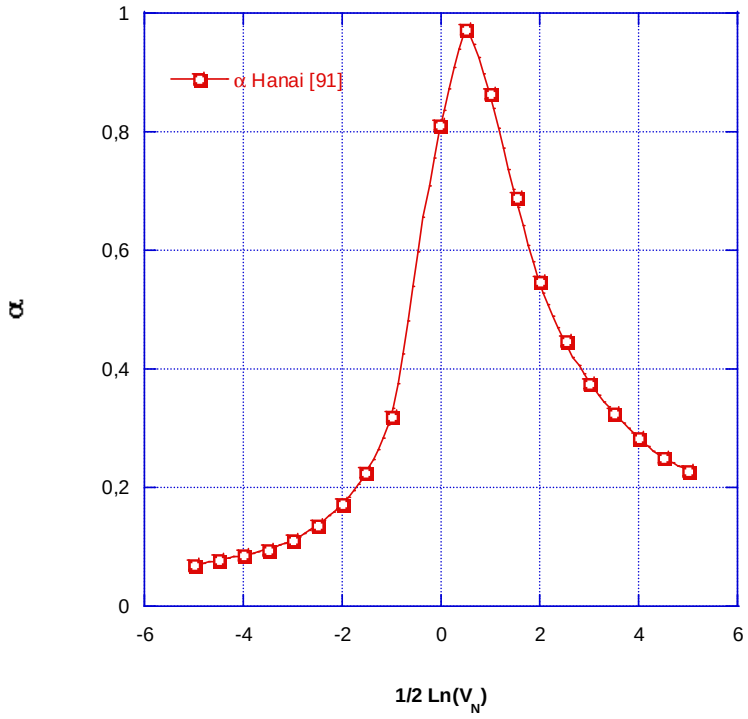


***Figure1.18 : fonction caractéristique de la loi d'Hanaï* [91]**

Par ailleurs, il est notable que la fonction α est supérieure à l'unité, ce qui n'est pas le cas pour les lois précédentes, en plus elle garde des valeurs asymptotiques égale à 1, malgré ça l'amplitude de la fonction en question demeure très faible, parce que la tangente à l'origine de la courbe $Ln(\varepsilon_N) = f[1/2Ln(V_N)]$, donnée par la relation:

$$\alpha_{H0} = \frac{d\left(Ln(\varepsilon_N)\right)}{\frac{1}{2}Ln(V_N)} = \frac{12}{Ln\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}\right)}\frac{\sqrt{\varepsilon_2}-\sqrt{\varepsilon_1}}{\sqrt{\varepsilon_2}+2\sqrt{\varepsilon_1}}\left[1-\frac{\sqrt{\varepsilon_2}}{\sqrt{\varepsilon_2}+\sqrt{\varepsilon_1}}\left(\sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}}\right)^{\frac{1}{3}}\right] \qquad (1.138)$$

mène à $\alpha_{H0}(4{,}900) = 1{,}131$. l'amplitude de la fonction caractéristique obtenue pour $^1/_2\, Ln(V_N) = 0{,}25$, une valeur qui est proche à l'origine, n'atteint que 1,161.

En ce qui concerne les probabilités des événements, elles peuvent être obtenues par leurs expressions en fonction de $V_N$comme il a été fait précédemment. Mais nous ne les développerons pas cette fois-ci.

1.7.10.4 Loi de Böttcher [112].

En réalité, la loi classique en question a plusieurs appellation celle de Böttcher (1945) ou celle de Bruggeman (1935) (par ancienneté) qui l'avait déjà donné sous une autre forme, mais en fait strictement semblable, ou celle de Mie qui a pu obtenir la même expression en développant les formules de diffusion au troisième ordre [111].

En outre cette loi a servi de base au développement de celle d'Hanaï qui vient d'être traitée précédemment, par ailleurs Landauer [113] l'a exploitée pour les conductivités.

Böttcher l'a exprimé par la relation:

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + 3V_2\varepsilon\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{2\varepsilon + \varepsilon_2} \tag{1.139}$$

Tandis que Bruggeman et Landauer préfèrent la relation suivante:

$$V_1\left(\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon}\right) + V_2\left(\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon}\right) = 0 \tag{1.140}$$

En suivant la même démarche que précédemment, nous obtenons :

$$V_i = \frac{\sqrt{\varepsilon_2} + 2\sqrt{\varepsilon_1}}{3(\sqrt{\varepsilon_2} + \sqrt{\varepsilon_1})} \rightarrow \frac{V_i}{1 - V_1} = \frac{\sqrt{\varepsilon_2} + 2\sqrt{\varepsilon_1}}{2\sqrt{\varepsilon_2} + \sqrt{\varepsilon_1}} \tag{1.141}$$

Ce qui conduit alors à:

$$V_N = \frac{V_2}{V_1}\frac{2\sqrt{\varepsilon_2} + \sqrt{\varepsilon_1}}{\sqrt{\varepsilon_2} + 2\sqrt{\varepsilon_1}} \tag{1.142}$$

Donc il est possible d'obtenir les valeurs de la permittivité normalisée à partir de ces relations en résolvant une simple équation du second degré, ce qui, à son tour, conduit à l'obtention de la fonction α présentée dans la figure1.19.

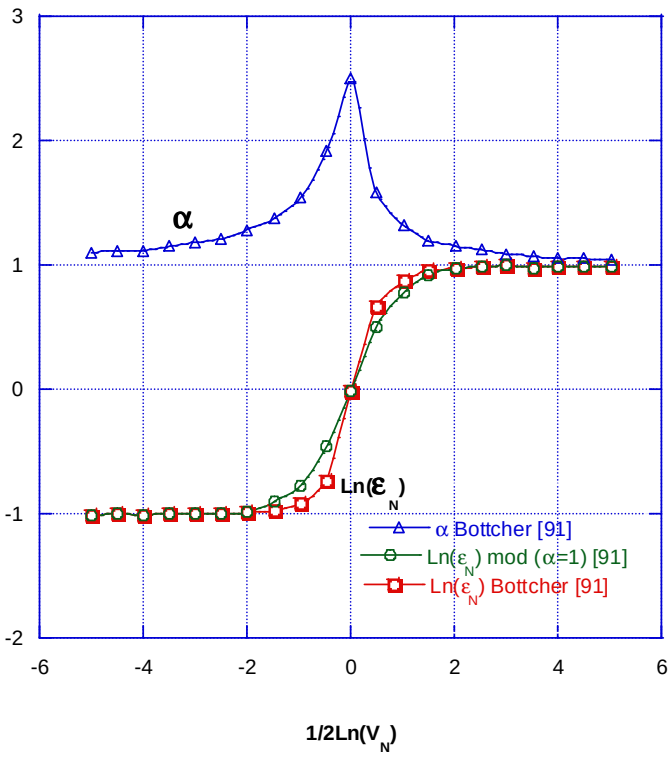


***Figure1.19 : comparaison entre la loi de Böttcher et modélisation (pour $\alpha = 1$)* [91]**

Le calcul de la pente à l'origine implique que l'utilisation de l'expression de Burggeman ce qui mène à

$$\alpha_{Bot0} = \frac{d\left(Ln(\varepsilon_N)\right)}{\frac{1}{2}Ln(V_N)} = \frac{4}{9Ln\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}\right)} \frac{(\sqrt{\varepsilon_2} - \sqrt{\varepsilon_1})[\sqrt{\varepsilon_2\varepsilon_1} + 2(\sqrt{\varepsilon_2} + \sqrt{\varepsilon_1})^2]}{\sqrt{\varepsilon_2\varepsilon_1}(\sqrt{\varepsilon_2} + \sqrt{\varepsilon_1})} \quad (1.143)$$

Pour le cas ou $\varepsilon_1 = 4$ et $\varepsilon_2 = 900$ la fonction $\alpha_{Bot0}(4\,,900) = 2{,}523$, qu'est une grande valeur si nous la comparons avec celle des autres lois déjà analysées, la figure1.20 de la fonction en question exhibe une dissymétrie, et son maximum est obtenu pour une valeur de V_N égale à 1, en s'appuyant sur une étude expérimentale, Bottreau l'a jugé incompatible pour rendre compte de manière satisfaisante du comportement des mélanges [111].

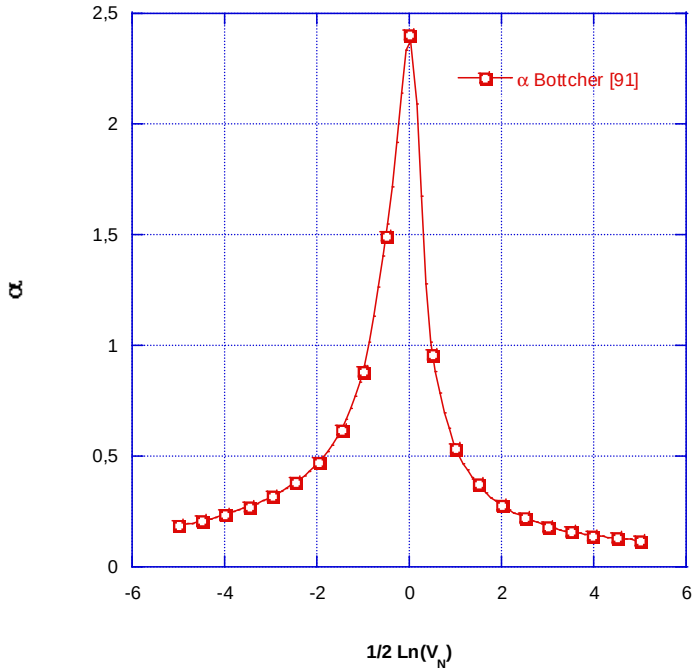


***Figure 1.20: fonction caractéristique de la loi de Böttcher* [91]**

Les relations de base ci-dessous peuvent bien exprimer la probabilité de la contribution des deux constituants.

$$P_1 = \frac{1}{1 + (V_N)^\alpha} \; et \; P_2 = \frac{(V_N)^\alpha}{1 + (V_N)^\alpha} \quad (1.144)$$

1.7.10.5 Récapitulation relative à la corrélation des différentes lois et celle de Bottreau

Bottreau avait conclu que la seule condition pour laquelle toutes les lois obéissent à la loi de probabilité des corps mixtes c'est de tenir compte de la fonction caractéristique ainsi qu'aux valeurs de la variable normalisée qui leurs sont propres.

Il voyait également qu'il est d'une grande importance de les comparer avec les corps mixtes en définissant α par une valeur constante au lieu de le faire par sa fonction.

À l'exception de la loi de Böttcher, qui présente une fonction α de grande amplitude et de faible largeur, Bottreau a utilisé la valeur de α_0 qu'il a défini précédemment. En prenant la valeur de α égale à la demie de l'amplitude c'est-à-dire $^1/_2\,(1 + \alpha_{Boï0})$, Bottreau a pu obtenir un bon accord avec la loi de Böttcher.

Les deux figures 1.21 et 1.22 présentent les variations obtenues pour les permittivités déduites par le biais des différentes lois étudiées, et les réponses à la loi des corps mixtes pour $\alpha = \alpha_0 = C^{te}$, ainsi que les écarts relatifs entre ces deux représentations

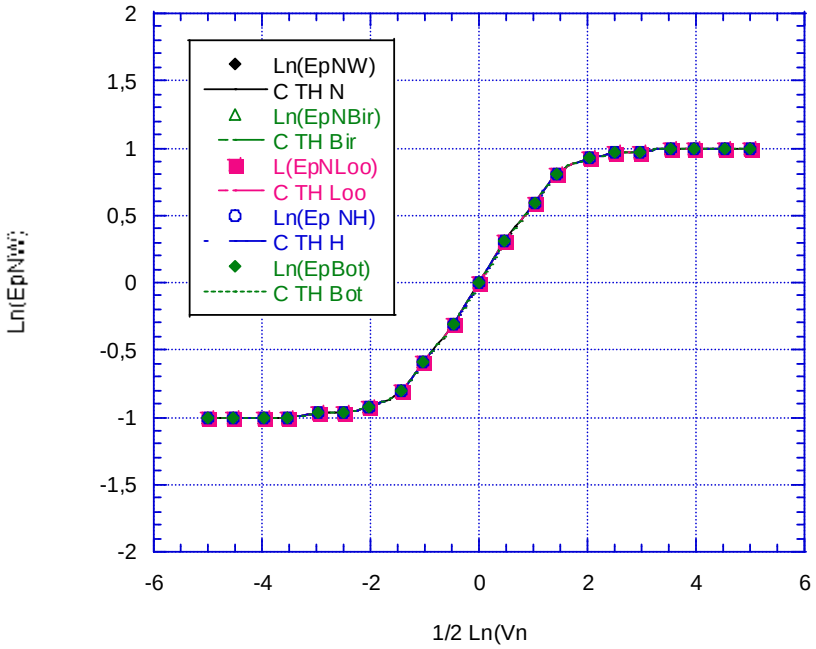


Figure1.21: comparaison entre permittivités obéissants aux différentes lois et courbes répondants à la loi des corps mixtes pour $\alpha = \alpha_0$ [91]

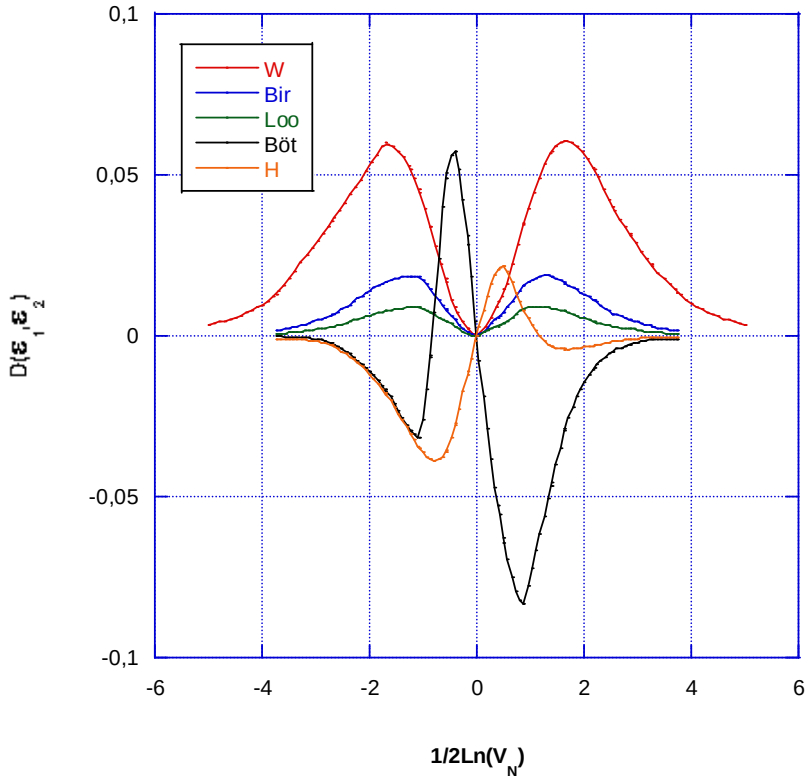


Figure1.22: écarts relatifs entre permittivités calculées à partir des expressions de base et la loi des corps mixtes pour $\alpha = \alpha_0$ [91]

Mais à part les deux cas extrêmes, nous constatons que les écarts relatifs demeurent très faibles et du même ordre de grandeur que les incertitudes expérimentales.
Compte tenu de ceci, Bottreau a pu considérer sa loi de modélisation comme étant une loi générale pour traduire le comportement électromagnétique des matériaux binaires (même dans le cas ou α est constante).

1.7.11 Avantages et mise en œuvre pratique de la loi de modélisation de Bottreau.

L'objectif attendu du travail de Bottreau ainsi que d'autres physiciens étant d'établir des lois de modélisations permettant la prédiction des caractéristiques électromagnétique des matériaux en connaissant au préalable les permittivités des constituants ε_1 et ε_2.
En partant de la symétrie de sa loi de modélisation par rapport au logarithme de la variable normalisée V_N, Bottteau disait qu'il est possible de prédire l'ensemble du comportement électromagnétique du matériau pour toutes fractions volumiques en se basant uniquement sur un nombre de mesures limitées à la fraction volumique des charges telle que $V_2 = V_i$, notamment pour les milieux présentant un grand contraste diélectrique, il avait même donné un exemple celui des composites polymères/carbones [114] où il a limité les fractions volumiques de quelques % qui demeurent faibles (20 à 30%) par crainte de ne plus assurer une tenu mécanique acceptable au-delà de ces fractions, ce travail lui a permis de déterminer la permittivité de la charge, inaccessible à la mesure, en utilisant simplement la relation suivante:

$$\varepsilon_2 = {\varepsilon_1}^2/\varepsilon_i \tag{1.145}$$

Il a même évoqué la simplicité de la mise en œuvre de sa loi [115] même si la valeur de $\varepsilon_2$est inconnue en suivant la présente démarche: en premier lieu, il a recommandé de tracer les variations de $Ln(\varepsilon)$ en fonction de $(Ln(1/2\ V_2/V_1))$ en vue de déterminer le point d'inflexion, et s'il y'a lieu de rencontrer une difficulté inhérente à la fonction en question , il est possible d'en surmonter en traçant la courbe dérivée de $Ln(\varepsilon)$ ou encore la dérivée seconde qui passera par zéro pour une certaine valeur de V_2.
Dans ce cas, V_2aura la même valeur que V_i ce qui implique que l'abscisse de la courbe sera ainsi :

$$Ln\left(\frac{1}{2}\frac{V_2}{V_1}\right) = Ln\left(\frac{1}{2}\frac{V_i}{1-V_i}\right) \tag{1.146}$$

Donc nous pouvons déduire la variable normalisée qui est donné par:

$$V_N = \frac{V_2}{V_1}\frac{V_i}{1-V_i} \tag{1.147}$$

en connaissant la fraction $\frac{V_i}{1-V_i}$. La détermination de la valeur ε_2 est possible, donc il suffit de remplacer la valeur de ε_i propre au point d'inflexion dans l'expression $\varepsilon_2 = {\varepsilon_1}^2/\varepsilon_i$
la connaissance de tous ces éléments va nous permettre de tracer la loi de modélisation $Ln(\varepsilon_N) = F\left[\frac{1}{2}Ln(V_N)\right]$ dont la pente à l'origine est égale à α_0, tandis que la courbe dérivée de $Ln(\varepsilon_N)$ pourra établir la fonction caractéristique α.

Alors que les probabilités de la contribution des deux constituants sont donnée par;

$$P_1 = \frac{1}{1 + (V_N)^{\alpha}} \tag{1.148}$$

et

$$P_2 = \frac{(V_N)^{\alpha}}{1 + (V_N)^{\alpha}} \tag{1.149}$$

Ces dernières permettront de résoudre le problème.

1.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons, en effet, abordé deux volets distincts. Le premier concernant la théorie des diélectriques, où nous avons tenté de clarifier ces différents concepts à savoir: polarisations et propriétés diélectriques, propriétés diélectriques dépendantes de la fréquence, ainsi que quelques effets de la polarisation. Par contre le deuxième volet nous l'avons consacrés purement à la présentation des différentes lois de mélanges rencontrées dans la littérature sans prétendre les avoir toutes décrites. A travers l'exposition des différentes lois, modèles et théories de calcul de la permittivité effective des mélanges, établis dans le cadre de la prédiction de la permittivité, il nous a été donné de constater ce que présentent ces derniers ou dernières comme avantages et inconvénients. Cependant, nous nous servirons, en dernier chapitre, la loi de Lichteneker modifiée comme référence pour valider nos résultats expérimentaux

Références

1 *Bin Li and Wei-Hong Zhong 'Polymer Nanocomposites for Dielectrics' (Pan Stanford Publishing Pte. Ltd,2017), pp17-28*

2 *Frubing, P., F. P. Wang, and M. Wagener (2012). Relaxation processes and structural transitions in stretched films of poly(vinylidene fluoride) and its copolymer with hexafluoropropylene. Appl Phys A: Mater Sci Process, 107(3):603–611.*

3 *El Sayed, A. M., and W. M. Morsi (2013). Dielectric relaxation and optical properties of polyvinyl chloride/lead monoxide nanocomposites. Polym Compos, 34(12):2031–2039.*

4 *Shukla, N., et al. (2014). Dielectric relaxation and thermal studies on dispersed phase polymer nanocomposite films. J Mater Sci: Mater Electron, 25(6):2759–2770.*

5 *Zheng, S. Y., et al. (2014). Oxygen vacancy-related dielectric relaxation and electrical conductivity in La-doped Ba(Zr0.9Ti0.1)O-3 ceramics. J Mater Sci: Mater Electron, 25(9):4058–4065.*

6 *Abdelkader, K., et al. (2015). Dielectric relaxation and ionic conduction in 66%Silica/CW229-3/HW229-1 microcomposite polymer. Composites Part B, 78:488–496.*

7 *Belovickis, J., et al. (2015). Dielectric spectroscopy of polymer based PDMS nanocomposites with ZnO nanoparticles. Ferroelectrics, 479(1):82–89.*

8 *Svirskas, S., et al. (2015). Dielectric relaxation and ferromagnetic resonance in magnetoelectric (polyvinylidene-fluoride)/ferritecomposites. J Polym Res, 22(7).*

9 *El Ghanem, H. M., et al. (2013). Effect of dc-bias on the dielectric behavior of CNT/ABS nanocomposites. Phys B: Condens Matter, 418:41–46.*

10 *Yang, W. H., et al. (2011). Electrical modulus analysis on the Ni/CCTO/ PVDF system near the percolation threshold. J Phys D: Appl Phys,44(47).*

11 *Saji, J., et al. (2015. Impedance analysis, dielectric relaxation, and electrical conductivity of multi-walled carbon nanotube-reinforced silicon elastomer nanocomposites. J Elastomers Plast, 47(5):394–415.*

12 *Williams, G. (2005). Polymer dynamics and broadband dielectric spectroscopy, in New Polymeric Materials, ed. L. S. KorugicKarasz, W. J. MacKnight, and E. Martuscelli. Washington: American Chemical Society, pp. 268–281.*

13 *Asami, K. (2002). Characterization of heterogeneous systems by dielectric spectroscopy. Prog Polym Sci, 27(8):1617–1659.*

14 *Petzelt, J., et al. (2013). Broadband dielectric and conductivity spectroscopy of inhomogeneous and composite conductors. Phys Status Solidi A, 210(11):2259–2271.*

15 *Wu, Y., et al. (2015). Exceptional dielectric properties of chlorinedoped graphene oxide/poly (vinylidene fluoride) nanocomposites.Carbon, 89:102–112.*

16 *Ari Sihvola : 'Electromagnetic Mixing Formulas and Applications' (IET Electromagnetic Waves Series 47, 2008)*

17 *STRUKOV, B.A., and LEVANYUK, A.P.: 'Ferroelectric phenomena in crystals'(Springer, Berlin, 1998)*

18 *BLOEMBERGEN, N.: 'Nonlinear optics', 4th edition (World Scientific, Singapore,1996)*

19 *SHEN, Y.R.: 'Principles of nonlinear optics' (Wiley, New York, 1984)*

20 *LANDAU, L.D., and LIFSHITZ, E.M.: 'Theory of elasticity', Third edition (Butterworth-Heinemann, Oxford, 1995)*

21 *LANDAU, L.D., and LIFSHITZ, E.M.: 'Electrodynamics of continuous media', Second Edition (Pergamon Press, Oxford, 1984)*

22 *NYE, J.F.: 'Physical properties of crystals. Their representation by tensors and matrices' (Clarendon Press, Oxford, 1985)*

23 *KARLSSON, A., and KRISTENSSON, G.: 'Constitutive relations, dissipation and reciprocity for the Maxwell equations in the time domain', J. Electromagnetic Wavesand Applications, 1992, 6, (5/6), pp. 537-551*

24 *MOSSOTTI, O.F.: 'Discussione analitica suH'influenza che l'azione di un mezzo dielettrico ha sulla distribuzione dell'elettricita alia superficie di piu corpi elettrici disseminati in esso', Memorie di Matematica e di Fisica della Societa Italiana delle Scienze, (Modena), 1850, XXIV, Parte seconda, pp. 49-74*

25 *CLAUSIUS, R.J.E.: 'Die mechanische Behandlung der Electricitat', Abschnitt III (F. Vieweg, Braunschweig, 1879)*

26 *LORENZ, L.: 'Experimentale og theoretiske Undersoegelser over Legemernes Brydningsforhold', Det Kongelige Danske Videnskabernes Selskabs Skrifter, Naturvidenskabelig og mathematisk afdeling, 1869, Femte Raskke, Ottonde Bind, (8), pp. 205-248*

27 *LORENZ, L.: 'Ueber die Refractionsconstante', Annalen der Physik und Chemie, 1880, IX, (9), pp. 70-103*

28 *LORENTZ, H.A.: 'Ueber die Beziehung zwischen der Fortpflanzungsgeschwindigkeit des Lichtes und der Korperdichte', Annalen der Physik und Chemie, 1880, IX, (4), pp. 641-665*

29 *RAYLEIGH, Lord: 'On the influence of obstacles arranged in rectangular order upon the properties of the medium', Philosophical Magazine, 1892, 34, pp. 481-502*

30 *RAYLEIGH, Lord: 'On the incidence of aerial and electric waves upon small obstacles in the form of ellipsoids or elliptic cylinders, and on the passage of electric waves through a circular aperture in a conducting screen', Philosophical Magazine, 1897, 44, pp. 28-52*

31 *LAMPA, A.: 'Zur Theorie der Dielektrica' Sitzungsber. d. mathem.-naturw. Classe d. Akad. d. Wiss. Wien, 1895, 104, Abth. Il.a., pp. 681-723*

32 *MAXWELL GARNETT, J.C.: 'Colours in metal glasses and metal films', Trans, of the Royal Society, (London), CCIII, 1904, pp. 385-420*

33 *FARADAY, M.: 'Experimental researches in chemistry and physics' (Taylor and Francis, London, 1991), pp. 391-443*

34 *MIE, G.: 'Beitrage zur Optik triiber Medien, speziell kolloidaler Metallosungen', Annalen der Physik, 1908, 25, (3), pp. 377-445*

35 *WIENER, O.: 'Zur Theorie der refraktionskonstanten', Berichte iiber die Verhandlungen der Koniglich-Sdchsischen Gesellschaft der Wisseschaften zu Leipzig, Math.-phys. Klasse, 1910, 62, pp. 256-277*

36 *BURGER, H.C.: 'Das Leitvermogen verdunnter mischkristallfreier Legierungen', Physikalische Zeitschrift, 1919, 20, (4), pp. 73-75*

37 *EWALD, P.P: 'Zur Begriindung der Kristalloptik', Annalen der Physik, 1916, 49, (1), pp. 1-38; 49, (2), pp. 117-143*

38 *OSEEN, C.W.: 'Uber die Wechselwirkung zwischen zwei elektrischen Dipolen und iiber die Drehung der Polarisationsebene in Kristallen und Fliissigkeiten', Annalen der Physik, 1915, 48, (17), pp. 1-56*

39 *FAXEN, H.: 'Der Zusammenhang zwischen Maxwellschen Gleichungen fur Dielektrika und den atomistischen Ansatzen von H.A. Lorentz u.a.', Zeitschrift fur Physik, 1920, 2, (3), pp. 218-229*

40 *BRUGGEMAN, D.A.G.: 'Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen, I. Dielektrizitatskonstanten und Leitfahigkeiten der Mischkorper aus isotropen Substanzen', Annalen der Physik, 1935, Ser. 5, 24, pp. 636-664*

41 *CASIMIR, H.B.G., and GRADSTEIN, S. (Eds): 'An anthology of Philips research' (N.V. Philips Gloeilampenfabrieken; Centrex Publishing Co., Eindhoven, 1966)*

42 *DEBYE, P.: 'Einige Resultate einer kinetischen Theorie der Isolatoren', Physikalische Zeitschrift, 1912, 13, (3), pp. 97-100*

43 *ONSAGER, L.: 'Electric moments of molecules in liquids', Journal of the American Chemical Society, 1936, 58, (8), pp. 1486-1493*

44 *BOTTCHER, C.J.F.: 'Theory of electric polarisation' (Elsevier, Amsterdam, 1952)*

45 *M.C. Araújo et al. / Journal of Non-Crystalline Solids 387 (2014) 6–15*

46 *Z. Ahmad, A. Prasad, K. Prasad, A comparative approach to predicting effective dielectric, piezoelectric and elastic properties of PZT/PVDF composites, Phys. B Condens. Matter 404 (2009) 3637–3644.*
47 *C.W. Nan, Comment on "Effective dielectric function of a random medium", Phys. Rev. B 63 (2001).*
48 *F. Carpi, D. De Rossi, Improvement of electromechanical actuating performances of a silicone dielectric elastomer by dispersion of titanium dioxide powder, IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. 12 (2005) 835–843.*
49 *T. Furukawa, K. Ishida, E. Fukada, Piezoelectric properties in the composite systems of polymers and pzt ceramics, J. Appl. Phys. 50 (1979) 4904–4912.*
50 *W.E.A. Davies, The theory of composite dielectrics, J. Phys. D. Appl. Phys. 4 (1971) 318–328.*
51 *H. Looyenga, Dielectric constants of heterogeneous mixtures, Physica 31 (1965) 401–406.*
52 *W.R. Tinga,W.A.G. Voss, D.F. Blossey, Generalized approach to multiphase dielectric mixture theory, J. Appl. Phys. 44 (1973) 3897–3902.*
53 *D.J. Bergman, The dielectric constant of a composite material—a problem in classical physics, Phys. Rep. 43 (1978) 377–407.*
54 *N. Jayasundere, B.V. Smith, Dielectric constant for binary piezoelectric 0–3 composites, J. Appl. Phys. 73 (1993) 2462–2466.*
55 *Y.M. Poon, F.G. Shin, A simple explicit formula for the effective dielectric constant of binary 0–3 composites, J. Mater. Sci. 39 (2004) 1277–1281.*
56 *Z. Ahmad, A. Prasad, K. Prasad, A comparative approach to predicting effective dielectric, piezoelectric and elastic properties of PZT/PVDF composites, Phys. B Condens. Matter 404 (2009) 3637–3644.*
57 *G.F. Dionne, J.F. Fitzgerald, R.C. Aucoin, Dielectric-constants of paraffin-wax–TiO-2 mixtures, J. Appl. Phys. 47 (1976) 1708–1709.*
58 *T. Yamada, T. Ueda, T. Kitayama, Piezoelectricity of a high-content lead zirconate titanate/polymer composite, J. Appl. Phys. 53 (1982) 4328–4332.*
59 *C. Kittel, Introduction to Solid State Physics, John Wiley & Sons, 2004.*
60 *B. Lestriez, A. Maazouz, J.F. Gerard, H. Sautereau, G. Boiteux, G. Seytre, D.E. Kranbuehl, Is the Maxwell–Sillars–Wagner model reliable for describing the dielectric properties of a core-shell particle epoxy system? Polymer 39 (1998) 6733–6742.*
61 *A.H. Sihvola, J.A. Kong, Effective permittivity of dielectric mixtures, IEEE Trans. Geosci. Remote Sens. 26 (1988) 420–429.*
62 *Ari Sihvola, Mixing Rules with Complex Dielectric Coefficients,Subsurface Sensing Technologies and Applications Vol. 1, No. 4, 2000*
63 *Garnett, J.C., Maxwell, 1904, Colours in metal glasses and metal films, Trans. of the Royal Society, v. CCIII, p. 385–420, London.*
64 *Hashin, Z. and Shtrikman, S., 1962, A variational approach to the theory of the effective magnetic permeability of multiphase materials, J. of Applied Physics, v. 33, no. 10, p.3125–3131.*
65 *Landauer, R., 1978, Electrical conductivity in inhomogeneous media, American Institute of Physics Conference Proc. (Electrical transport and optical properties of inhomogeneous media), no. 40, p. 2–45.*
66 *Sihvola, A., 1999, Electromagnetic mixing formulas and applications, (Electromagnetic Waves Series, v. 47) The Institution of Electrical Engineers, London.*
67 *Priou, A., Sihvola, A., Tretyakov, S., and Vinogradov, A., eds., 1997, Advances in Complex Electromagnetic Materials, NATO ASI Series 3. High Technology, v. 28, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht.*
68 *Kreibig, U. and Vollmer, M., 1995, Optical properties of metal clusters, Springer Series in Materials Science, v. 25, Springer, New York.*

69 *Jackson, J.D., 1999, Classical Electrodynamics, Third Edition, Wiley, New York.*

70 *Kittel, C., 1986, Introduction to solid state physics. Sixth Edition, Wiley, New York.*

71 *Yaghjian, A.D., 1980, Electric dyadic Green's function in the source region, Proc. IEEE, v. 68, no. 2, p. 248–263.*

72 *Sihvola, A., 1991, ''Lorenz–Lorentz or Lorentz–Lorenz?'' August, 1991, IEEE Antennas and Propagation Magazine, v. 33, no. 4, p. 56.*

73 *Landau, L.D. and Lifshitz, E.M., 1984, Electrodynamics of continuous media, Second Edition, Oxford, Pergamon Press, Section 4.*

74 *Osborn, J.A., 1945, Demagnetizing factors of the general ellipsoid, The Physical Review, v. 67, no. 11–12, p. 351–357.*

75 *Stoner, E.C., 1945, The demagnetizing factors for ellipsoids, Philosophical Magazine, Ser. 7, vol. 36, no. 263, p. 803–821.*

76 *Sihvola, A. and Lindell, I.V., 1989, Polarizability and effective permittivity of layered and continuously inhomogeneous dielectric spheres, J. Electromagnetic Waves Applic., v. 3, no. 1, p. 37–60.*

77 *Polder, D. and van Santen, J.H., 1946, The effective permeability of mixtures of solids, Physica, v. XII, no. 5, p. 257–271.*

78 *Bruggeman, D.A.G., 1935, Berechnung verschiedener physikalischer konstanten von heterogenen substanzen, I. Dielektrizita¨tskonstanten und leitfa¨higkeiten der mischko¨rper aus isotropen substanzen, Annalen der Physik, 5. Folge, Band 24, p. 636–664.*

79 *Tsang, L., Kong, J.A., and Shin, R.T., 1985, Theory of microwave remote sensing, Wiley, New York.*

80 *Sihvola, A., 1989, Self-consistency aspects of dielectric mixing theories, IEEE Trans. Geosci. Remote Sensing, v. 27, no. 4, p. 403–415.*

81 *Birchak, J.R., Gardner, L.G., Hipp, J.W., and Victor, J.M., 1974, High dielectric constant microwave probes for sensing soil moisture, Proceedings of the IEEE, v. 62, no. 1, p. 93–98.*

82 *Looyenga, H., 1965, Dielectric constants of mixtures, Physica, v. 31, p. 401–406.*

83 *Ulaby, F.T., Moore, R.K., and Fung, A.K., 1986, Microwave remote sensing—Active and passive, v. III, Artech House, Norwood, Mass.*

84 *Sen, P.N., Scala, C., and Cohen, M.H., 1981, A self-similar model for sedimentary rocks with application to the dielectric constant of fused glass beads, Geophysics, v. 46, no. 5, p. 781–795.*

85 *Runge, I., 1925, Zur elektrischer leitfa¨higkeit metallischer aggregate, Zeitschrift fu¨ r technische Physik, 6. Jahrgang, Nr. 2, p. 61–68.*

86 *Meredith, R.E. and Tobias, C.W., 1960, Resistance to potential flow through a cubical array of spheres, J. Applied Physics, v. 31, no. 7, p. 1270–1273.*

87 *McPhedran, R.C. and McKenzie, D.R., 1978, The conductivity of lattices of spheres. I. The simple cubic lattice, Proceedings of the Royal Society of London, A, v. 359, p. 45–63.*

88 *McKenzie, D.R., McPhedran, R.C., and Derrick, G.H., 1978, The conductivity of lattices of spheres. II. The body centred and face centred cubic lattices. Proceedings of the Royal Society of London, A, v. 362, p. 211–232.*

89 *Doyle, W.T., 1978, The Clausius–Mossotti problem for cubic array of spheres, J. Applied Physics, v. 49, no. 2, p. 795–797.*

90 *Lam, J., 1986, Magnetic permeability of a simple cubic lattice of conducting magnetic spheres, J. Applied Physics, v. 60, no. 12, p. 4230–4235.*

91 *A.-M. Bottreau, Modélisation du comportement diélectrique des matériaux binaires, corrélation avec les lois des mélanges, J. Chim. Phys. (1998) 95, 617-641*

92 *A.M. Bottreau, (1997) J. Chim. Phys 94, 1 587*

93 *Lichtenecker K., (1927),Physik. Zeitschr.28, 417*

94 *Lichtenecker K., (1927),Physik. Zeitschr.30, 805*

95 *Lichtenecker K., (1918),Physik. Zeitschr.19, 374*

96 *Lichtenecker K., (1924),Physik. Zeitschr.25, 169*
97 *Lichtenecker K., (1924),Physik. Zeitschr.25, 194*
98 *Lichtenecker K., (1924),Physik. Zeitschr.25, 225*
99 *Lichtenecker K., (1926),Physik. Zeitschr.27, 115*
100 *Lichtenecker K., (1931),Physik. Zeitschr.32 255*
101 *Wiener 0, (1912),Abh. der Leipz. Akad. 32, 509*
102 *Grosse C. Greffe J. L., (1979), J. Chim. Phys .4, 76.*
103 *van Beek L. K. H., (1967), Prog.in Diel.7, 69.*
104 *Dukhin S. S., (1971), Surf Coll. Sci., 3,83*
105 *Birchäk J . R., Gardner C. G., Hipp J. E.,Victor J. M., (1974), Proc.Of IEEE 62 - 1,69*
106 *Looyenga H., (1965), Physica 31, 401.*
107 *Hanaï T., (1961), Bull. Inst. Chem. Res., (Kyoto Univ.), 39, 341*
108 *Hanaï T., (1961),Kolloidschr. 177,57*
109 *Hanaï T., Koisumi N., Gotoh R., (1962), Bull. Inst. chem. Rrs., (Kyoto Univ.), 40, 240*
110 *Bruggemnan D. A. G.; (1935) Ann. Phys. Lpz., 24, 636*
111 *Bottreau A. M., Sardos K., Ramdani Y ., Escarmant J. F., Merzouki A., (1992), Physica B, 182, 173*
112 *Böttcher C. J. F.,(1945), Rec.Trav. Chim.(Pays-Bas). 64,47*
113 *Landauer R., (1952), J . Appl. Phys., 23,779*
114 *Bottreau A. M.. Boutaudon A., Merzouki Ah., Merzouki Az., (1997),J. Chim. Phys., 94, 1568*
115 *Bottreau A. M., (1997), C.R.XIV^{iéme} Coll. OHD'97 (Conf. Invit), 114*

CHAPITRE 2

Théorie des lignes de transmission et spectroscopie temporelle.

2.1 Introduction

Une ligne de transmission est, en effet, une structure électromagnétique capable de faire propager des modes de champ, c'est-à-dire qu'elle admet toujours une solution de type «transverse électromagnétique». Pour qu'une onde TEM se propage à l'intérieur de la ligne, il est nécessaire que ledit système de symétrie de transmission soit formé de deux conducteurs ou plus.
Les trois types les plus courants de lignes de transmission sont:

- Ligne de transmission bifilaire. Elle est formée de deux fils parallèles séparés par une distance uniforme.
- Ligne de transmission plano-parallèle. Ce type de ligne est constitué de deux conducteurs plats et parallèles séparés par une mince couche diélectrique.
- Ligne de transmission coaxiale. Ce système comprend un conducteur interne et un conducteur externe coaxial au premier, séparés par un milieu diélectrique (les deux conducteurs sont en cuivre). Cette structure présente un avantage important: les champs électromagnétiques sont complètement confinés dans la région diélectrique entre les deux conducteurs. Dans le dispositif expérimental TDR, la ligne de transmission a une géométrie coaxiale.

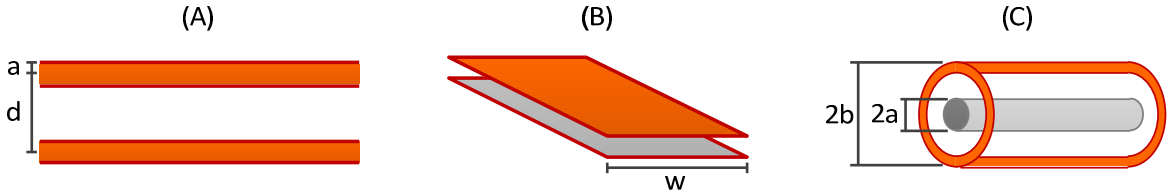


Figure 2.1: trois types de ligne de transmission

Dans cette section, nous allons procéder à un traitement théorique des lignes de transmission qui fournissent néanmoins des relations différentes. En principe, il est nécessaire d'étudier la ligne de transmission selon la théorie des circuits, ce qui nous permettra d'obtenir une expression générale de l'impédance caractéristique en tout point de la ligne. Par la suite, nous utiliserons la théorie électromagnétique dans le cas d'une ligne coaxiale.

2.2 Analyse de circuit d'une ligne de transmission

Dans ce qui suit, nous allons mettre en exergue les équations qui régissent une ligne de transmission uniforme formée de deux conducteurs. En particulier, notre étude porte sur une ligne de transmission finie, c'est-à-dire que nous examinerons un dispositif connectant une source à une impédance de charge Z_L. De plus, nous traiterons le cas où l'impédance interne du générateur est égale à l'impédance intrinsèque de la ligne, c'est-à-dire, nous avons une ligne adaptée au générateur.

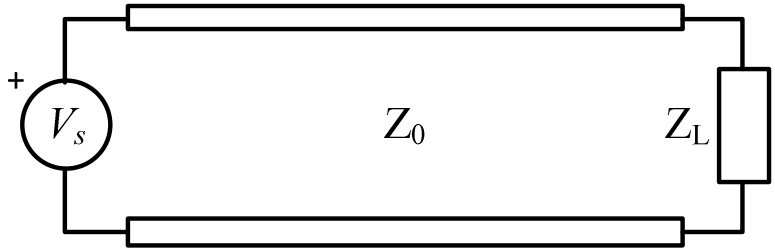


Figure 2.2: Ligne de transmission adaptée.

Pour développer la théorie des lignes de transmission, nous allons étudier son circuit équivalent. Pour cela, nous allons considérer une coordonnée z dont l'origine sera le point de connexion du générateur avec la ligne, comme indiqué sur la Figure 2.3:

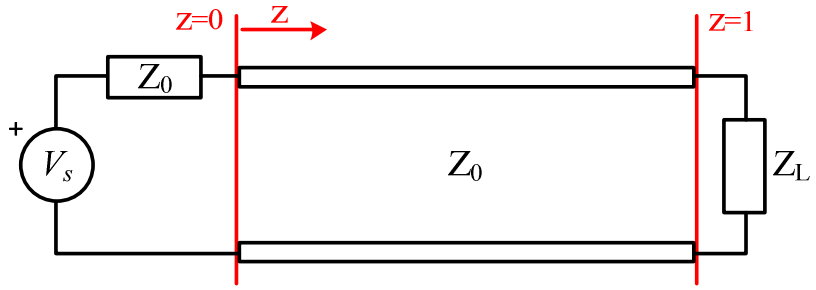


Figure 2.3: Circuit équivalent de la ligne de transmission.

Dans une situation réelle, nous devrons considérer le cas où la ligne de transmission subit des pertes. En particulier, le dispositif présentera des pertes ohmiques dans les conducteurs et des pertes diélectriques dans le milieu situé entre les conducteurs:

- Pertes au niveau des conducteurs. Si la conductivité électrique σ du conducteur a une valeur finie, le système aura une certaine résistance et une perte d'énergie par effet Joule.
- Pertes diélectriques. Deux types de pertes peuvent se produire dans un milieu diélectrique: les pertes dues à l'effet Joule et les pertes diélectriques. Les deux ont des effets similaires, qui doivent atténuer l'onde qui se propage à travers la ligne. Nous traiterons les deux pertes en même temps, en les englobant dans un paramètre appelé conductance G (inverse de la résistance).

Ainsi, si nous tenons compte de tout ce qui précède, nous pouvons remplacer un élément de la ligne de longueur Δz par le circuit équivalent suivant:

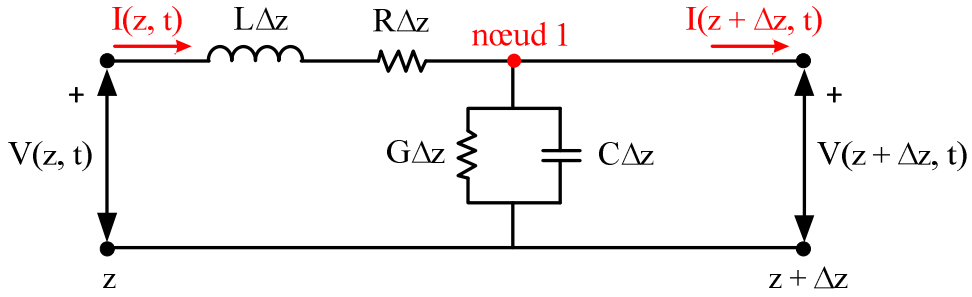


Figure 2.4: Circuit équivalent d'un élément de la ligne de longueur Δz

En appliquant au nœud 1 du circuit précédent les première et deuxième lois de Kirchhoff, nous aurons:

$$V(z,t) - V(z+\Delta z,t) - L.\Delta z.\frac{dI(z,t)}{dt} - R.\Delta z.I(z,t) = 0 \quad (2.1)$$

$$I(z,t) - I(z+\Delta z,t) - G.\Delta z.V(z,t) - C.\Delta z.\frac{dV(z,t)}{dt} = 0 \quad (2.2)$$

Il est à noter que $V(z,t)$ et $V(z+\Delta z,t)$ représentent les tensions instantanées en z et $z+\Delta z$, respectivement. De manière analogue, $I(z,t)$ et $I(z+\Delta z,t)$ désignent les intensités instantanées en z et $z+\Delta z$. Prenons le cas limite lorsque Δz tend vers zéro et exprimons les équations en notation tenseur comme suit:

$$-\frac{dV(z)}{dz} = (R + j.L.\omega).I(z) \quad (2.3)$$

$$-\frac{dI(z)}{dz} = (G + j.C.\omega).V(z) \quad (2.4)$$

Ces deux expressions sont appelées équations de télégraphistes et sont des équations harmoniques dans le temps. En supprimant à la fois l'intensité et la tension des deux équations, on obtient:

$$\frac{d^2V(z)}{dz^2} - \gamma^2.V(z) = 0 \tag{2.5}$$

$$\frac{d^2I(z)}{dz^2} - \gamma^2.I(z) = 0 \tag{2.6}$$

Où $\gamma = \alpha + j\beta = \sqrt{(R + j\omega L)(G + j\omega C)}$ représente la constante de propagation.
Ces deux dernières équations sont appelées équations d'onde pour la tension et le courant et leur solution générale est donnée par:

$$V(z) = V^+(z) + V^-(z) = V_0^+.e^{-\gamma.z} + V_0^-.e^{\gamma.z} \tag{2.7}$$

$$I(z) = I^+(z) + I^-(z) = I_0^+.e^{-\gamma.z} + I_0^-.e^{\gamma.z} \tag{2.8}$$

Où, V_0^+, V_0^-, I_0^+ et I_0^- sont les amplitudes des ondes progressives à droite positives et à gauche négatives de tension et d'intensité, respectivement.
Les valeurs de: V_0^+, V_0^-, I_0^+ et I_0^- peuvent être reliées par l'expression suivante à l'impédance caractéristique du milieu:

$$Z_0 = \frac{V_0^+}{I_0^+} = \frac{V_0^-}{I_0^-} \tag{2.9}$$

Où l'impédance caractéristique de la ligne est donnée par:

$$Z_0 = \sqrt{\mu/\varepsilon} \tag{2.10}$$

Où, ε et μ sont respectivement la constante diélectrique et la perméabilité magnétique du milieu entre les éléments de la ligne. D'autre part, nous devons garder à l'esprit que dans la terminaison de la ligne de transmission ($z = l$), nous avons:

$$V(l) = Z_L.I(l) \tag{2.11}$$

et la tension et l'intensité au point $z = l$ sont définies par :

$$V(l) = V_0^+.e^{-\gamma.l} + V_0^-.e^{\gamma.l} \tag{2.12}$$

$$I(l) = I_0^+.e^{-\gamma.l} + I_0^-.e^{\gamma.l} = \frac{V_0^+}{Z_0}.e^{-\gamma.l} - \frac{V_0^-}{Z_0}.e^{\gamma.l} \tag{2.13}$$

Si nous développons les équations précédentes V_0^+ et V_0^-, nous pouvons obtenir les deux grandeurs en fonction de la tension et de l'intensité à la fin de la ligne de transmission:

$$V_0^+ = \frac{e^{\gamma.l}}{2}.[V(l) + Z_0.I(l)] = \frac{e^{\gamma.l}}{2}.[(Z_l + Z_0).I(l)] \tag{2.14}$$

$$V_0^- = \frac{e^{-\gamma.l}}{2}.[V(l) - Z_0.I(l)] = \frac{e^{-\gamma.l}}{2}.[(Z_l - Z_0).I(l)] \tag{2.15}$$

En substituant les expressions obtenues pour les composantes de la tension, V_0^+ et V_0^- dans les équations (2.12) et (2.13), on obtient les équations suivantes, qui nous définiront la tension et l'intensité dans la ligne de transmission en fonction de l'impédance caractéristique Z_0 et l'impédance de charge Z_L:

$$V(z) = \frac{I(l)}{2}.[(Z_l + Z_0).e^{\gamma.(l-z)} + (Z_l + Z_0).e^{-\gamma.(l-z)}] \tag{2.16}$$

$$I(z) = \frac{I(l)}{2.Z_0}.[(Z_l + Z_0).e^{\gamma.(l-z)} - (Z_l + Z_0).e^{-\gamma.(l-z)}] \tag{2.17}$$

Il est intéressant de définir un paramètre essentiel dans les développements théoriques ultérieurs, qui est le coefficient de réflexion, défini comme le rapport entre l'amplitude de la tension réfléchie et la tension incidente:

$$\Gamma = \frac{V^-}{V^+} = \frac{Z_L - Z_0}{Z_L + Z_0} \tag{2.18}$$

Qui peut être exprimé sous forme d'argument puisque son module est toujours inférieur ou égal à l'unité:

$$\Gamma = |\Gamma|e^{j\theta}$$

Si l'origine des distances est prise dans la charge, il convient d'introduire une nouvelle variable $z' = l - z$, donc les équations (2.16) et (2.17) prennent la forme suivante:

$$V(z') = \frac{I(l)}{2}.[(Z_L + Z_0).e^{\gamma.z'} + (Z_L + Z_0).e^{-\gamma.z'}] \quad (2.19)$$

$$I(z') = \frac{I(l)}{2.Z_0}.[(Z_L + Z_0).e^{\gamma.z'} - (Z_L + Z_0).e^{-\gamma.z'}] \quad (2.20)$$

Maintenant, les expressions ci-dessus peuvent être simplifiées en utilisant des fonctions hyperboliques. Ainsi, en prenant en compte que:

$$e^{\gamma.z'} + e^{-\gamma.z'} = 2.\cosh(\gamma.z') \; y \; e^{\gamma.z'} - e^{-\gamma.z'} = 2.\sinh(\gamma.z')$$

Nous pouvons écrire les équations (2.19) et (2.20) comme suit:

$$V(z') = I(l).[Z_L.\cosh(\gamma.z') + Z_0.\sinh(\gamma.z')] \quad (2.21)$$

$$I(z') = \frac{I(l)}{Z_0}.[Z_L.\sinh(\gamma.z') + Z_0.\cosh(\gamma.z')] \quad (2.22)$$

De cette manière, on peut obtenir l'impédance en tout point de la ligne située à une distance z'de la charge:

$$Z(z') = \frac{V(z')}{I(z')} = Z_0.\frac{Z_L.\cosh(\gamma.z') + Z_0.\sinh(\gamma.z')}{Z_L.\sinh(\gamma.z') + Z_0.\cosh(\gamma.z')} \quad (2.23)$$

Ou bien

$$Z(z') = Z_0.\frac{Z_L + Z_0.\tanh(\gamma.z')}{Z_0 + Z_L.\tanh(\gamma.z')} \quad (2.24)$$

Enfin, il convient de noter qu'au point $z' = l$, le générateur est vu par la ligne de transmission comme une impédance d'entrée, Z_i dont la valeur sera donnée par:

$$Z_i = Z(l) = Z_0.\frac{Z_L + Z_0.\tanh(\gamma.l)}{Z_0 + Z_L.\tanh(\gamma.l)} \quad (2.25)$$

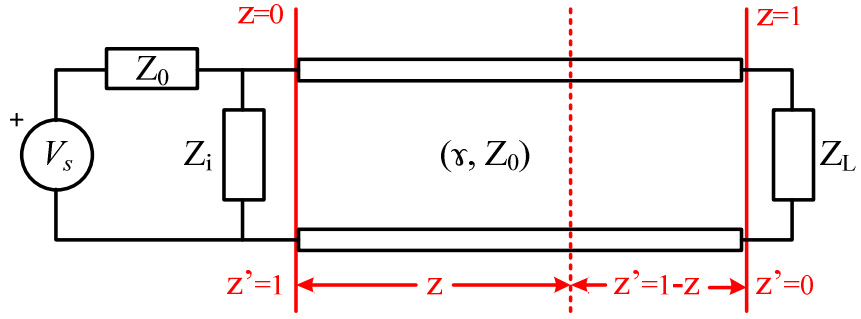


Figure 2.5: Ligne de transmission finie et terminée par une impédance de charge Z_L et par une impédance d'entrée Z_i

Nous avons considéré le cas le plus général d'une ligne de transmission uniforme et finie, intégrée dans un circuit d'impédance d'entrée et de sortie. Dans ce développement, il est nécessaire d'étudier un cas plus simple qui est la ligne idéale sans pertes. On dit qu'une ligne de transmission sans perte est une ligne dans laquelle les conducteurs de la ligne sont parfaits ($\sigma_c = \infty$) et le milieu diélectrique qui les sépare n'a aucune conductivité ($\sigma = 0$).

Il est évident que ces conditions supposent que $R = G = 0$ et, à partir de ces conditions, on peut simplifier la valeur de la constante de propagation:

$$\gamma = j\beta = j\omega\sqrt{LC} \quad (2.26)$$

Puisque l'atténuation α est nulle. Maintenant, en considérant l'expression du coefficient de réflexion sous forme d'argument, nous pouvons écrire la tension et l'intensité en tout point z'de la ligne sans pertes sous la forme suivante:

$$V(z') = \frac{I(l)}{2}.(Z_L + Z_0).e^{j.\beta.z'}.\left[1 + |\Gamma|.e^{j.[\theta_\Gamma - 2.\beta.z']}\right] \tag{2.27}$$

$$I(z') = \frac{I(l)}{2.Z_0}.(Z_L + Z_0).e^{j.\beta.z'}.\left[1 - |\Gamma|.e^{j.[\theta_\Gamma - 2.\beta.z']}\right] \tag{2.28}$$

Dans ce cas, étant donné que la tension et l'intensité dans la ligne constituent une onde stationnaire, il est commode de définir la quantité connue sous le nom de rapport d'onde stationnaire (S.W.R). Cette magnitude est le rapport entre les tensions maximum et minimum:

$$S = \frac{|V_{MAX}|}{|V_{MIN}|} = \frac{1 + |\Gamma|}{1 - |\Gamma|} \tag{2.29}$$

L'inverse de cette équation, à savoir le coefficient de réflexion en fonction de S.W.R, est donné comme suit:

$$|\Gamma| = \frac{S - 1}{S + 1} \tag{2.30}$$

Nous étudierons ensuite une série de cas particuliers en relation avec la valeur que prend l'impédance de charge. Ainsi, nous distinguerons trois cas généraux qui sont premièrement La ligne ouverte ($Z_L = \infty$). Dans ce cas, l'intensité à la fin de la ligne est égale à zéro $I(l) = 0$, la relation ci-dessous doit donc être remplie:

$$I^+(l) + I^-(l) = 0 \qquad \Rightarrow \quad \frac{V^+(l)}{Z_L} - \frac{V^-(l)}{Z_L} = 0$$

et puisqu'il s'agit de $V^+(l) = V^-(l)$, le coefficient de réflexion d'une ligne ouverte est $\Gamma = 1$. Il s'ensuit que le rapport de l'onde stationnaire selon (2.29) est $S \to \infty$. L'impédance en tout point de la ligne (selon (2.24)) est simplifiée par:

$$Z(z') = Z_0.\frac{1 + \frac{Z_0}{Z_L}.\tanh(\gamma.z')}{\frac{Z_0}{Z_L} + 1.\tanh(\gamma.z')} \cong \frac{Z_0}{\tanh(\gamma.z')} \tag{2.31}$$

Deuxièmement, la ligne court-circuitée ($Z_L = 0$). Dans ce cas, la tension en bout de ligne est nulle $V\,(l) = 0$. Par conséquent, il faudra que $V^+(l) = -V^-(l)$ soit respecté. Ainsi, dans la ligne court-circuitée, le coefficient de réflexion est $\Gamma = -1$ et le rapport d'onde stationnaire est $S = 0$. L'impédance en tout point de la ligne est:

$$Z(z') = Z_0.\tanh(\gamma.z') \tag{2.32}$$

Et troisièmement, la ligne adaptée ($Z_L = Z_0$). Dans ce cas, puisque l'impédance de charge Z_L est égale à l'impédance caractéristique de la ligne Z_0, au moyen de (2.18), le coefficient de réflexion est $\Gamma = 0$ et donc $S = 1$. l'impédance de la ligne sera donnée par:

$$Z(z') = Z_0 \tag{2.33}$$

2.3 Analyse électromagnétique d'une ligne de transmission.

Maintenant, nous allons considérer que le milieu diélectrique entre les conducteurs du guide est un diélectrique linéaire, homogène et isotrope. De plus, nous supposons qu'il n'ya pas de charge libre ($\sigma = 0$) et que la ligne de transmission qui la contient n'a pas de pertes. Dans ce cas, les équations de Maxwell que nous allons commencer dans ce développement sont simplifiées:

$$\vec{\nabla}.\vec{\mathrm{E}} = 0 \tag{2.34 a}$$

$$\vec{\nabla}.\vec{\mathrm{H}} = 0 \tag{2.34 b}$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\mathrm{E}} = -\mu.\frac{\partial \vec{\mathrm{H}}}{\partial t} \tag{2.34 c}$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\mathrm{E}} = \varepsilon.\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \tag{2.34 d}$$

Où μ et ε sont respectivement la perméabilité et la permittivité du milieu.

À partir des équations de Maxwell, nous pouvons obtenir l'équation d'onde du champ électrique pour le milieu diélectrique. Pour cela, nous devons tenir compte de l'équation (2.34a) tout en appliquant une identité vectorielle:

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{\mathrm{E}} = \vec{\nabla}\left(\vec{\nabla}.\vec{\mathrm{E}}\right) - \vec{\nabla}^2\vec{\mathrm{E}} = -\vec{\nabla}^2\vec{\mathrm{E}} \tag{2.35}$$

D'autre part, cette même formule peut être obtenue à partir de l'équation (2.34c):

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{\mathrm{E}} = -\mu\frac{\partial}{\partial t}\left(\vec{\nabla} \wedge \vec{\mathrm{H}}\right) = -\varepsilon.\mu.\frac{\partial^2\vec{\mathrm{E}}}{\partial t^2} \tag{2.36}$$

L'égalité des deux expressions donne l'équation de propagation du champ électrique sur la ligne:

$$\vec{\nabla}^2\vec{\mathrm{E}} - \varepsilon.\mu.\frac{\partial^2\vec{\mathrm{E}}}{\partial t^2} = 0 \tag{2.37}$$

et par analogie,

$$\vec{\nabla}^2\vec{H} - \varepsilon.\mu.\frac{\partial^2\vec{H}}{\partial t^2} = 0 \tag{2.38}$$

Nous nous concentrerons exclusivement sur le champ électrique et nous considérerons que sa solution est de type harmonique:

$$\vec{\mathrm{E}} = \vec{\mathrm{E}}_0.\exp(j.\omega.t - \gamma.z) \tag{2.39}$$

Où z est le sens de propagation de l'onde électromagnétique. En ce qui concerne la constante de propagation γ, il s'agira d'un nombre complexe avec une composante réelle, α, appelée constante

d'atténuation et une composante imaginaire, β, constante de phase, définie précédemment. Si nous remplaçons (2.39) dans l'équation d'onde et simplifions, l'expression est réduite à:

$$\gamma = \alpha + j\beta = \sqrt{\varepsilon\mu} \tag{2.40}$$

Rappelons que la vitesse de phase d'une onde est définie par $v = 1/\beta$. On peut déduire de l'équation ci-dessus que:

$$v = \frac{1}{Re(\varepsilon.\mu)^{1/2}} \tag{2.41}$$

Dans ce développement, nous ne considérons pas que la constante diélectrique ou la perméabilité soient relatives. Au cas où les valeurs relatives au vide seraient nécessaires, elles seraient obtenues en divisant (respectivement) par ε_0 ou μ_0.
Un paramètre nécessaire dans la description d'une ligne de transmission est son impédance. Auparavant, dans l'équation (2.10), nous avons donné sa définition, mais nous pouvons la déduire du modèle:

$$Z = \frac{V}{I} = \frac{E}{H} = j.\omega.\frac{\mu}{\gamma} = \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}} \tag{2.42}$$

Nous allons maintenant déduire l'impédance caractéristique dans le cas particulier d'une ligne coaxiale en fonction des rayons du conducteur intérieur a et de l'extérieur b. Pour cela, nous partons de l'idée que seuls les modes transversaux du champ (que nous désignerons par ρ E et φ) se propagent à travers la ligne.
En travaillant en coordonnées polaires, le champ électrique en un point P à l'intérieur de la ligne sera donné par:

$$E_\rho = \frac{E_0}{r}.e^{j.k.z} \tag{2.43}$$

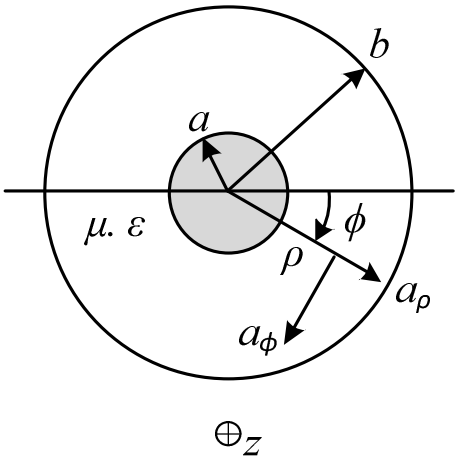


Figure 2.6: Géométrie coaxiale.

Où, $k = \omega\sqrt{\varepsilon \cdot \mu}$ est la constante de propagation. Pour obtenir le champ magnétique perpendiculaire à ρ, nous devons garder à l'esprit que, au moyen des équations de Maxwell, les deux champs sont liés:

$$H_\phi = \frac{1}{\sqrt{\mu/\varepsilon}}.E_\rho \tag{2.44}$$

Pour obtenir la tension, nous intégrons le champ entre les limites a et b, ce qui donne la relation suivante:

$$V = \int_a^b E_\rho \, dr = E_0.\ln\left(\frac{b}{a}\right).e^{j.k.z} \tag{2.45}$$

Et l'intensité qui circule dans le conducteur est donnée par:

$$I = \int_c H_\phi \, ds = 2.\pi.E_0.\sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}}.e^{j.k.z} \tag{2.46}$$

Une fois que nous connaissons la tension et l'intensité, nous pouvons procéder à l'obtention de l'impédance caractéristique de la ligne coaxiale:

$$Z = \frac{1}{2.\pi}.\sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}}.\ln\left(\frac{b}{a}\right) \tag{2.47}$$

En général, la plupart des matériaux n'ont pas de réponse magnétique et l'on considère donc $\mu \approx 1$. Soulignons que lorsque la ligne est remplie d'un milieu de constante diélectrique relative $\varepsilon_r^*(\omega)$, l'impédance caractéristique est:

$$Z = \frac{1}{2.\pi}.\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0.\varepsilon_r^*}}.\ln\left(\frac{b}{a}\right) \tag{2.48}$$

Avec ce modèle, nous avons réussi à mettre en relation les paramètres de la ligne tels que ses dimensions et son impédance, avec la propriété diélectrique que nous allons étudier, à savoir la constante diélectrique.

2.4 Le régime transitoire dans les lignes de transmission

Si une onde électromagnétique est envoyée le long d'une ligne de transmission, toute discontinuité dans ledit guide sera à l'origine d'une onde réfléchie qui nous permettra d'obtenir des informations sur l'amplitude et la position de la nouvelle impédance. Pour introduire cette idée, considérons le cas le plus simple constitué par une ligne sans perte qui connecte un générateur de tension d'impédance résistif interne R_S à une charge de résistance R_L

À $t = 0$, le commutateur qui connecte le générateur à la ligne se ferme. À ce moment, une onde initiale se propage sans être influencée par la charge placée à la fin. Ainsi, au point $z_0 = 0$ et à un instant $t_0 = 0^+$, l'intensité et la tension de l'onde initiale seront données par:

$$I_1^+ = I(z_0, t_0) = \frac{V_s}{R_s + Z_0} \tag{2.49 a}$$

$$V_1^+ = V(z_0, t_0) = \frac{Z_0}{R_s + Z_0}.V_s \tag{2.49 b}$$

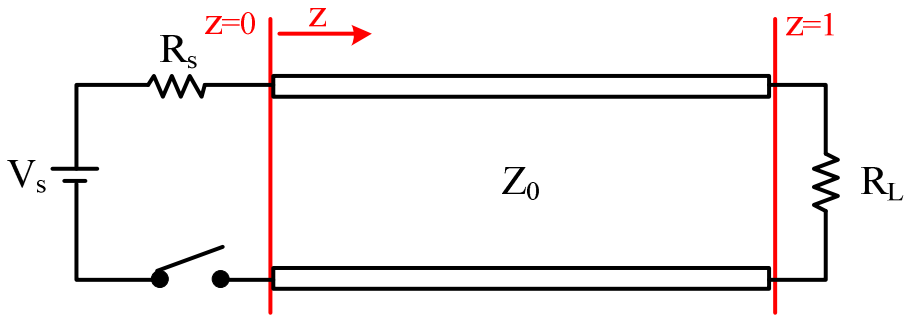


Figure 2.7: Ligne de transmission d'impédance caractéristique Z_0 et longueur l

Ainsi, après la fermeture du commutateur, l'onde se propage à la charge avec une vitesse :

$$v = 1/(L \cdot C)^{1/2}$$

De sorte que le front d'onde prendra un temps $t = (L/C)$ pour atteindre la charge. A cet instant et pour $z_1 = l$, la tension et le courant dans la charge seront la superposition des ondes incidente et réfléchie:

$$V(z_1, t_1) = V_1^+ + V_1^- = (1 + \Gamma_L).V_1^+ \qquad (2.50\ a)$$

$$I(z_1, t_1) = I_1^+ + I_1^- = (1 + \Gamma_L).I_1^+ \qquad (2.50\ b)$$

Ainsi, nous considérons que le coefficient de réflexion au niveau de la charge est le suivant:

$$\Gamma_L = \frac{R_L - Z_0}{R_L + Z_0} \qquad (2.51)$$

Ensuite, les ondes réfléchies $I_1^- = \Gamma_L \cdot I_1^+$ et $V_1^- = \Gamma_L \cdot V_1^+$ se rendent au générateur (les ondes incidentes continuent à se propager du générateur à la charge) avec la vitesse $v = 1/(L \cdot C)^{1/2}$ À l'instant $t_2 = 2t_1$, les ondes réfléchies atteignent le générateur, où la désadaptation d'impédances crée une nouvelle onde réfléchie progressive:

$$V(z_0, t_2) = V_2^+ + V_1^- = \Gamma_S.\Gamma_L.V_1^+ + (1 + \Gamma_L).V_1^+ = (1 + \Gamma_L + \Gamma_L.\Gamma_S).V_1^+ \qquad (2.52a)$$

$$I(z_0, t_2) = I_2^+ + I_1^- = -\Gamma_S.(-\Gamma_L.V_1^+) + (1 - \Gamma_L).I_1^+ = (1 - \Gamma_L + \Gamma_L.\Gamma_S).I_1^+ \qquad (2.52b)$$

Γ_s est le coefficient de réflexion dans le générateur, qui est donné par:

$$\Gamma_S = \frac{R_S - Z_0}{R_G + Z_0} \qquad (2.53)$$

V_2^+ et I_2^+ sont les ondes réfléchies qui vont se superposer aux précédentes:

$$V_2^+ = \Gamma_S.\Gamma_L.V_1^+ \qquad (2.54a)$$

$$I_2^+ = -\Gamma_S.(-\Gamma_L.V_1^+) \qquad (2.54b)$$

Cette nouvelle onde progressive se dirige vers la charge, où elle arrive à $t_3 = 3 \cdot t_1$, moment auquel une nouvelle onde régressive est générée: le processus de réflexion multiple peut être vu plus facilement par les diagrammes de mailles de Bewley [1]:

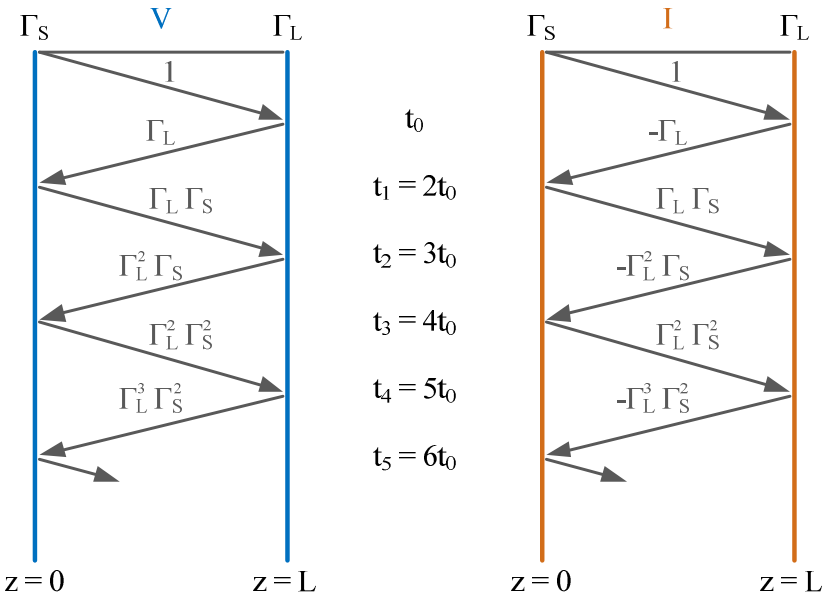


Figure2.8: Processus de réflexion multiple sur la ligne de transmission.

Il convient de noter que, bien qu'idéalement, compte tenu de la ligne sans pertes, le régime transitoire continue indéfiniment, ce fait n'est pas vrai car il s'agit d'un processus convergent (toujours multiplié par un coefficient de réflexion inférieur à 1). Ce qui se passe réellement est que les transitoires diminuent à de si petites valeurs, après un certain nombre de réflexions, et la tension V, lorsque T tend à l'infini, peut être obtenue en faisant le développement suivant:

$$V_L = V_1^+ + V_1^- + V_2^+ + V_2^- + V_3^+ + \cdots = V_1^+ . (1 + \Gamma_L + \Gamma_S . \Gamma_L + \Gamma_S . \Gamma_L^2 + \Gamma_S^2 . \Gamma_L^2 + \cdots)$$

ou bien:

$$V_L = V_1^+ . [(1 + \Gamma_S . \Gamma_L + \Gamma_S^2 . \Gamma_L^2 + \cdots) + \Gamma_L . (1 + \Gamma_S . \Gamma_L + \Gamma_S^2 . \Gamma_L^2 + \cdots)] \quad (2.55)$$

Gardant à l'esprit qu'une série du type géométrique apparaît:

$$1 + \Gamma_S . \Gamma_L + \Gamma_S^2 . \Gamma_L^2 + \cdots = \frac{1}{1 - \Gamma_S . \Gamma_L} \quad (2.56)$$

Ainsi, en utilisant ce résultat mathématique, une relation assez simple est obtenue:

$$V_L = V_1^+ . \frac{1 + \Gamma_L}{1 - \Gamma_S . \Gamma_L} \quad (2.57)$$

La substitution des valeurs des coefficients de réflexion Γ_L et Γ_S conformément aux équations (2.51) et (2.53), respectivement, conduit à:

$$V_L = V_0 . \frac{1 + R_L}{R_S + R_L} \quad (2.58)$$

2.5 La spectroscopie temporelle

La spectroscopie en domaine temporel en tant que moyen de caractérisation des matériaux diélectriques requiert deux volets essentiels, le premier consiste en un système de mesure par réflectométrie temporelle RDT, dont les composants sont principalement: un générateur d'échelon, une ligne de transmission (coaxiale) et un oscilloscope à échantillonnage [2-13], alors que le deuxième est, en fait, un outil d'acquisition dont le rôle se résume à un stockage et traitement des données issues du système de mesure. Pour répondre à ce besoin, il suffit d'interfacer un ordinateur doté d'un logiciel approprié avec le premier système.
Le schéma synoptique ci-dessous élucide les différents composants de l'instrumentation dédiée à la spectroscopie.

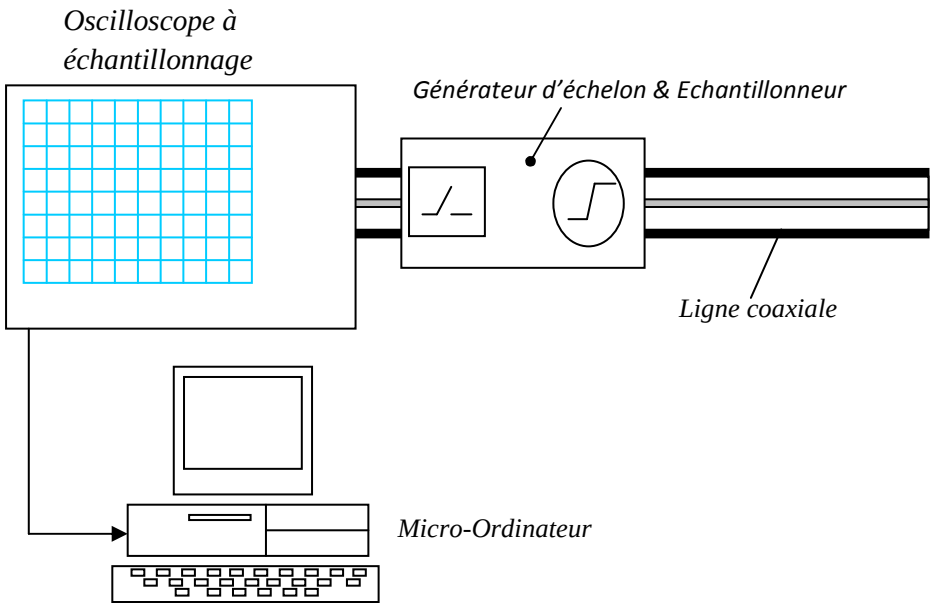


Figure 2.9: L'instrumentation utilisée en spectroscopie

- **Le principe**

Le principe est simple, et il consiste à faire propager un échelon de tension doté d'un temps de montée très bref de l'ordre de 20 à 30 ps le long d'une ligne coaxiale supposée sans pertes, et étudier la réponse (la réflexion) résultante d'un échantillon, placé au bout de cette ligne. Grâce au coefficient de réflexion propre à l'échantillon mesuré, il est possible de déduire les paramètres électromagnétiques, en d'autres termes, les propriétés diélectriques de ce dernier. Dans notre cas, il s'agit de matériaux diélectriques, donc nous avons intérêt à étudier le comportement diélectrique voire la permittivité complexe sur une large bande de fréquence.
D'un point de vue expérimental, les méthodes propres à la SDT sont généralement basées sur l'étude et l'analyse du coefficient de réflexion. Il existe, en fait, quatre méthodes qui sont: [2, 4, 14]:
- 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.

Il est à noter que le choix de la méthode de la SDT est tributaire de conditions expérimentales ainsi que des spécifications propres à la méthode choisie.

2.6 Les méthodes expérimentales relatives à la RDT

2.6.1La méthode de la première réflexion

Comme son nom l'indique, cette méthode s'intéresse uniquement à la première réflexion qui surgit au niveau du premier dioptre constitué par les deux milieux, air- échantillon. Il est à noter, dans ce contexte, que la ligne utilisée lors de notre travail est celle à air. Par contre, dans le cas des réflexions multiples, l'onde réfléchie totale présente la superposition des réflexions issues deux dioptres.

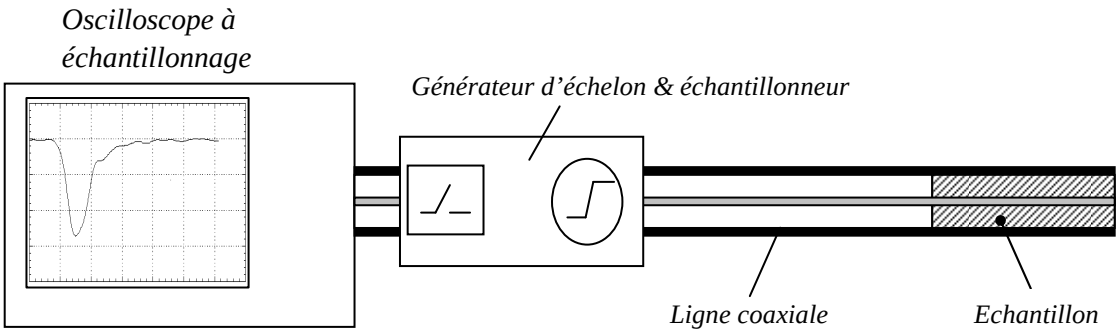


Figure 2.10: Dispositif expérimental pour la première réflexion.

Dans cette méthode, il est primordial d'éliminer la contribution des autres réflexions résultantes du deuxième dioptre. Pour cela, il faut que les échantillons soient suffisamment longs. Ainsi, le coefficient de réflexion au niveau du premier dioptre peut s'écrire par la relation suivante:

$$R(\omega) = \frac{Z_{cd} - Z_c}{Z_{cd} + Z_c} \tag{2.59}$$

Où, $Z_c$et Z_{cd} sont respectivement l'impédance caractéristique de la ligne, et celle du tronçon de la ligne chargé par l'échantillon.

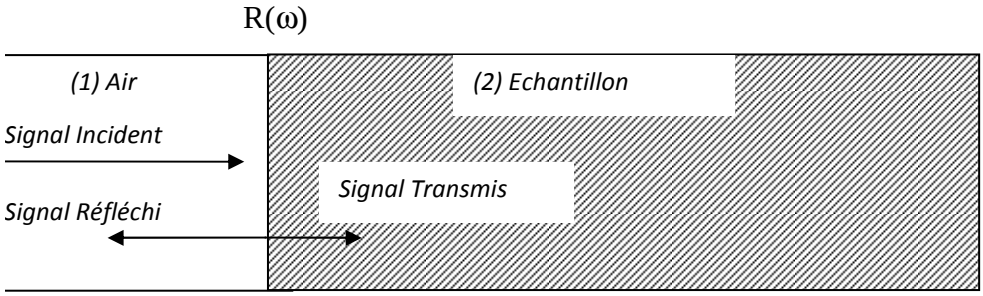


Figure 2.11: Les réflexions dans le cas d'un long échantillon.

En réalité

$$Z_{cd} = Z_c.\sqrt{\varepsilon_r.\mu_r}$$

Ce qui nous mène à écrire:

$$R(\omega) = \frac{1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{1 + \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}} \tag{2.60}$$

$$\sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}} = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega)} \tag{2.61}$$

Sachant que $\varepsilon_r^* = \varepsilon_r' - j\varepsilon_r''$ et $\mu_r^* = \mu_r' - j\mu_r''$
En vue de simplifier la lisibilité des équations, nous avons négligé l'astérisque tout en gardant à l'esprit qu'il s'agit bien des grandeurs complexes.
Il ne faut pas oublier que cette étude porte essentiellement sur la caractérisation des matériaux composites de nature diélectrique dont la perméabilité est voisine à l'unité, ce qui permet de simplifier encore la relation précédente à

$$\sqrt{\varepsilon_r} = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega)} \tag{2.63}$$

Nous pouvons développer cette expression en nous appuyant sur la nature complexe de la grandeur R(ω)

$$R(\omega) = R'(\omega) + jR''(\omega) \tag{2.64}$$

$$\sqrt{\varepsilon_r} = \frac{1 - R'(\omega) - jR''(\omega)}{1 + R'(\omega) + jR''(\omega)} \tag{2.65}$$

Si nous procédons à la séparation des deux parties, réelle et imaginaire, nous obtenons:

$$\sqrt{\varepsilon_r} = a - jb = \frac{1 - R'(\omega) - jR''(\omega)}{1 + R'(\omega) + jR''(\omega)} \tag{2.66}$$

$$\begin{cases} a = \dfrac{1 - R'(\omega)^2 - R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \\ b = \dfrac{-2R''(\omega)}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \end{cases} \tag{2.67}$$

Nous savons que $\varepsilon_r' = a^2 - b^2$ et $\varepsilon_r'' = 2ab$
Ce qui nous conduit à écrire:

$$\begin{cases} \varepsilon_r' = \left(\dfrac{1 - R'(\omega)^2 - R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2}\right)^2 - \left(\dfrac{-2R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2}\right)^2 \\ \varepsilon_r'' = 2.\dfrac{1 - R'(\omega)^2 - R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} . \dfrac{-2R''(\omega)^2}{1 + R'(\omega)^2 + R''(\omega)^2} \end{cases} \tag{2.68}$$

En vue de déterminer la permittivité complexe, nous devons déduire en premier lieu le coefficient de réflexion complexe de notre échantillon. Cette opération est possible en vertu de la STD, malgré la simplicité de la méthode en question, celle-ci nécessite des échantillons très longs. En

conséquence, elle présente un vrai écueil notamment dans le cas où les matériaux constituants sont trop coûteux.

2.6.2 Les méthodes des réflexions multiples

Comme nous l'avons déjà mentionné, les méthodes des réflexions multiples prennent en compte la totalité des réflexions engendrées par les deux dioptres (air-échantillon et échantillon-charge terminale) lors du passage de l'onde incidente à savoir l'échelon de tension à traves ces derniers, donc le coefficient de réflexion au niveau du premier dioptre devrait porter la contribution de toutes ces réflexions.

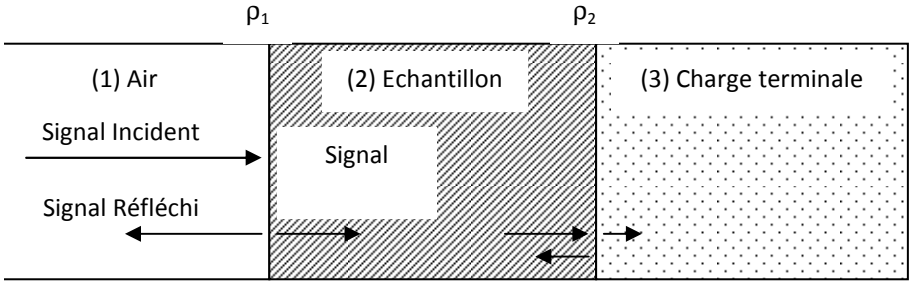


Figure 2.12: Le processus des réflexions multiples en présence d'un échantillon et d'une charge terminale

Il s'avère très utile d'entamer cette étude par l'analyse d'une réflexion d'onde plane par un dioptre plan. D'après la figure ci-dessus, nous constatons, à l'interface existant entre les deux milieux (air-échantillon), l'apparition d'une onde réfléchie et d'une onde transmise, cette dernière va se propager le long du deuxième milieu à savoir notre échantillon avec une constante de propagation ayant trait de manière directe à la constante diélectrique du matériau en question selon l'équation suivante:

$$\gamma_2 = j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r.\mu_r}$$

Et dès qu'elle rencontre le deuxième dioptre (échantillon-charge terminale), le processus se répétera, mais cette fois-ci la partie réfléchie va être renvoyée vers le premier dioptre, ce qui va donner naissance également à deux autres ondes, réfléchie et transmise. L'onde transmise du milieu (2) vers le milieu (1) va s'additionner à l'onde réfléchie fondamentale (c'est-à-dire celle issue de la première réflexion).

Donc à la fin, l'onde réfléchie totale sera la somme des ondes réfléchies secondaires, dont l'origine est due aux réflexions multiples, et l'onde réfléchie fondamentale, ce qui nous permet d'écrire:

$$E_r = E_{r0} + E_{r1} + \cdots = \sum_{i=0}^{\infty} E_{ri} \tag{2.69}$$

À ce moment-là, le coefficient de réflexion totale est donné par cette expression:

$$R(\omega) = \frac{\rho_1 + \rho_2.e^{-2\gamma_2 d}}{1 + \rho_1\rho_2.e^{-2\gamma_2 d}} \tag{2.70}$$

Où, ρ_1 et ρ_2 sont respectivement les coefficients de réflexion au niveau du premier et second dioptre, et ils sont donnés par les relations suivantes :

$$\rho_1(\omega) = \frac{Z_{cd} - Z_c}{Z_{cd} + Z_c} \tag{2.71}$$

$$\rho_2(\omega) = \frac{Z_c - Z_{cd}}{Z_c + Z_{cd}} \tag{2.72}$$

A vrai dire, ces expressions présenteront une base de calcul pour toutes les méthodes qui vont venir. En fait, la seule chose qui distingue les différentes méthodes de réflexions multiples est la nature de la charge terminale placée au bout de la ligne de transmission. D'ailleurs, ces méthodes portent les noms des ces charges et elles sont :

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

a) La méthode de la ligne court-circuitée

Dans cette méthode, la charge terminale consiste en un court-circuit qui se place au bout de la ligne de transmission, la ligne coaxiale (de notre cas), donc nous avons Zt=0 ce qui conduit à écrire:

$$\rho_2(\omega) = \frac{-Z_{cd}}{Z_{cd}} = -1 \tag{2.73}$$

$$R(\omega) = \frac{\rho_1 - e^{-2\gamma_2 d}}{1 - \rho_1 . e^{-2\gamma_2 d}} \tag{2.74}$$

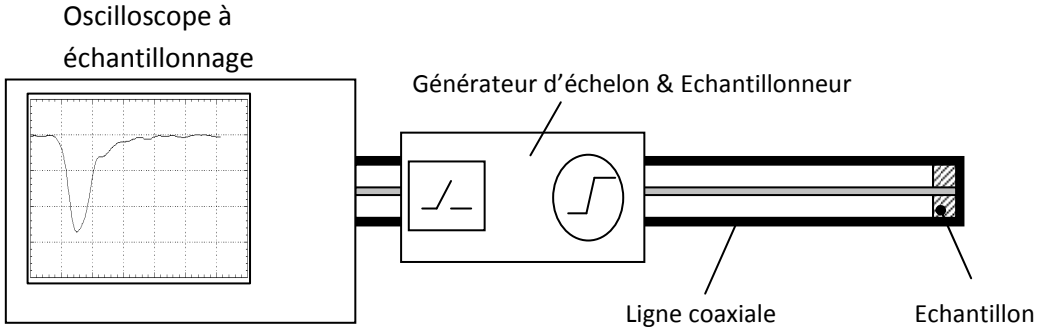


Figure 2.13: Dispositif expérimental avec un court-circuit comme charge terminale

Du point de vue impédance, un tel système (ligne-échantillon-charge terminale) peut être schématisé par la figure ci-dessous:

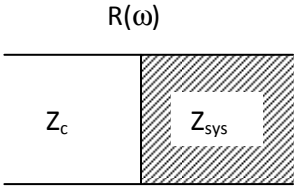


Figure 2.14: Les impédances dans la ligne de mesure court-circuitée

Où:

$$R(\omega) = \frac{Z_{sys} - Z_c}{Z_{sys} + Z_c} \tag{2.75}$$

Nous pouvons encore simplifier cette expression en introduisant ladite impédance normalisée (ou réduite) qui est définie par :

$$z(\omega) = \frac{Z_{sys}}{Z_c} \tag{2.76}$$

Ce qui mène à écrire:

$$R(\omega) = \frac{z(\omega) - 1}{z(\omega) + 1} \tag{2.77}$$

$$z(\omega) = \frac{1 + R(\omega)}{1 - R(\omega)} \tag{2.78}$$

Le fait d'avoir $R(\omega)$, va nous permettre de déterminer facilement $Z(\omega)$. Si nous remplaçons $R(\omega)$ par son expression, nous obtenons:

$$z(\omega) = \frac{1 + \rho_1 + (1 + \rho_1).e^{-2\gamma_2 d}}{1 - \rho_1 + (1 - \rho_1).e^{-2\gamma_2 d}} \tag{2.79}$$

$$z(\omega) = \frac{(1 + \rho_1)(1 - e^{-2\gamma_2 d})}{(1 - \rho_1)(1 + e^{-2\gamma_2 d})} \tag{2.80}$$

Il est à noter que

$$\rho_1 = \frac{1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{1 + \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}$$

Ce qui nous conduit à déduire:

$$\sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}} = \frac{(1 + \rho_1)}{(1 - \rho_1)} \tag{2.81}$$

puisque

$$\tanh(\gamma_2 d) = \frac{1 - e^{-2\gamma_2 d}}{1 + e^{-2\gamma_2 d}} \tag{2.82}$$

A partir de ces trois dernières équations, nous pouvons déduire:

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\tanh(\gamma_2 d) \tag{2.83}$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\tanh\left(j\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r\mu_r}.d\right) \tag{2.84}$$

La résolution de l'équation (2.77) nous permet d'obtenir les paramètres ε_r et μ_r

Résolution de l'équation «$z(\omega) = f(\varepsilon_r, \mu_r)$»:
Dans le cas où les matériaux à caractériser sont purement diélectriques, l'équation précédente prend la forme suivante:

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_r}}.\tanh\left(j\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r}.d\right) \tag{2.85}$$

Nous pouvons résoudre numériquement cette équation par le biais des méthodes itératives classiques (ex.: méthode de Newton).
Dans le cas des basses fréquences, il est possible d'approximer la tangente hyperbolique par son développement limité au voisinage de zéro

$$x \ll 1 \Rightarrow \tanh(x) \cong x$$

Donc nous aurons

$$\tanh(\gamma_2 d) = \gamma_2 d \tag{2.86}$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\gamma_2 d \tag{2.87}$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.j\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r\mu_r}.d \tag{2.88}$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.j\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r\mu_r}.d \tag{2.89}$$

$$z(\omega) = j\frac{\omega}{c}.d.\mu_r \tag{2.90}$$

Malgré que cette méthode jouisse d'une simplicité notable, lorsqu'il s'agit de déterminer la perméabilité magnétique pour les matériaux de nature magnétiques, cette dernière ne parvient pas à déterminer la permittivité diélectrique de l'échantillon lorsqu'il est assez mince (d est assez petit) ou bien dans le cas des basses fréquences.

b) La méthode de la ligne ouverte

Dans cette méthode, aucune charge terminale ne sera placée au bout de la ligne. Le montage ci-dessous l'éclaircit bien.

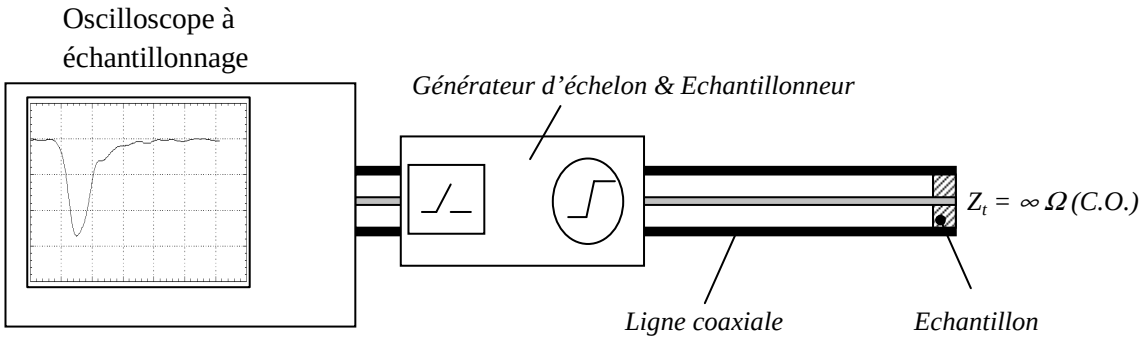


Figure 2.15: Dispositif expérimental d'une ligne ouverte.

En termes d'impédance, un tel système peut être schématisé par la figure ci-dessous :

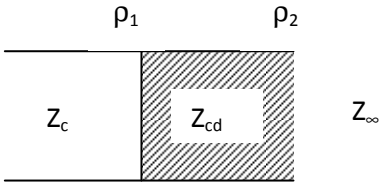


Figure 2.16: les impédances dans le cas d'une ligne de mesure ouverte.

Ceci nous permet de déduire

$$\rho_1(\omega) = \frac{Z_{cd} - Z_c}{Z_{cd} + Z_c} \tag{2.91}$$

$$\rho_2(\omega) = \frac{Z_L - Z_{cd}}{Z_L + Z_{cd}} \cong 1 \tag{2.92}$$

Dans ce cas de figure, nous pouvons écrire

$$R(\omega) = \frac{\rho_1 + e^{-2\gamma_2 d}}{1 + \rho_1 + e^{-2\gamma_2 d}} \tag{2.93}$$

Si nous procédons par analogie avec la démarche poursuivie pour la méthode précédente, nous arriverons à:

$$z(\omega) = \frac{1 + \rho_1 + (1 + \rho_1).e^{-2\gamma_2 d}}{1 - \rho_1 + (1 - \rho_1).e^{-2\gamma_2 d}} \tag{2.94}$$

$$z(\omega) = \frac{(1 + \rho_1)(1 + e^{-2\gamma_2 d})}{(1 - \rho_1)(1 - e^{-2\gamma_2 d})} \tag{2.95}$$

Lorsque les valeurs de la permittivité et la perméabilité ne sont pas nulles, nous pouvons écrire

$$z(\omega) = \frac{(1 + \rho_1)}{(1 - \rho_1)}.\tanh(\gamma_2.d) \tag{2.96}$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\tanh\left(j\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r\mu_r}.d\right) \tag{2.97}$$

Dans le cas des basses fréquences, un simple développement limité de la tangente hyperbolique au voisinage de zéro, nous permet d'écrire:

$$\tanh(x) \cong x \Longrightarrow \mathrm{z}(\omega) = \frac{\sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}}{j\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r\mu_r}.d} \tag{2.98}$$

$$\mathrm{z}(\omega) = \frac{1}{j\frac{\omega}{c}.\varepsilon_r.d} \tag{2.99}$$

$$\varepsilon_r(\omega) = \varepsilon_r^*(\omega) = \frac{1}{j\frac{\omega}{c}.d.z(\omega)} \tag{2.100}$$

Le fait de la disparition du paramètre μ_r rend cette méthode, d'une part, la mieux adaptée pour le cas des matériaux purement diélectriques et, d'autre part, inapplicable lorsqu'il s'agit de matériaux magnétiques.
Si la conductivité électrique d'un matériau diélectrique n'est pas nulle, la constante diélectrique propre à ce matériau peut être écrite ainsi:

$$(\omega) = \varepsilon_r'(\omega) - j\left(\varepsilon_r''(\omega) + \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0}\right) \tag{2.101}$$

et puisque

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \frac{1}{j\frac{\omega}{c}.d.z(\omega)}$$

Donc

$$\varepsilon_r'(\omega) - j\left(\varepsilon_r''(\omega) + \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0}\right) = \frac{1}{j\frac{\omega}{c}.d.z(\omega)} \tag{2.102}$$

Si

$$\omega \to 0 \Longrightarrow z(\omega) \to z(0) \qquad et \quad z(0) = \frac{1+R(0)}{1+R(0)}$$

$$\sigma = \frac{c.\varepsilon_0}{z(0).d} \tag{2.103}$$

Il est clair que cette méthode nous permet de déterminer, d'une manière simple, la conductivité électrique relative aux matériaux diélectriques à faibles pertes.

c) La méthode de la ligne adaptée

Le montage (Figure 2.17) schématise bien la configuration relative à cette méthode. Dans ce cas de figure, la valeur de la charge terminale est égale à celle de l'impédance caractéristique de la ligne $Z_t = Z_c$, donc nous pouvons écrire:

$$\rho_1(\omega) = \frac{Z_{cd} - Z_c}{Z_{cd} + Z_c} \tag{2.104}$$

et

$$\rho_2(\omega) = \frac{Z_c - Z_{cd}}{Z_c + Z_{cd}} \tag{2.105}$$

$$\rho_2 = -\rho_1 \tag{2.106}$$

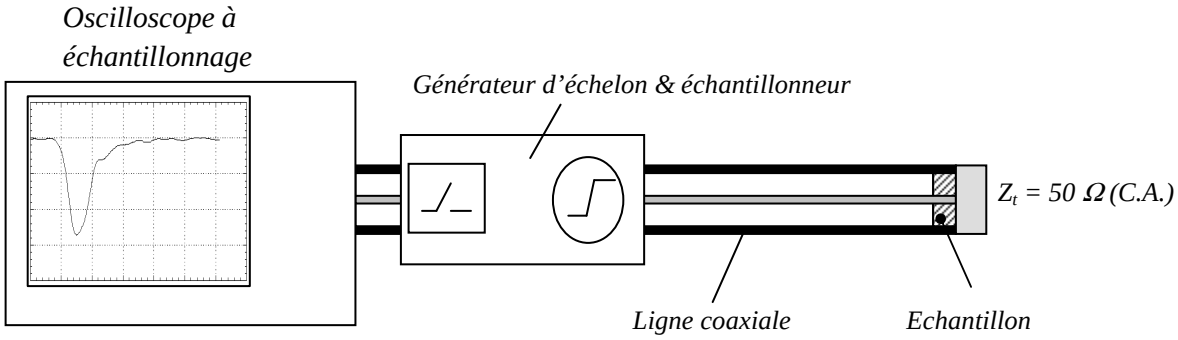


Figure 2.17: Dispositif expérimental de la ligne adaptée.

Dans ce cas, le coefficient de réflexion peut être donné par l'expression suivante:

$$R(\omega) = \frac{\rho_1(1 - \rho_1 e^{-2\gamma_2 d})}{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d}} \tag{2.107}$$

En introduisant la notion de l'impédance réduite, nous obtenons:

$$z(\omega) = \frac{\dfrac{1 + \rho_1(1 - e^{-2\gamma_2 d})}{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d}}}{\dfrac{1 - \rho_1(1 - e^{-2\gamma_2 d})}{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d}}} \tag{2.108}$$

$$z(\omega) = \frac{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d} + \rho_1(1 - e^{-2\gamma_2 d})}{1 - \rho_1^2 e^{-2\gamma_2 d} - \rho_1(1 - e^{-2\gamma_2 d})} \tag{2.109}$$

$$z(\omega) = \frac{(1 + \rho_1)(1 - \rho_1 e^{-2\gamma_2 d})}{(1 + \rho_1)(1 + \rho_1 e^{-2\gamma_2 d})} \tag{2.110}$$

Cette formule peut être exprimée en fonction de ε_r et u_r sous la forme suivante:

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\frac{\left(1 - \frac{1-\sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{1+\sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}.e^{-2\gamma_2 d}\right)}{\left(1 + \frac{1-\sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{1+\sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}.e^{-2\gamma_2 d}\right)} \tag{2.111}$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\frac{1 - e^{-2\gamma_2 d} + \sqrt{\varepsilon_r}.(1 + e^{-2\gamma_2 d})}{\sqrt{\mu_r}.(1 + e^{-2\gamma_2 d}) + \sqrt{\varepsilon_r}.(1 + e^{-2\gamma_2 d})} \tag{2.112}$$

Si nous divisons le numérateur et le dénominateur de la fraction par $(1 - e^{-2\gamma_2 d})$ et utilisons la relation suivante:

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

Nous allons obtenir ce qui suit:

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\frac{1 + \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\tanh(\gamma_2.d)}{\sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\tanh(\gamma_2.d)} \tag{2.113}$$

et comme

$$\gamma_2 = j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r.\mu_r}$$

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\frac{1 + \sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\tanh\left(j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r.\mu_r}.d\right)}{\sqrt{\frac{\mu_r}{\varepsilon_r}}.\tanh\left(j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r.\mu_r}.d\right)} \tag{2.114}$$

Dans le cas des matériaux purement diélectriques, nous avons $u_r = 1$, ce qui permet d'écrire:

$$z(\omega) = \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_r}}.\frac{1 + \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_r}}.\tanh\left(j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r}.d\right)}{\sqrt{\frac{1}{\varepsilon_r}}.\tanh\left(j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r}.d\right)} \tag{2.115}$$

Cette expression pourra être mieux simplifiée si nous utilisons l'admittance au lieu de l'impédance, ce qui conduit à écrire:

$$y(\omega) = \frac{1}{z(\omega)} = \sqrt{\varepsilon_r}.\frac{1 + \sqrt{\varepsilon_r}.\tanh\left(j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r}.d\right)}{\sqrt{\varepsilon_r}.\tanh\left(j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r}.d\right)} \tag{2.116}$$

Pour résoudre cette équation, il vaut mieux la décomposer en partie réelle et imaginaire, ce qui donne :

$$\sqrt{\varepsilon_r} = a + jb \tag{2.117}$$

$$\tanh(\gamma_2 d) = c + jd \tag{2.118}$$

$$y(\omega) = (a + jb).\frac{1 + (a + jb)(c + jd)}{(a + jb)(c + jd)} \tag{2.119}$$

Par analogie avec ce qui a été fait précédemment, l'impédance réduite $y(\omega)$ peut être obtenue par la séparation des deux parties, réelle et imaginaire, ainsi:

$$\mathrm{Re}[y(\omega)] = \frac{(1 + ac - bd)(c + a) - (ad + bc)(d + b)}{(c + a)^2 - (d + b)^2} \tag{2.120}$$

$$\mathrm{Im}[y(\omega)] = \frac{(1 + ac - bd)(d + b) - (ad + bc)(c + a)}{(c + a)^2 - (d + b)^2} \tag{2.121}$$

En résolvant ces deux équations, nous allons obtenir les fonctions $c = f(a, b)$ et $d = g(a, b)$, et en les remplaçant dans l'équation $\tanh(\gamma_2 d) = c + jd$, nous allons déduire les valeurs de a et b, ce qui nous mène à obtenir la valeur de $\sqrt{\varepsilon}$.
Nous pouvons également procéder autrement, lorsque ω tend vers zéro ('t' tend vers l'infini) et $\gamma_2 d \ll 1$ l'exponentiel peut être approximé à son développement limité du premier ordre: $e^{-2\gamma_2 d} \cong 1 - 2\gamma_2 d$ ce qui conduit à

$$R(\omega \to 0) \cong \frac{2\rho_1 \gamma_2 d}{1 - \rho_1^2 + 2\rho_1^2.\gamma_2 d} \tag{2.122}$$

Puisque:

$$\gamma_2 = j.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r}$$

Et

$$\rho_1 = \frac{1 - \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}{1 + \sqrt{\frac{\varepsilon_r}{\mu_r}}}$$

Il est possible d'écrire :

$$R(\omega \to 0) = \frac{j.d.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r}.\frac{1-\sqrt{\varepsilon_r}}{1+\sqrt{\varepsilon_r}}}{1-\left[\frac{\left(1-\sqrt{\frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{\sqrt{\mu_r}}}\right)}{\left(1+\sqrt{\frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{\sqrt{\mu_r}}}\right)}\right]^2 + 2.\left[\frac{\left(1-\sqrt{\frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{\sqrt{\mu_r}}}\right)}{\left(1+\sqrt{\frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{\sqrt{\mu_r}}}\right)}\right]^2 j.d.\frac{\omega}{c}.\sqrt{\varepsilon_r}} \quad (2.123)$$

Cette expression pourra être mieux simplifiée comme suit:

$$R(\omega \to 0) = \frac{j.d.\frac{\omega}{c}.(1-\varepsilon_r)}{2+j.d.\frac{\omega}{c}.(1-\sqrt{\varepsilon_r})^2} \quad (2.124)$$

Dans le cas où la conductivité électrique du matériau à caractériser est non nulle, l'expression de la constante diélectrique sera écrite ainsi:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) - j.\left(\varepsilon''(\omega) + \frac{\sigma}{\omega.\varepsilon_0}\right) \Rightarrow R(0) = \frac{-\sigma.d/c.\varepsilon_0}{2+\sigma.d/c.\varepsilon_0} \quad (2.125)$$

$$\frac{\sigma.d}{c.\varepsilon_0}.(R(0)-1) = -2.R(0) \quad (2.126)$$

$$\sigma = \frac{2.c.\varepsilon_0}{d}.\frac{R(0)}{1+R(0)} \quad (2.127)$$

Cette démarche nous permet facilement de déduire la conductivité électrique du matériau en connaissant uniquement la valeur asymptotique de $R(t)$ lorsque t tend vers l'infini.

2.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons abordé les notions théoriques relatives aux lignes de transmission que ce soit sur le plan électromagnétique (champ électrique et magnétique) ou ordinaire (tension, courant).

Par ailleurs, nous avons passé en revue les différentes méthodes relatives à la réflectométrie temporelle qui servent à la caractérisation électromagnétique des matériaux diélectriques.

En vue de choisir une méthode qui nous permet d'atteindre cet objectif, il faut prendre plusieurs éléments en considération, tout d'abord, la longueur ou bien l'épaisseur de l'échantillon à caractériser, ceci nous a obligé à éliminer la méthode de la première réflexion, car elle nécessite des échantillons assez longs pour être appliquée.

Donc, nous sommes contraints de nous orienter vers les méthodes des réflexions multiples. Nous avons commencé par celle du court-circuit, et comme nous l'a déjà mentionné, cette dernière est incapable de déterminer la permittivité diélectrique dans les cas de basses fréquences ou d'échantillons assez minces, ce qui est notre cas.

Il nous reste deux méthodes qui semblent être appropriées pour notre cas de figure. En ce qui concerne celle de la ligne ouverte, cette dernière présente un inconvénient important consistant en l'impossibilité d'insérer une impédance terminale dont la valeur est l'infini.

Quant à la méthode de la charge adaptée, celle-ci est très efficace en matière de détermination directe de la nature du matériau à partir des courbes temporelles expérimentales. Elle permet également de déduire la conductivité électrique du matériau à caractériser par le biais de la valeur asymptotique du coefficient de réflexion.
Pour toutes ces raisons qui viennent d'être mentionnées, nous avons choisi cette dernière méthode qui est la plus adéquate et la plus efficace pour notre cas.

Références

1 *W. C. Jonson, "Transmission lines and networks", McGraw-Hill, Tokyo, (1950).*

2 *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.*

3 *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.*

4 *A. Benhamouda. "Caractérisation électromagnétique de composites par spectroscopie temporelle". Mémoire de magistèr UFAS. 2004.*

5 *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.*

6 *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.*

7 *M. Abdelguerfi, A. Soualmia. Utilisation de techniques fréquentielles et temporelles pour analyse diélectrique. B4-5, 17eme Colloque International Optique Hertzienne & Diélectrique, Calais. 2003.*

8 *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.*

9 *S. R. Evett. Soil Water Measurement by Time Domain Reflectometry. Encyclopedia of Water Science, Marcel Dekker, Inc. New York. 2003. pp. 894-898.*

10 *G. Moradi, A. Abdipour. Measuring the Permittivity of Dielectric Materials Using Stdr Approach. Progress In Electromagnetics Research, PIER 77,. 2007. pp. 357–365.*

11 *V. Dobrincu, S. B. Balmus, G. N. Pascariu, D. D. Sandu. Characterization of dielectric mixtures by the time domain reflectometry (TDR). Journal of optoelectronics and advaced materials, Vol. 8, No. 3, p. 956 - 961. 2006.*

12 *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.*

13 *M. Garcia Gracia. "Caracterizacion Electromagnetica De Dielectricos En El Domino Del Tiempo". Memoria de Doctor en Ciencias, ZARAGOZA. 1995.*

14 *A. Mdarhri. Propriétés électromagnétiques de matériaux hétérogènes: Approche expérimentale et modélisation. thèse de doctorat. 2007*

CHAPITRE 3

Protocole expérimental

3-1 Introduction

Dans ce troisième chapitre, nous allons donner beaucoup d'importance à la technique de réalisation des différents échantillons dont les matériaux constituants sont: la résine RE, l'oxyde de calcium CaO, le dioxyde de manganèse MnO_2, et le titanate de baryum $BaTiO_3$ tout en adoptant un code alphanumérique pour distinguer davantage chaque échantillon, ainsi qu'à la structure de chaque constituant. Par ailleurs, il nous a paru très utile d'exposer le traitement des signaux issus de la réflectométrie en domaine temporel (RDT) en utilisant les caractéristiques propres à la transformée de Fourier discrète.
A la fin de ce chapitre, nous allons passer en revue les résultats relatifs à la réponse RDT de chaque échantillon.

3-2 La démarche expérimentale suivie lors de toutes les mesures

Pour avoir des mesures fiables, il est recommandé que le système soit mis en marche pendant une demi-journée. Après ce temps, connu sous l'appellation (Warm Up time), nous pouvons procéder aux mesures tout en respectant les étapes suivantes:
Nous plaçons, en l'absence de l'échantillon, un court circuit à l'extrémité de la cellule de mesure, puis nous enregistrons la réponse TDR propre à cette configuration (court-circuit sans échantillon).
L'étape suivante consiste à enlever le court-circuit et à mettre en place l'échantillon à caractériser c'est-à-dire dans la cellule de mesure et fermer son extrémité par une charge adaptée (50 Ohms), puis nous enregistrons de nouveau la réponse TDR dédiée à cette configuration (échantillon plus une charge adaptée).
Ces deux réponses, enregistrées par l'oscilloscope à échantillonnage, vont être acheminées via un support numérique (disquette) vers un calculateur (micro-ordinateur), où un traitement de signaux sera appliqué en vue d'extraire les valeurs des paramètres recherchés à savoir: permittivité et conductivité.
Il est à noter que le laboratoire d'électromagnétisme de l'université de Saragosse a déjà développé un software ou bien un code source connu sous l'appellation (Pcmtdr) dont la tâche principale est de prendre en charge tout le traitement de signaux en question.

3-3 Détermination des fractions volumiques en fonction des poids des charges [1, 2]

Puisque les lois de mélange sont basées sur l'évaluation de la permittivité du mélange à partir des permittivités de ses constituants ainsi que leurs fractions volumiques, il est très important de définir les fractions volumiques des différents constituants pour chaque échantillon. En ce qui concerne la matrice hôte, à savoir la résine, cela ne pose aucun problème puisque cette dernière se présente au début à l'état liquide. Quant aux autres inclusions ou charges, elles se présentent sous forme de poudres. La mesure directe du volume n'est pas possible, nous sommes donc amenés 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: Nous fixons d'abord le volume total V_{tot} d'un échantillon (selon les dimensions du moule). Ensuite, nous établissons la fraction volumique $F_{matrice}$ de la matrice (résine époxyde), ce qui nous permet de déduire le volume de la matrice nécessaire en utilisant la relation suivante: $V_{matrice}=V_{tot}\ .F_{matrice.}$ Après cette procédure, nous stabilisons la fraction volumique F_{charge} d'une charge donnée et nous calculons le volume V_{charge} correspondant à cette fraction volumique, où: $V_{charge}= V_{tot}\ .F_{charge..}$ Finalement, on a la masse M_{charge} de ce volume, $M_{charge}=D_{charge}.V_{charge}$ avec D_{charge} la densité de la charge. (Il est à noter que toutes les pesées ont été effectuées par le biais d'une balance électronique dont la précision est de l'ordre de 1 mg.)

3-4 Fabrications de composites

3-4-1 Les matériaux utilisés

3-4-1-1 Matrice hôte:(La résine époxyde)

L'expression 'résine époxyde' désigne à la fois le pré-polymère et son système de résine durcie/durcisseur. Avant que l'époxyde ne soit durci, la résine a une durée de conservation indéterminée. La capacité de transformer l'état liquide en solide thermodurcissable dur est l'une des propriétés précieuses des résines époxydes. La solidification est accomplie par l'addition d'un réactif chimique connu comme agent de durcissement ou durcisseur. La réaction de polymérisation peut être effectuée à température ambiante, avec une chaleur produite par une réaction exothermique ou peut nécessiter une chaleur externe [3]. Une représentation schématique du processus de polymérisation d'un polymère thermodurcissable est illustrée à la figure 3.1.

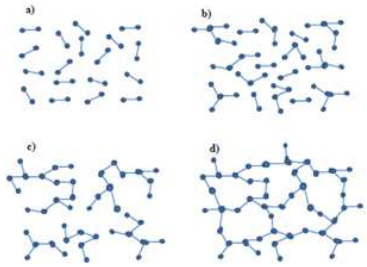


Figure 3.1: Schéma relatif au durcissement de la matrice résine (a) Le séchage commence avec des monomères; (b) il procède par croissance linéaire; (c) il continue avec la formation d'un réseau incomplètement réticulé; (d) il finit en tant que thermodurcissable complètement durci.

3-4-1-2 Les charges:

3-4-1-2-1 Titanate de baryum ($BaTiO_3$) [4]

Le titanate de baryum ($BaTiO_3$ ou BT) a été synthétisé pour devenir le premier matériau céramique et le plus largement étudié, en raison de ses excellentes propriétés diélectriques, ferroélectriques et piézoélectriques [5]. La constante diélectrique élevée relative au $BaTiO_3$ découle de sa structure cristalline. En réalité, le BaTiO3 a une structure de pérovskite comme le montre la figure (3.2).

La figure (3.2) montre que chaque ion de baryum est entouré de 12 ions d'oxygène. Les ions oxygène et les ions baryum forment un réseau cubique à faces centrées. Les atomes de titane résident dans des positions interstitielles octaédriques entourées de six ions oxygène. En raison de la grande taille des ions Ba, la position interstitielle octaédrique dans BaTiO3 est assez grande comparée à la taille des ions Ti. Les ions Ti sont trop petits pour être stables dans cette position octaédrique. Il existe des positions d'énergie minimale excentrées dans la direction de chacun des six ions oxygène entourant l'ion Ti. Puisque chaque ion Ti a une charge de +4, le degré de polarisation est très élevé. Lorsqu'un champ électrique est appliqué, les ions Ti peuvent passer de positions aléatoires à alignées et entraîner une polarisation en masse élevée et une constante diélectrique élevée [6].

Le titanate de baryum a trois formes cristallines: cubique, tétragonale et hexagonale. Le polymorphe tétragonal est le plus largement utilisé en raison de ses excellentes propriétés ferroélectriques, piézoélectriques et thermoélectriques [7].

La température a un effet important sur la structure cristalline et les caractéristiques de polarisation du $BaTiO_3$. Au-dessus de 120° C (et jusqu'à 1400° C), $BaTiO_3$ est cubique et les $BaTiO_3$ ont une polarisation aléatoire spontanée comme décrit ci-dessus. Dans cette plage de température, l'ion Ti4 + se situe au centre d'un octaèdre d'ions oxygène (comme le montre la figure 3.2-A). La vibration thermique est suffisamment élevée pour entraîner l'orientation aléatoire des ions titane dans sa position interstitielle octaédrique dans BaTiO3. L'ion Ti4 + change de position, entraînant la polarisation lorsque le champ électrique est appliqué, mais il revient à sa position centrale stable dès

que le champ est supprimé. Ainsi, il n'y a pas de polarisation conservée, pas de boucle d'hystérésis et pas de comportement ferroélectrique. Lorsque la température du BaTiO3 est légèrement abaissée au-dessous de 120° C (température de Curie), il se produit une transformation par déplacement dans laquelle la structure du BaTiO3 passe du cubique au tétragonal (figure 3.2).
Un axe cristallographique augmente en longueur (la cellule varie de 4,010 à 4,022 Å) et les deux autres en longueur (de 4,010 à 4,004 Å). L'ion Ti4 + se décentre vers l'un des deux ions oxygène de l'axe long, ce qui entraîne une augmentation spontanée de la charge positive dans cette direction. Ceci est illustré à la figure (3.3-a). L'application d'un champ électrique opposé à la polarité de ce

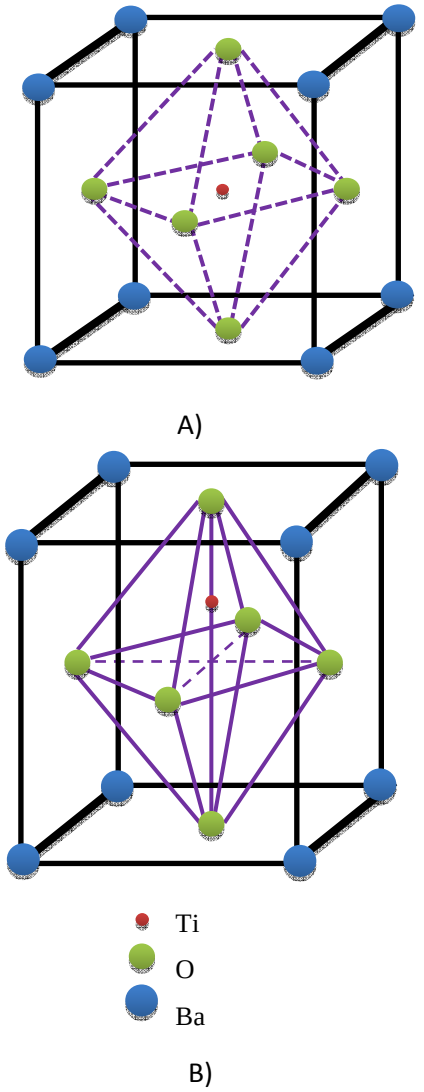


Figure 3.2 : Schéma de la structure pérovskite du BaTiO3
A) Réseau cubique (supérieur à la température de Curie, 120 ° C)
B) Réseau tétragonal (inférieur à la température de Curie, 120 ° C)
[6]

dipôle d'origine entraînera le déplacement de l'ion Ti4 + à travers le centre du site octaédrique et vers une position excentrée équivalente. Ceci est montré sur la figure (3.3-b). Il en résulte une inversion de polarisation, une hystérésis dans la courbe E en fonction de P et une ferroélectricité [6]. Les propriétés diélectriques du BaTiO3 dépendent de la taille des grains et de la température. Au point de Curie, le BaTiO3 à gros grains (≥ 10 µm) présente une constante diélectrique élevée en

raison de la formation de domaines multiples dans un même grain, dont le mouvement des parois augmente la constante diélectrique au point de Curie. Pour un $BaTiO_3$ à grains fins (~1µm), un seul domaine se forme à l'intérieur de chaque grain. Le mouvement des parois du domaine est limité par les joints de grains, ce qui conduit à une faible constante diélectrique au point de Curie par rapport au $BaTiO_3$ à grains grossiers. À la température ambiante, la constante diélectrique de la céramique $BaTiO_3$ à grain grossier se situait entre 1500 et 2000. En revanche, le $BaTiO_3$ à grain fin présente une constante diélectrique à la température ambiante comprise entre 3500 et 6000. En effet, les contraintes internes dans le $BaTiO_3$ à grain fin sont plus importantes que dans le matériau à grain grossier, ce qui entraîne une plus grande permittivité à la température ambiante [8].

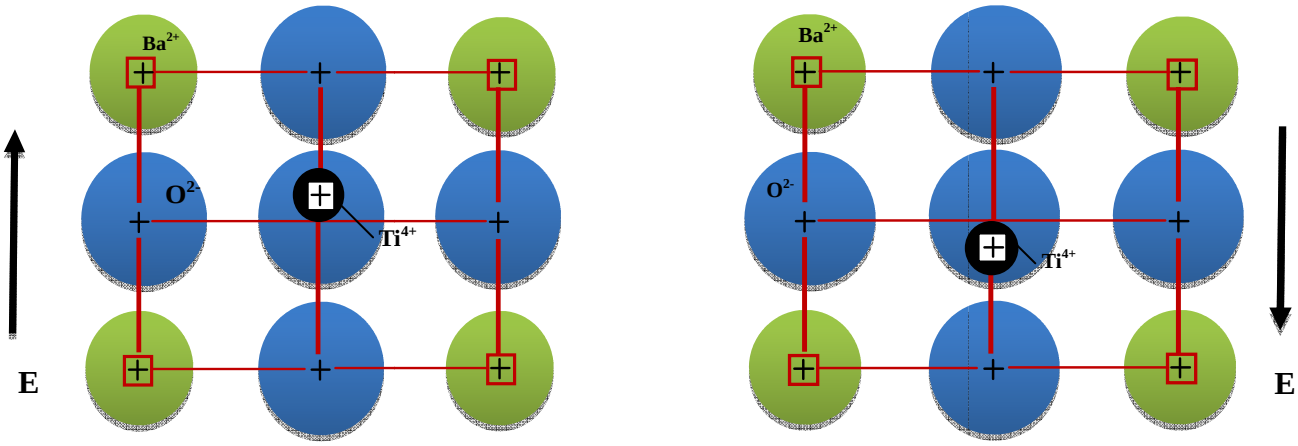


Figure 3.3 : Inversion de la direction de la polarisation spontanée dans $BaTiO_3$ par inversion de la direction du champ appliqué

3-4-1-2-2 Oxyde de calcium (CaO)

L'oxyde de calcium, communément surnommé « chaux vive » dont le procédé de fabrication consiste en la calcination du calcaire à 825°C. CaO est la formule brute de cet oxyde qui appartient à une classe cristalline de type Fm3m. Il est de structure cubique, type NaCl, avec un paramètre de maille a=4,8108 Å et une masse molaire et volumique de l'ordre de 56,07 g/mol et 3,4 $g \cdot cm^{-3}$ respectivement. L'oxyde en question réagit violemment avec l'eau et sa solubilité est d'environ 1,65 gl^{-1} (eau à 20 °C). Les températures de fusion et ébullition de CaO sont : 2 570, 2 850°C respectivement. Par ailleurs, sa première énergie d'ionisation est estimée à 6,66 ± 0,18 eV (gaz). Cet oxyde est de couleur blanche; broyé très finement (ordre de quelques microns), il peut apparaître sous forme de poudre blanche à jaune pâle/brune.

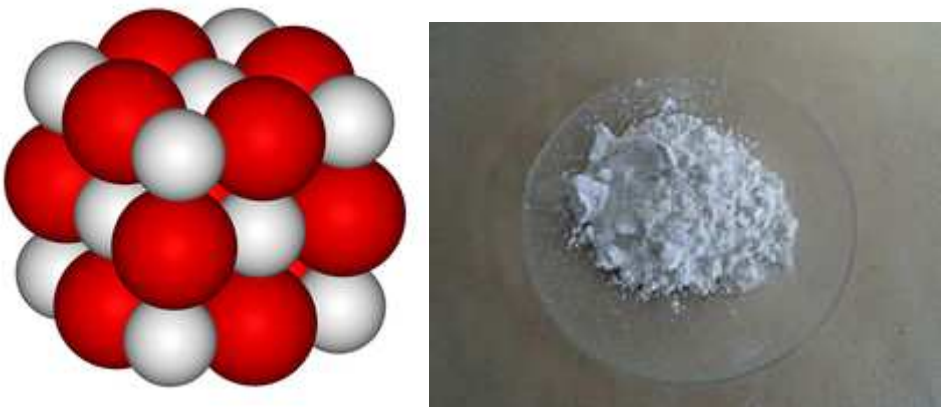


Figure 3.4 : propriétés chimique de L'oxyde de calcium CaO

Cet oxyde, de faible coût, est très indispensable dans différents domaines d'industrie. A titre d'exemple, nous citons ce qui suit :

• La chaux vive est principalement utilisée dans le procédé de fabrication d'acier à l'oxygène (BOS). Son utilisation varie d'environ 30 à 50 kg/t d'acier. La chaux vive neutralise les oxydes acides, SiO_2, Al_2O_3 et Fe_2O_3, pour produire une scorie en fusion basique. [9]

• La chaux vive broyée est utilisée dans la production de blocs de béton cellulaire, d'une densité de ca. 0,6 à 1,0 g / cm³ [9]

• La chaux vive et la chaux hydratée peuvent augmenter considérablement la capacité de charge des sols contenant de l'argile. Pour ce faire, ils réagissent avec de la silice et de l'alumine finement divisées pour produire des silicates de calcium et des aluminates possédant des propriétés de cimentation.

• De petites quantités de chaux vive sont utilisées dans d'autres processus; par exemple, la production de verre, de ciment d'aluminate de calcium et de produits chimiques organiques. [9]

• Chaleur: la chaux vive libère de l'énergie thermique par la formation de l'hydrate, l'hydroxyde de calcium. Ce processus peut être utilisé pour fournir une source de chaleur portable pratique, par exemple pour réchauffer des aliments sur place dans une boîte chauffante, faire cuire et chauffer de l'eau sans flammes nues. Plusieurs entreprises vendent des kits de cuisine utilisant cette méthode de chauffage. [10]

Dans notre travail, nous voulons déterminer son influence, en matière de propriétés diélectriques, sur les matériaux composites dont il rentre dans leurs compositions.

3-4-1-2-3 Dioxyde de manganèse MnO_2

Le dioxyde de manganèse, ou oxyde de manganèse(IV), a une grande importance au niveau économique. Il existe plusieurs méthodes pour en préparer, parmi elles, nous citons l'oxydation en masse du corps simple ou manganèse métal à l'air, la mouture des cristaux naturels sélectionnés de pyrolusite, le chauffage de nitrate de manganèse(II) sous courant d'air au-dessus de 500°C et l'électrolyse de solution aqueuse de sulfate de manganèse (II). En réalité, Il existe également un grand nombre de dioxyde(s) de manganèse, dont une grande partie est produite par des électro-chimistes. Ce composé chimique de formule MnO_2 est de structure tétragonale type TiO_2, ses masses molaire et volumique du MnO_2 sont de l'ordre de 86,9 g/mol et 5,03 $g \cdot cm^{-3}$ respectivement. Il est à noter que le MnO_2 est insoluble dans l'acide nitrique et l'acétone, et soluble dans HCl et H_2O_2. La température de fusion propre au MnO_2 est d'environ 535°C. Généralement, le MnO_2 se présente sous forme de poudre noire à brune.

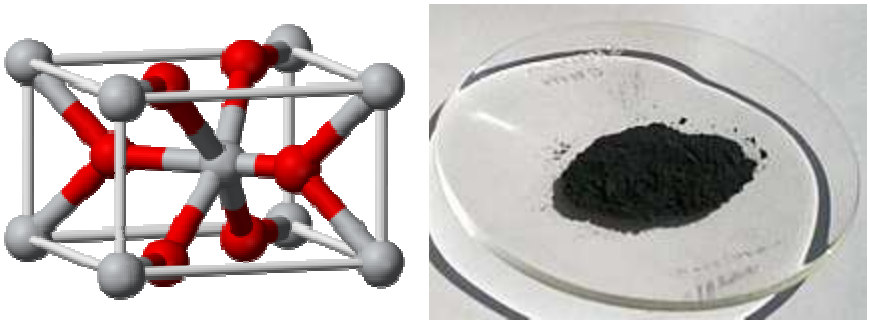


Figure 3.5 : propriétés chimique du dioxyde de manganèse MnO_2

Les utilisations du MnO2 sont diverses, parmi elles, nous citons les piles sèches comme les piles alcalines et les piles Zn-Cd, cette application nécessitait à elle seule une consommation annuelle d'un demi-million de tonnes de pyrolusite, la fabrication des dérivés purifiés de la chimie du manganèse, tels que MnO, $MnSO_4$ qui est un intermédiaire pour avoir du Mn métal par électrolyse,

la fabrication d'oxydants, notamment celle massive pour la filière uranium, matériau d'électrode de super-condensateur, en céramique. Il sert à la production des tuiles, etc.
Dans notre étude, nous voulons mettre en exergue l'influence du MnO_2 sur les propriétés diélectriques des matériaux composites dont il est l'un des éléments constituants.

3-4-2 La technique de pose à la main

La technique utilisée est celle de la pose à la main, qui est la plus ancienne et la plus simple méthode de moulage pour la fabrication des composites. L'infrastructure requise pour cette méthode est minimale et les étapes de traitement sont également assez simples. Tous les échantillons composites à base d'époxyde et de différentes charges sont préparés par cette technique dont les étapes sont les suivantes:
1) La résine époxyde et le durcisseur correspondant sont mélangés avec un rapport précis en poids tel qu'il est recommandé par le fabricant de la résine en question.
2) Des particules micrométriques (charges) sont ensuite ajoutées à la combinaison résine-durcisseur et mélangées soigneusement par agitation manuelle.
3) Avant de verser le mélange époxyde/charges dans le moule, un jet de silicone ou bien une couche de cire est effectuée sur les parois du moule. L'utilisation de la couche de cire ou la pulvérisation de silicone permet l'extraction facile des composites du moule après le durcissement. La pâte uniformément mélangée est ensuite lentement versée dans des moules rectangulaires de manière à obtenir des échantillons de formes rectangulaires (de dimensions 15 x 7 x7mm).
Il est à noter que la résine représente 70% du volume total de chaque échantillon tandis que les autres constituants, à savoir le $BaTiO_3$, CaO, MnO_2, partagent le pourcentage restant, à savoir 30% par un pas de 5% ce qui nous permet d'avoir plusieurs séries d'échantillons comme il est indiqué dans les tableaux suivants:

- Première série d'échantillons: la fraction volumique de $BaTiO_3$ est fixée à 5%

	Résine	**$BaTiO_3$**	**MnO_2**	**CaO**
Echant 01	**70%**	**5%**	**0%**	**25%**
Echant 02	**70%**	**5%**	**5%**	**20%**
Echant 03	**70%**	**5%**	**10%**	**15%**
Echant 04	**70%**	**5%**	**15%**	**10%**
Echant 05	**70%**	**5%**	**20%**	**5%**
Echant 06	**70%**	**5%**	**25%**	**0%**

- Deuxième série d'échantillons: la fraction volumique de TB est fixée à 10%

	Résine	**$BaTiO_3$**	**MnO_2**	**CaO**
Echant 07	**70%**	**10%**	**0%**	**20%**
Echant 08	**70%**	**10%**	**5%**	**15%**
Echant 09	**70%**	**10%**	**10%**	**10%**
Echant 10	**70%**	**10%**	**15%**	**5%**
Echant 11	**70%**	**10%**	**20%**	**0%**

- Troisième série d'échantillons: la fraction volumique de TB est fixée à 15%

	Résine	**TB**	**MnO_2**	**CaO**
Echant 12	**70%**	**15%**	**0%**	**15%**
Echant 13	**70%**	**15%**	**5%**	**10%**
Echant 14	**70%**	**15%**	**10%**	**5%**
Echant 15	**70%**	**15%**	**15%**	**0%**

- Quatrième série d'échantillons: la fraction volumique de TB est fixée à 20%

	Résine	TB	MnO_2	CaO
Echant 16	**70%**	**20%**	**0%**	**10%**
Echant 17	**70%**	**20%**	**5%**	**5%**
Echant 18	**70%**	**20%**	**10%**	**0%**

- Cinquième série d'échantillons: la fraction volumique de TB est fixée à 25%

	Résine	TB	MnO_2	CaO
Echant 19	**70%**	**25%**	**0%**	**5%**
Echant 20	**70%**	**25%**	**5%**	**0%**

3-4-3 Code d'identification des échantillons

Dans le but de faciliter la tâche expérimentale, un code d'identification alphanumérique a été attribué aux différents échantillons de type xxTCMyy, où les initiales TCM représentent les charges suivantes: titanate de baryum TB, oxyde de calcium CaO, dioxyde de manganèse MnO_2, tandis que les chiffres xx, yy représentent les fractions volumiques de TB et de MnO_2 respectivement.

3-4-4 Usinage des échantillons

Pour que les échantillons puissent être placés dans la cellule de mesure, un usinage des échantillons en question est nécessaire, et qui consiste à leur donner une forme tubulaire dont les diamètres interne et externe sont 3 et 7 mm respectivement. Ceci est possible grâce à l'extraction par le biais d'un foret cylindrique creux doté de dents de carottage et par le perçage effectué au centre de chaque cylindre par une mèche de 3mm. Il est à noter que ces échantillons de forme tubulaire reçoivent un polissage minutieux sur les deux surfaces avant d'être placés dans la cellule de mesure.

3-5 Caractérisation des composites par la technique RDT

La technique de la réflectométrie temporelle, comme son nom l'indique, est basée sur une analyse temporelle des signaux acquis, et qui est souvent pénible et nécessite des simplifications, ceci n'est possible que lorsque nous impliquons le domaine fréquentiel à travers ce qu'on appelle la transformée de Fourier. Le fait d'associer les deux analyses, temporelle et fréquentielle, va être plus bénéfique et il peut être regroupé sous la dénomination «Spectroscopie en domaine temporel» ou SDT, tout court, [11-13].

A vrai dire, une spectroscopie se fait en deux étapes:

La première consiste en la mesure temporelle par la méthode de réflectométrie en domaine temporel (RDT) ou en anglais Time Domain Reflectometry (TDR) [14].

La seconde consiste à déduire les paramètres recherchés [15] en traitant les données issues de la première étape dans un domaine fréquentiel. Pour atteindre cet objectif, un outil mathématique adéquat est indispensable.

Dès l'apparition, sur le marché, du composant, connu sous l'appellation "Diodes Tunnel", une nouvelle ère s'est ouverte dans le développement de la métrologie en matière de spectroscopie. Il fut possible, grâce à ce composant, d'avoir des générateurs d'échelon à temps de montée très bref, de l'ordre de 28 picosecondes et une amplitude de 250 mV. Ledit échelon se propage dans une ligne coaxiale à air dont l'impédance caractéristique est directement liée à ses diamètres, externe b et interne a par la formule:

$$Z_0 = 138\, log_{10}(\frac{b}{a})$$

Et Z_0 est égale à 50Ω. C'est pour cette raison que la valeur de la charge adaptée est égale à 50 Ω. Aucune réflexion ne sera engendrée par une charge ou bien une impédance dont la valeur est égale à celle de la ligne de transmission. En réalité, c'est le changement d'impédance, discontinuité, qui est à l'origine des différentes réflexions rencontrées sur la ligne de mesure, en quelque sorte c'est l'un des principes de la réflectométrie RTD.

La méthode RDT, comme moyen de mesure de la permittivité des matériaux, fut introduite par Nicolson et Ross en 1970 [16], alors que Davis et Chudobiak, en 1975, étaient les premiers à essayer d'utiliser ladite RDT en vue de mesurer la teneur en eau des sols. Ils se sont basés sur des comparaisons avec des mesures faites par humidimétrie neutronique, et, à la lumière de cette étude, ils ont déduit la possibilité d'estimer la teneur en eau d'un sol par RDT [17, 18].
En partant du même principe que le radar, la RDT utilise l'effet écho, mais de manière un peu différente, elle utilise des échelons unités ou des impulsions [16] au lieu de travailler en régime sinusoïdal entretenu comme c'est le cas pour un radar. Cette technique est principalement utilisée en vue de détecter la présence de discontinuités sur une ligne de transmission, elle sert essentiellement à les localiser ainsi que la détermination de leurs natures. Pour accomplir cette tâche nous devons disposer des guides d'ondes formés par deux conducteurs qui permettent la propagation de l'onde électromagnétique sur une large bande de fréquence. Dans ce contexte, un échelon unité est envoyé sur la ligne en question et nous observons la tension de réflexion [19].

3-6 Traitements des signaux acquis par la RTD

Lorsqu'on veut caractériser ou déterminer les propriétés diélectriques de l'échantillon, qui consiste en un composite diélectrique, en utilisant la méthode RTD, on doit procéder à un traitement adéquat de la réponse obtenue. Cette dernière n'est qu'un signal temporel issu de l'oscilloscope numérique à échantillonnage. Pour atteindre cet objectif, nous devons, en premier lieu, extraire le coefficient de réflexion à partir des données expérimentales. Il est à noter que c'est un paramètre d'extrême importance car tous les calculs sont effectués sur la base de ce dernier.

3-6-1 Détermination du coefficient de réflexion

En réalité, le coefficient de réflexion est défini comme un rapport entre les deux signaux, réfléchi et incident, donc il est impératif d'en obtenir pour qu'on puisse évaluer ce rapport [1, 2, 20].

3-6-2 Extraction du signal réfléchi

En fait, le signal obtenu, qui consiste en la tension instantanée mesurée sur la ligne de transmission, est la somme des deux signaux, réfléchi et incident, et il peut s'écrire sous la forme suivante:

$$\mathrm{V(t)_{ech/m}} = \mathrm{V(t)_{ech_r/m}} + \mathrm{V(t)_{i/m}} \tag{3.1}$$

En vue d'obtenir le signal incident, il suffit de mettre une charge adaptée au bout de la cellule de mesure et en l'absence de l'échantillon, ce qui va permettre au système d'acquérir un signal propre à une réflexion totale. Donc on a:

$$V(t)_{i/m} = V(t)_{ca/m} \tag{3.2}$$

Maintenant, on peut déduire facilement le signal réfléchi en utilisant la formule suivante:

$$V(t)_{ech_r/m} = V(t)_{ech/m} - V(t)_{ca/m} \tag{3.3}$$

3-6-3 La fonction d'appareil

Le signal mesuré du point de vue instrumentation est réel, mais sous un autre angle, voire mathématique, ce résultat consiste, en fait, en une convolution entre le signal réel et ce qu'on appelle la fonction de l'appareil de mesure [21, 22], donc il peut s'exprimer par la relation suivante:

$$V(t)_{/m} = V(t) * h(t) \tag{3.4}$$

m, comme abréviation, désigne mesuré.
De cela, on peut déduire ce qui suit:

$$V(t)_{ech_r/m} = V(t)_{ech-r} * h(t) \tag{3.5}$$

Où, $V(t)_{ech_r}$ est le signal réel qu'on vise à obtenir.
Une déconvolution est nécessaire pour l'obtention de ce signal, mais dans le cas temporel, cette étape présente un problème de taille. En vue de contourner cette difficulté, on doit recourir au domaine fréquentiel en utilisant la propriété de la transformée de Fourier, connue sous l'appellation «le théorème de convolution» [23, 24] qui consiste à simplifier ce type de calcul. Ainsi, on peut écrire l'expression suivante:

$$V(t) = A(t) * H(t) \ \rightarrow V(\omega) = A(\omega) \cdot H(\omega) \tag{3.6}$$

Pour éviter ladite fonction d'appareil $h(t)$ (autrement appelé «fonction de transfert» dans le cas d'un domaine fréquentiel), nous allons introduire une charge de référence dont nous connaissons la réponse théorique propre à elle [25, 26]. Nous employons généralement un court-circuit dont le coefficient de réflexion est égal à -1. Ce qui nous permet d'écrire:

$$V(t)_{ech_r/m} = V(t)_{ech_r} * h(t) \ \rightarrow V(\omega)_{ech_r/m} = V(\omega)_{ech_r} \cdot H(\omega) \tag{3.7}$$

$$V(t)_{cc_r/m} = V(t)_{cc_r} * h(t) \ \rightarrow V(\omega)_{cc_r/m} = V(\omega)_{cc_r} \cdot H(\omega) \tag{3.8}$$

Notons que les deux signaux, $V(t)_{cc_r/m}$ et $V(t)_{ech_r/m}$ sont obtenus de la même manière.

$$V(t)_{cc/m} = V(t)_{cc_r/m} + V(t)_{i/m} \rightarrow V(\omega)_{cc_r/m} = V(\omega)_{cc/m} - V(\omega)_{ca/m} \tag{3.9}$$

Maintenant, nous allons diviser les deux équations précédentes par $V(\omega)_{ca}$ (en d'autres mots, le signal incident), et, après, nous procédons à la division des deux équations l'une par l'autre, terme à terme, mais sans oublier que $R(\omega)_{cc} = -1$ correspond bien au coefficient de réflexion d'un court-circuit, donc nous déduisons ce qui suit:

$$R(\omega)_{ech} = \frac{V(\omega)_{ech_r/m}}{V(\omega)_{cc_r/m}} \tag{3.10}$$

N.B.: pour des raisons de simplicité, nous allons noter par la suite $R(\omega) = R(\omega)_{ech}$. La méthode utilisée lors du calcul de la TFD est celle de Samulon [27], qui va être abordée dans une prochaine section.

3-6-4 Extraction de l'admittance

L'admittance $Y(\omega)$ peut être calculée à partir de la valeur du coefficient de réflexion $R(\omega)$ grâce à la relation suivante

$$Y(\omega) = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega)} \tag{3.11}$$

3-6-5 L'obtention de la permittivité complexe

La permittivité complexe d'un matériau (de notre cas, c'est l'échantillon à mesurer) est liée à son admittance réduite par une relation qui peut être déterminée par la manière suivante:
Nous savons que

$$R(\omega) = \rho \cdot \frac{(1 - e^{-2\gamma d})}{(1 - \rho^2 \cdot e^{-2\gamma d})}$$

et

$$\rho = \frac{1 - \sqrt{\varepsilon_r}}{1 + \sqrt{\varepsilon_r}}$$

Si nous utilisons l'indice de réfraction, qui est défini ainsi:

$$n = \sqrt{\varepsilon_r}$$

D'après l'équation (3-11), nous pouvons déduire ce qui suit:

$$y(\omega) = n \cdot \frac{\left(1 + n \cdot tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot d \cdot n\right)\right)}{tanh\left(j \cdot \frac{\omega}{c} \cdot d \cdot n\right) + n} \tag{3.13}$$

Enfin, la résolution de cette équation va nous permettre d'obtenir la valeur de la permittivité complexe ε^*

3-6-6 Calcul de la transformée de Fourier discrète (TFD)

Le signal numérique obtenu est défini principalement par les valeurs des ses N échantillons, nous voulons calculer la transformée de Fourier discrète (TFD) propre à ce signal, mais il faut noter que l'application directe de la TFD est efficace seulement dans le cas où le signal numérique à traiter présente des valeurs initiales et finales qui sont nulles, alors que notre signal ne fait pas partie de ces signaux. En revanche, le nôtre appartient à ce que nous appelons les signaux «Step-Like» [24,28,29].
Plusieurs méthodes de calcul de la TFD ont été proposées à savoir Gans [30], Nicolson [31] et Samulon [27], qui aboutissent au même résultat. Ces méthodes sont plus faciles à mettre en pratique et au contraire des fenêtres temporelles qui introduisent des lobes, d'amplitudes cruelles, dans le spectre du signal, elles octroient de meilleurs résultats.
En ce qui nous concerne, nous avons choisi celle de Samulon qui est la plus facile à mettre en pratique.

3-6-6-1 Méthode de Samulon

La méthode proposée par Samulon consiste à évaluer la TFD d'un signal numérique à N échantillon par le biais de la TFD de sa dérivée temporelle, cette technique ou méthode est communément connue sous le nom de «méthode de la courbe dérivée». Le calcul de la dérivée de la fonction dérivée peut être décrit de la façon suivante:

$$\Delta V(k \cdot \Delta t) = V(k \cdot \Delta t) - V\big((k-1).\Delta t\big) \tag{3.14}$$

Sachons que la valeur de k est comprise entre 1 et N.

3-6-6-2 Calcul de la TFD.
La TFD d'un signal $V(k \cdot \Delta t)$ est définie par la relation suivante:

$$V(i \cdot \Delta t) = \Delta t \cdot \sum_{k=1}^{N} V(k \cdot \Delta t) \cdot e^{-j\omega k \Delta t} \tag{3.15}$$

L'utilisation de la méthode de Samulon nous permet d'écrire ce qui suit:

$$TFD[V(k \cdot \Delta t)] = \Delta t \sum_{k=1}^{N} V(k \cdot \Delta t) \cdot e^{-j\omega k \Delta t} \tag{3.16}$$

$$V(i \cdot \Delta f) = \Delta t \sum_{k=1}^{N} V(k \cdot \Delta t) \cdot e^{-j\omega k \Delta t} \tag{3.17}$$

Où

$$\Delta f = \frac{1}{N \cdot \Delta t} \tag{3.18}$$

Si nous développons la somme donnée par l'équation (3-17), nous arriverons à:

$$\frac{V(i \cdot \Delta f)}{\Delta t} = (1 - e^{-j\omega \Delta t}) \cdot TFD[V(k \cdot \Delta t)] \tag{3.19}$$

$$TFD[V(k \cdot \Delta t)] = \frac{(1 - e^{-j\omega \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f) \tag{3.20}$$

Donc au lieu de déterminer la TFD directe, nous allons calculer les TFDs des dérivées temporelles relatives à chaque signal (échantillon et court-circuit). Ce qui nous donne:

$$V(\omega)_{ech_r/m} = \frac{(1 - e^{-j\omega \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f)_{ech_r/m} \tag{3.21}$$

$$V(\omega)_{cc_r/m} = \frac{(1 - e^{-j\omega \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f)_{cc_r/m} \tag{3.22}$$

$$R(\omega) = \frac{\frac{(1 - e^{-j\omega \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f)_{ech_r/m}}{\frac{(1 - e^{-j\omega \Delta t})}{\Delta t} \cdot V(i \cdot \Delta f)_{cc_r/m}} \tag{3.23}$$

$$R(\omega) = \frac{V(i \cdot \Delta f)_{ech_r/m}}{V(i \cdot \Delta f)_{cc_r/m}} \tag{3.24}$$

Où, i varie de 1 à N/2.

En vue de minimiser le bruit, qui réside dans le spectre calculé, au maximum, nous allons suivre cette démarche:

- Durant l'acquisition du signal temporel, il faut opter pour un Premier Canal Utile PCU sur le palier du signal incident qui sera le point le plus proche du début du signal réfléchi.
- De la même façon, nous définissons le Dernier Canal Utile DCU à partir duquel le signal réfléchi atteint sa valeur asymptotique.
- Après cette limitation par ces canaux, PCU et DCU, nous calculons la dérivée du signal compris entre ces deux limites, il est à noter que ce calcul se fait pour les deux cas à savoir: échantillon et court-circuit.
- Puis nous cherchons les points dont les valeurs sont nulles et qui coïncident pour chacune des deux dérivées. Alors que les limitations PCU et DCU vont prendre de nouvelles valeurs.
- Le fait de définir cette fenêtre temporelle de travail nous permet de minimiser considérablement le bruit dans le signal. A vrai dire, un mauvais choix des limites de cette fenêtre mènera certainement à une perte d'informations utiles, ce qui va altérer les résultats finaux.

La fenêtre d'observation est sélectionnée telle que [1, 2]:

$$\Delta V(PCU \cdot \Delta t) = \Delta V(DCU \cdot \Delta t) = 0 \qquad (3.25)$$

En fait, le calcul de la TFD se fait sur l'ensemble des N échantillons. Néanmoins, les valeurs des échantillons qui ne sont pas comprises entre la fenêtre [PCU, DCU] sont systématiquement remplacées par des valeurs nulles.

3-7 Résultats expérimentaux obtenus par RDT

Dans ce passage, nous allons passer en revue les différents résultats bruts obtenus par la RDT. Il est à noter que toutes les figures ci-dessous comportent deux courbes, la première (en rouge) correspond au court-circuit placé au bout de la cellule de mesure, tandis que la deuxième (en bleu) est celle de l'échantillon à mesurer.

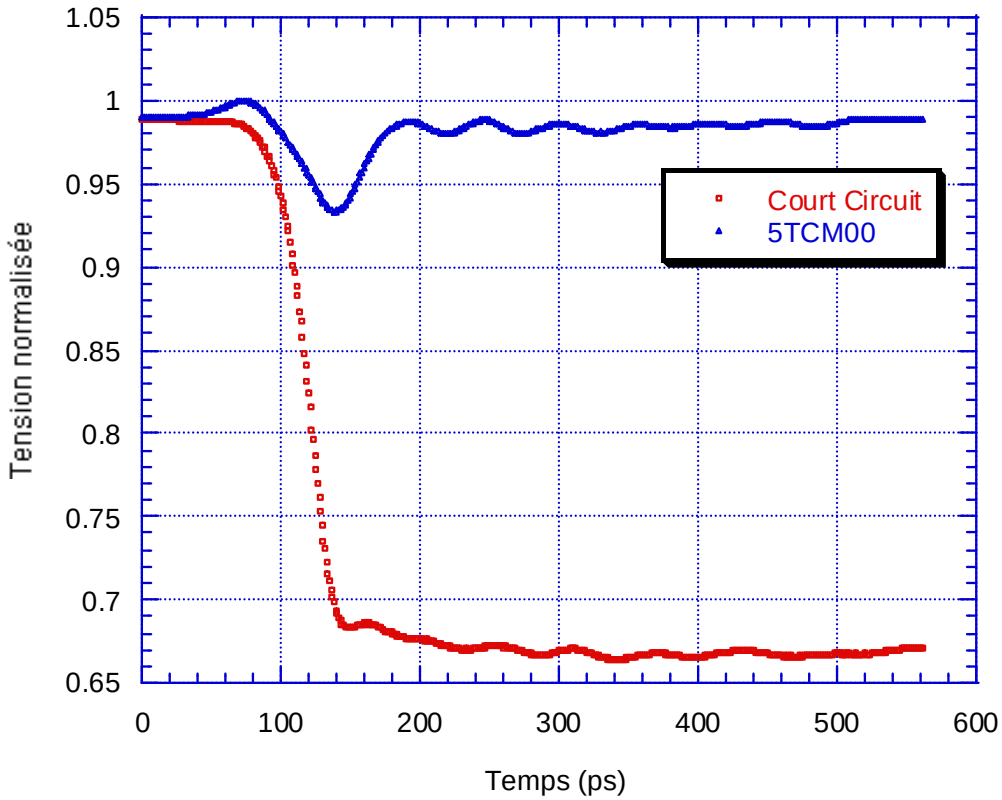


Figure 3.6 : Réponse TDR du composite 5TCM00

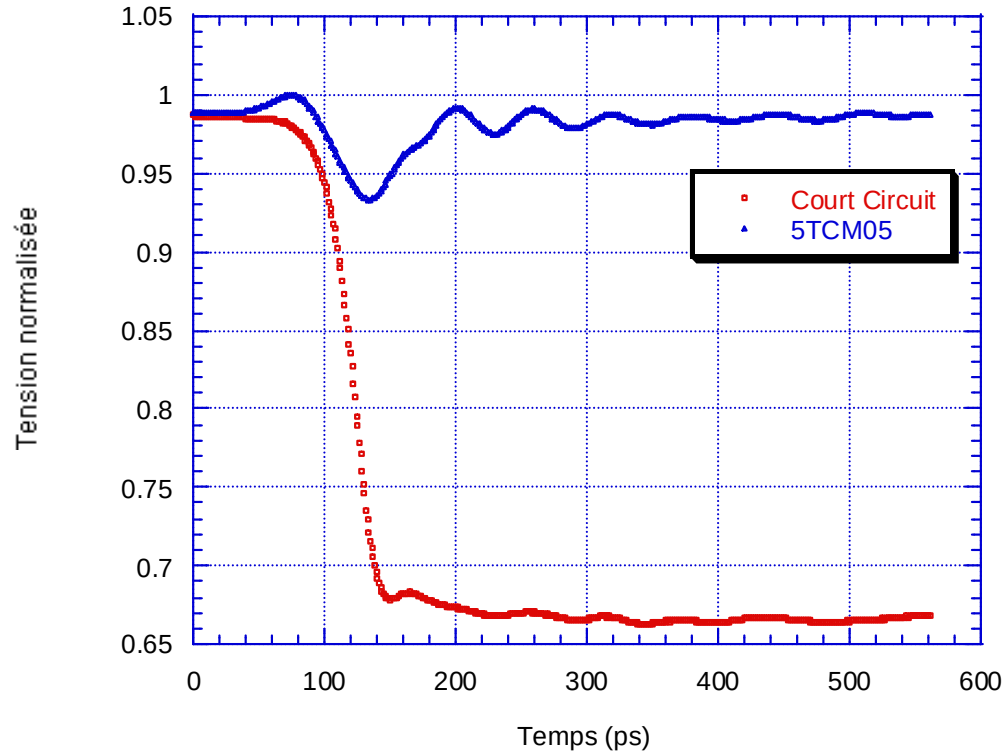


Figure 3.7 : Réponse TDR du composite 5TCM05

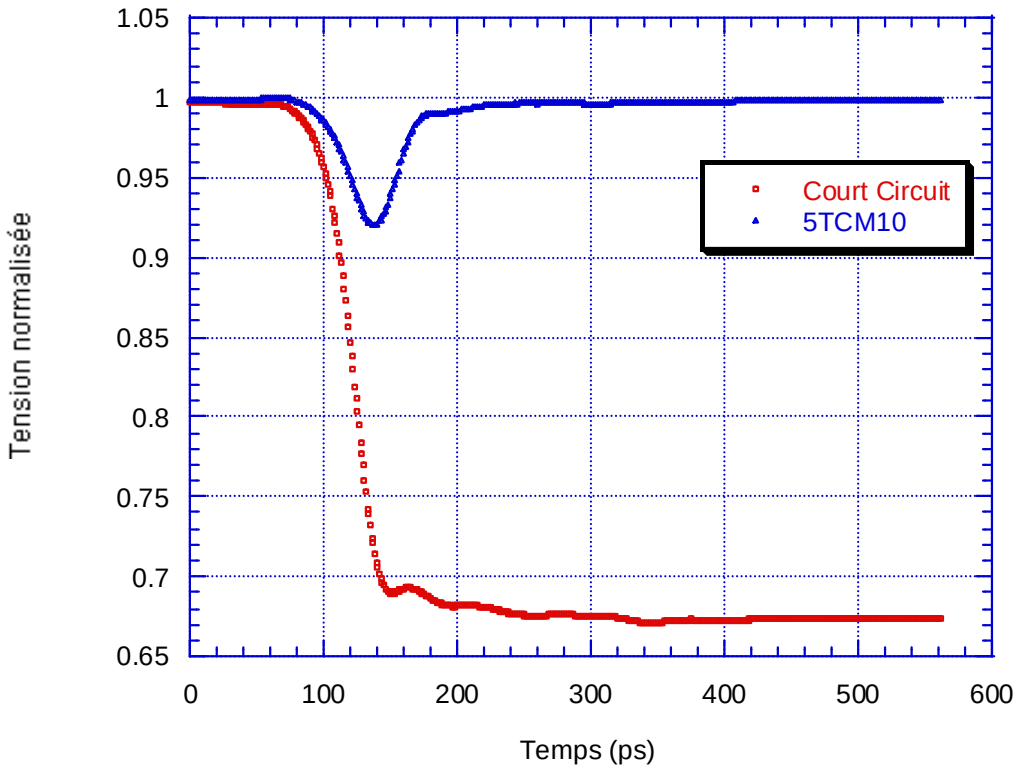


Figure3.8 : Réponse TDR du composite 5TCM10

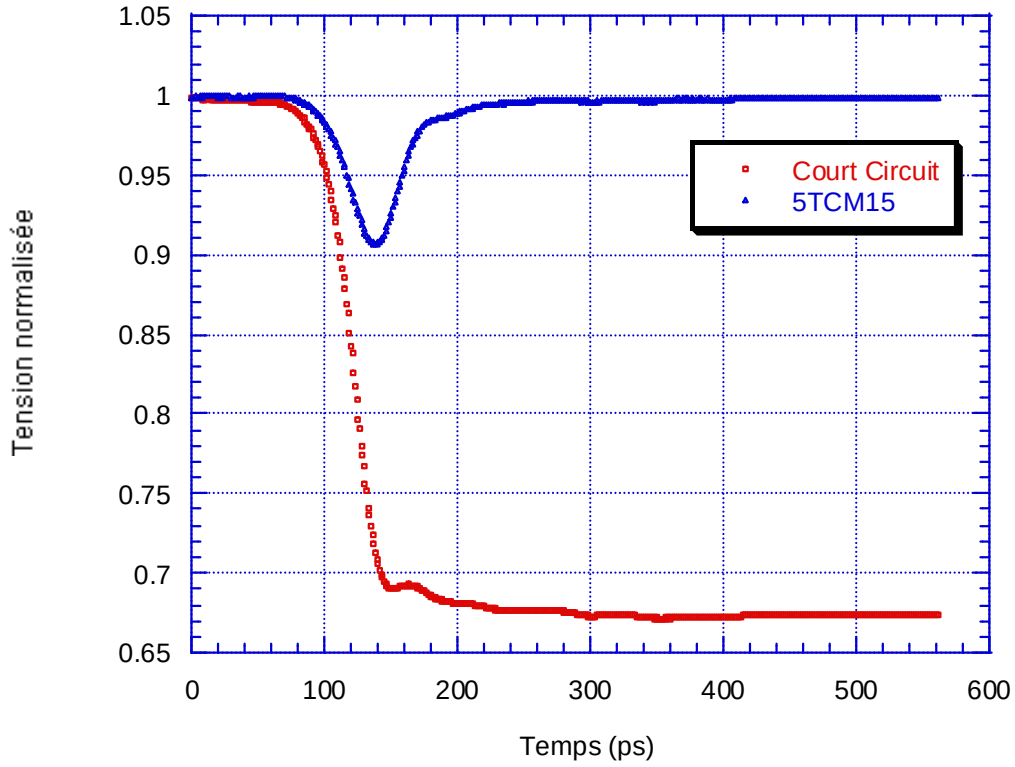


Figure 3.9 : Réponse TDR du composite 5TCM15

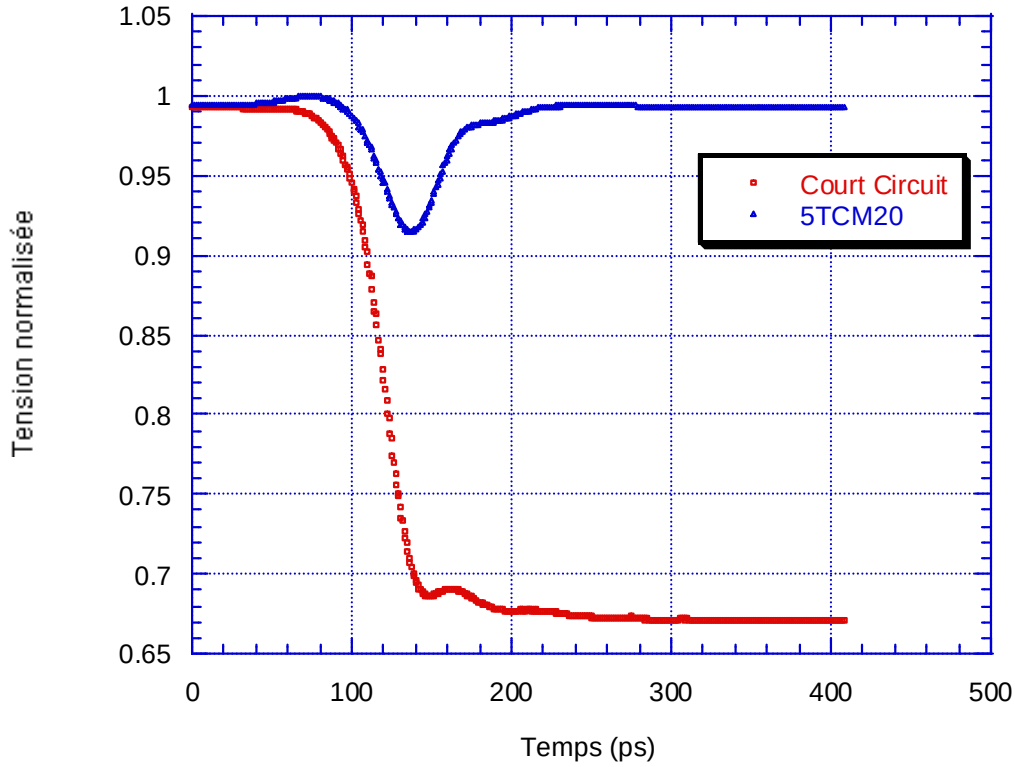


Figure 3.10 : Réponse TDR du composite 5TCM20

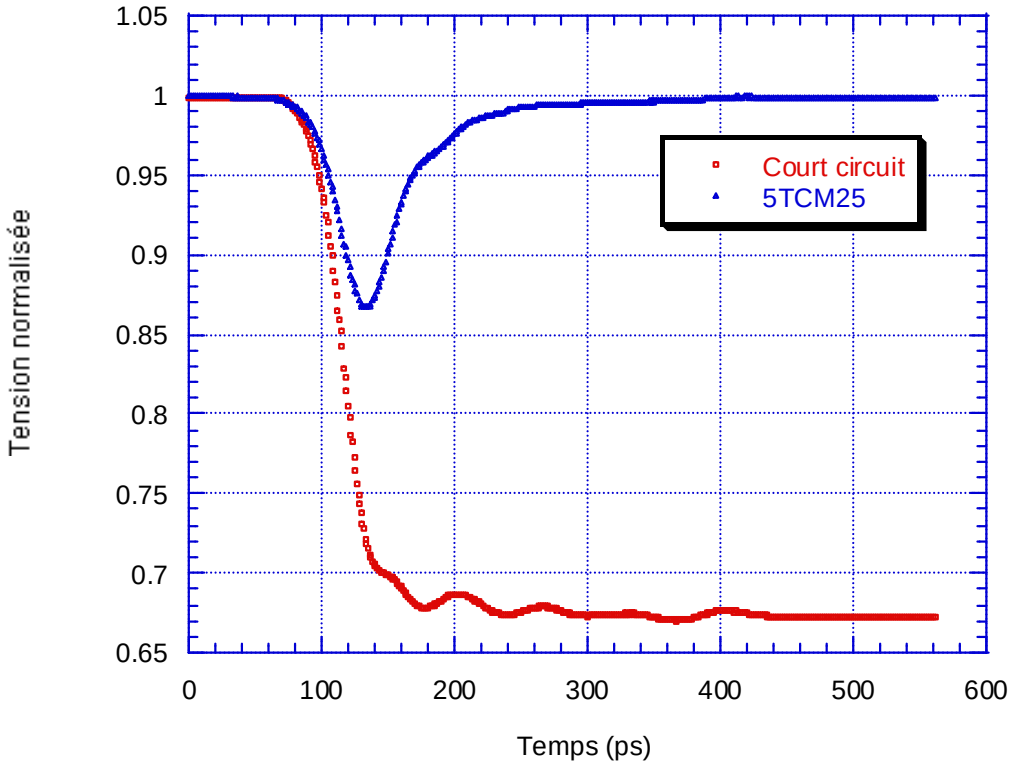


Figure 3.11 : Réponse TDR du composite 5TCM25

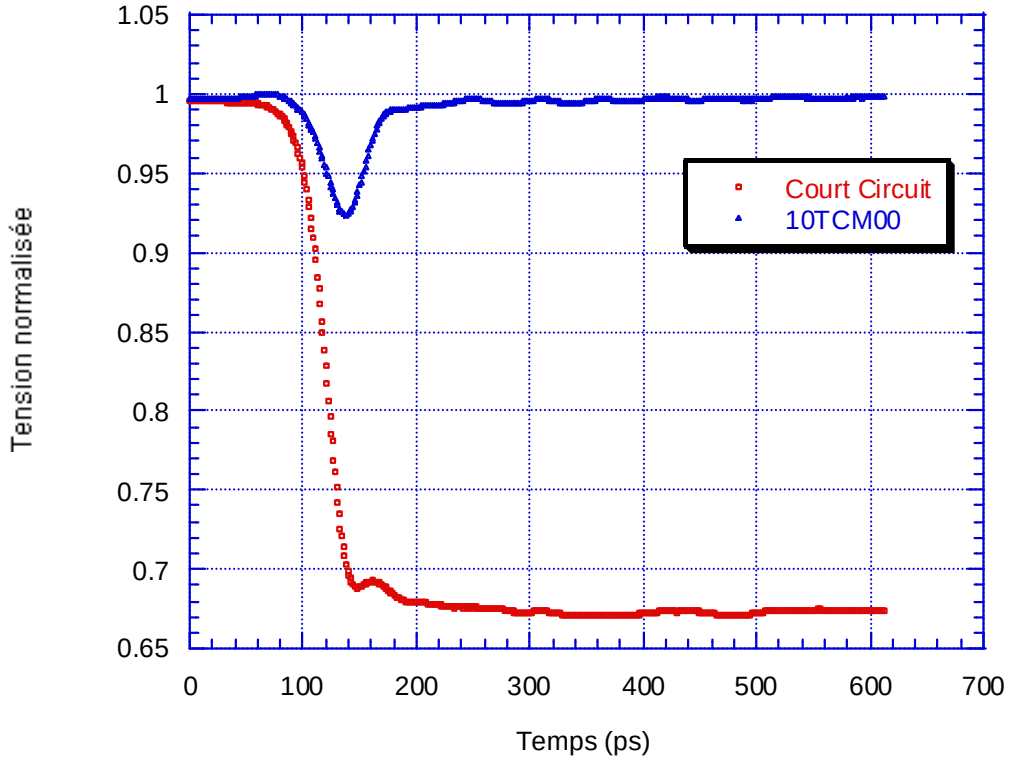


Figure 3.12 : Réponse TDR du composite 10TCM00

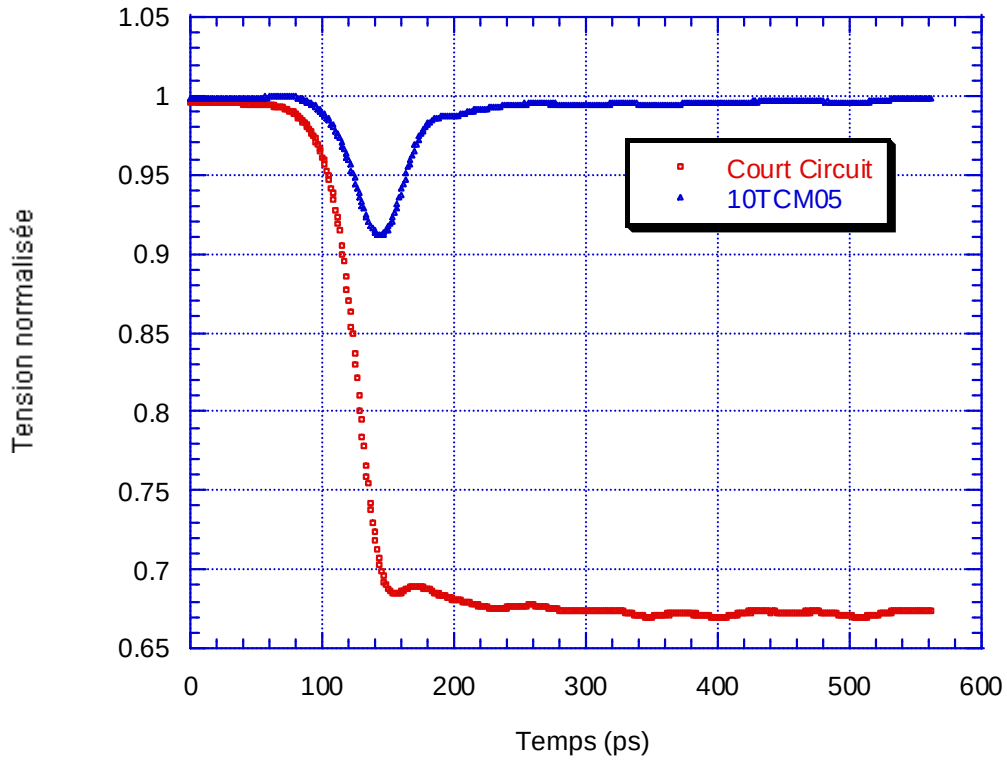


Figure 3.13 : Réponse TDR du composite 10TCM05

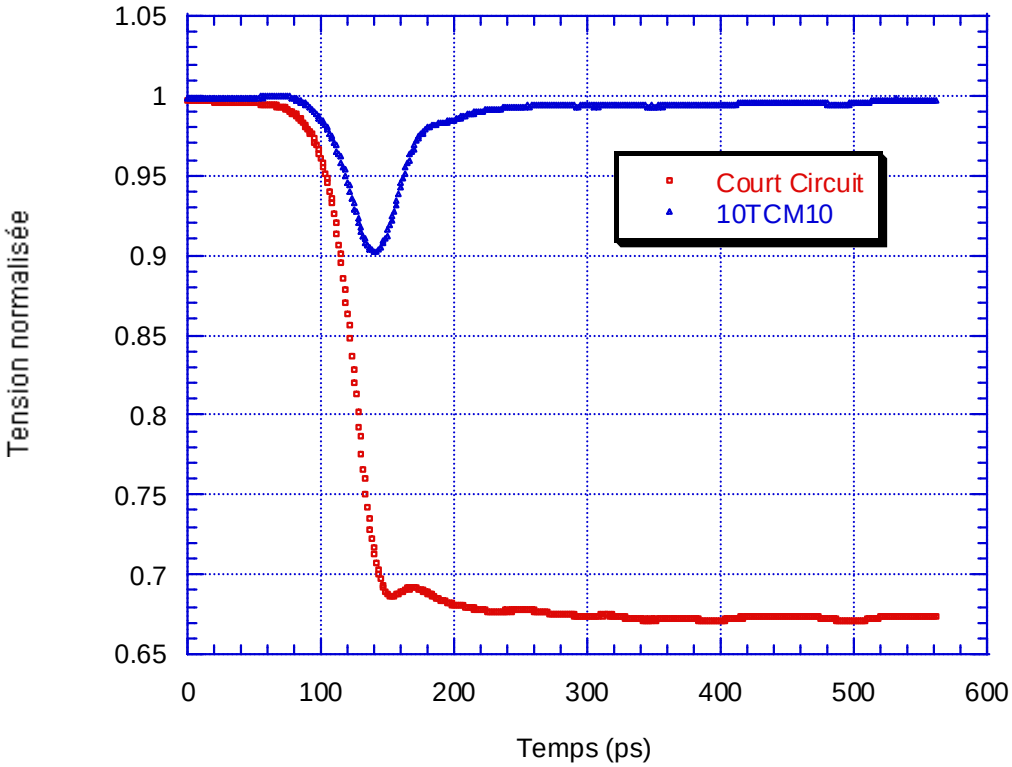


Figure 3.14 : Réponse TDR du composite 10TCM10

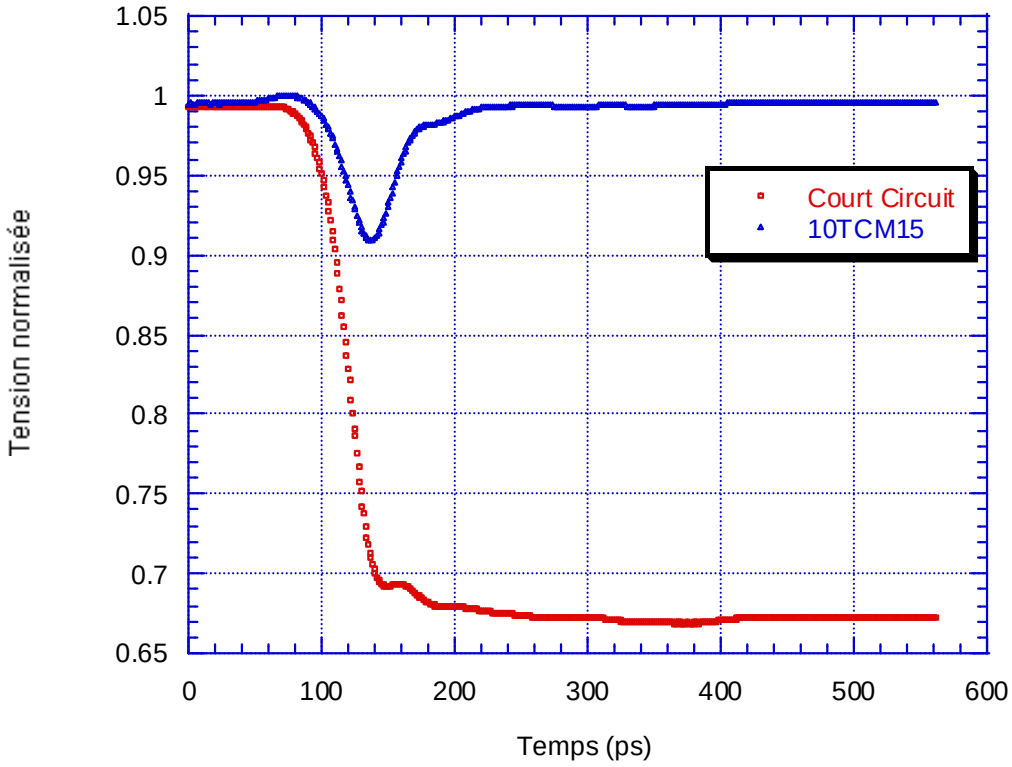


Figure 3.15 : Réponse TDR du composite 5TCM15

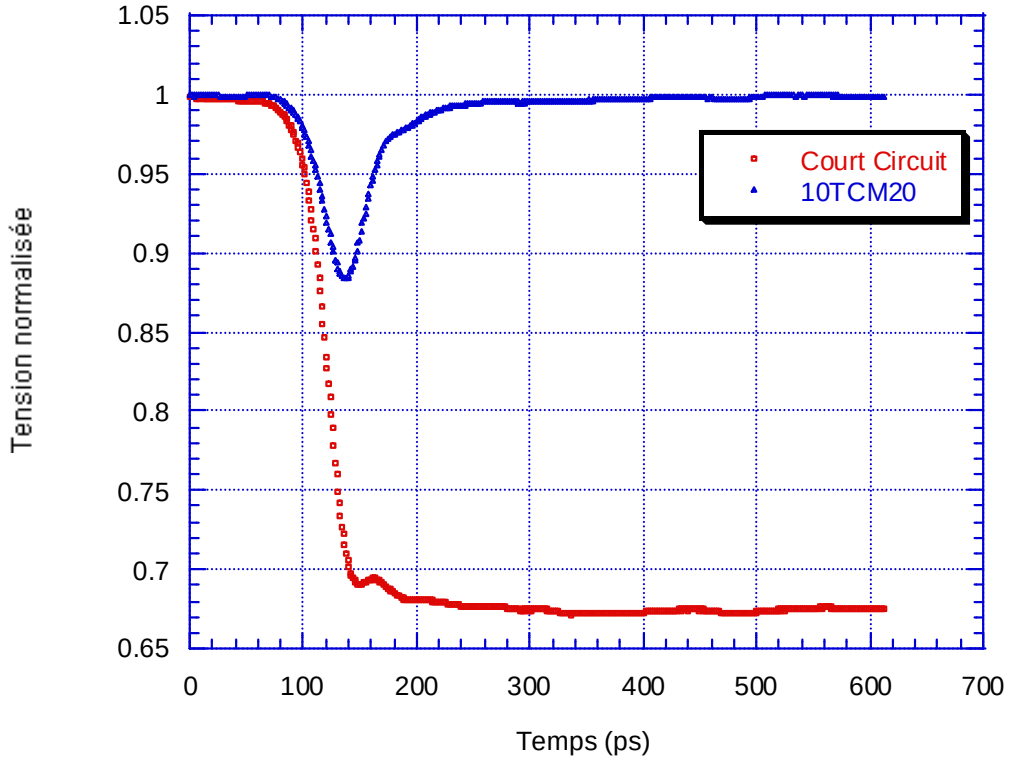


Figure 3.16 : Réponse TDR du composite 10TCM20

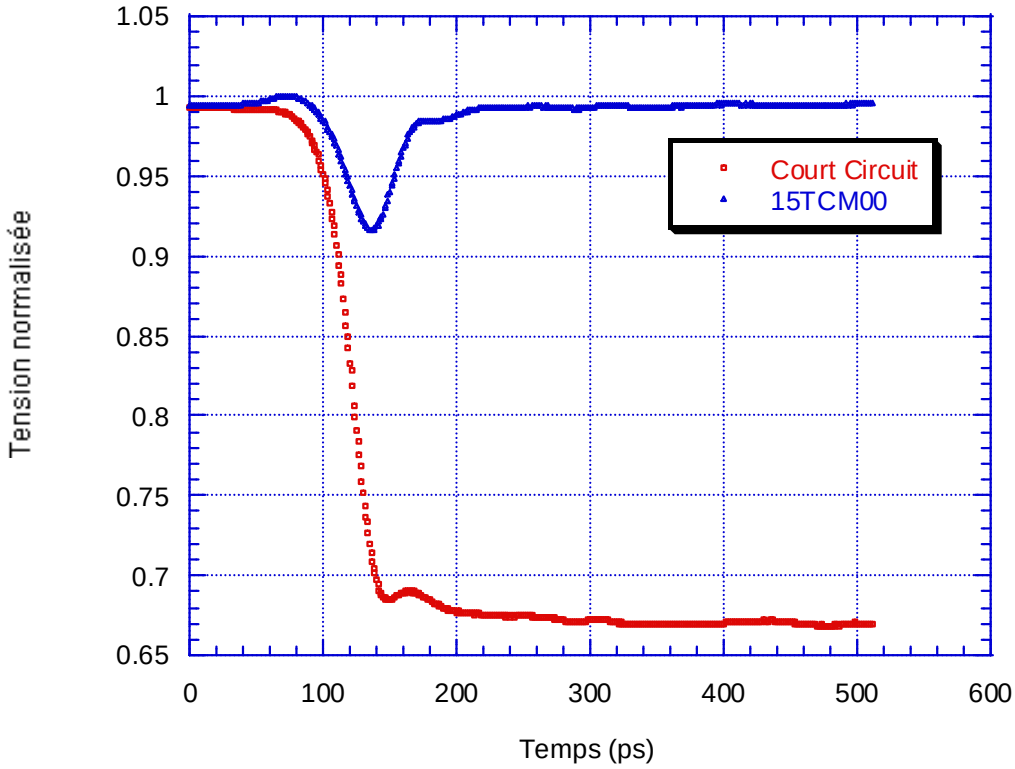


Figure 3.17 : Réponse TDR du composite 15TCM00

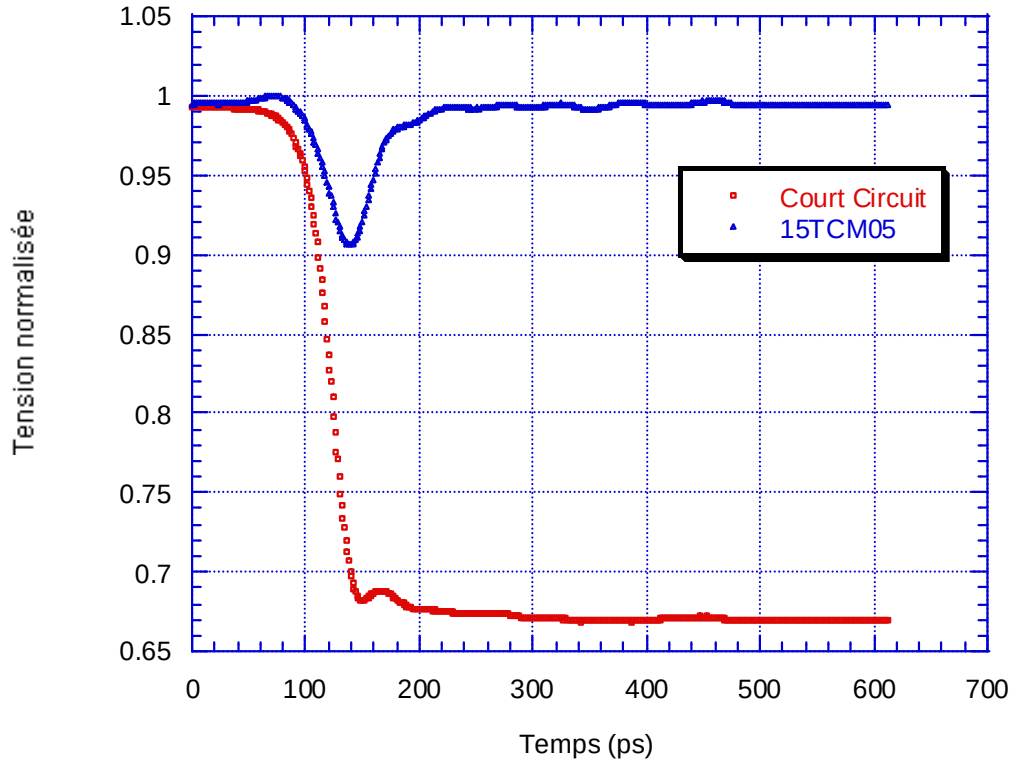


Figure 3.18 : Réponse TDR du composite 15TCM05

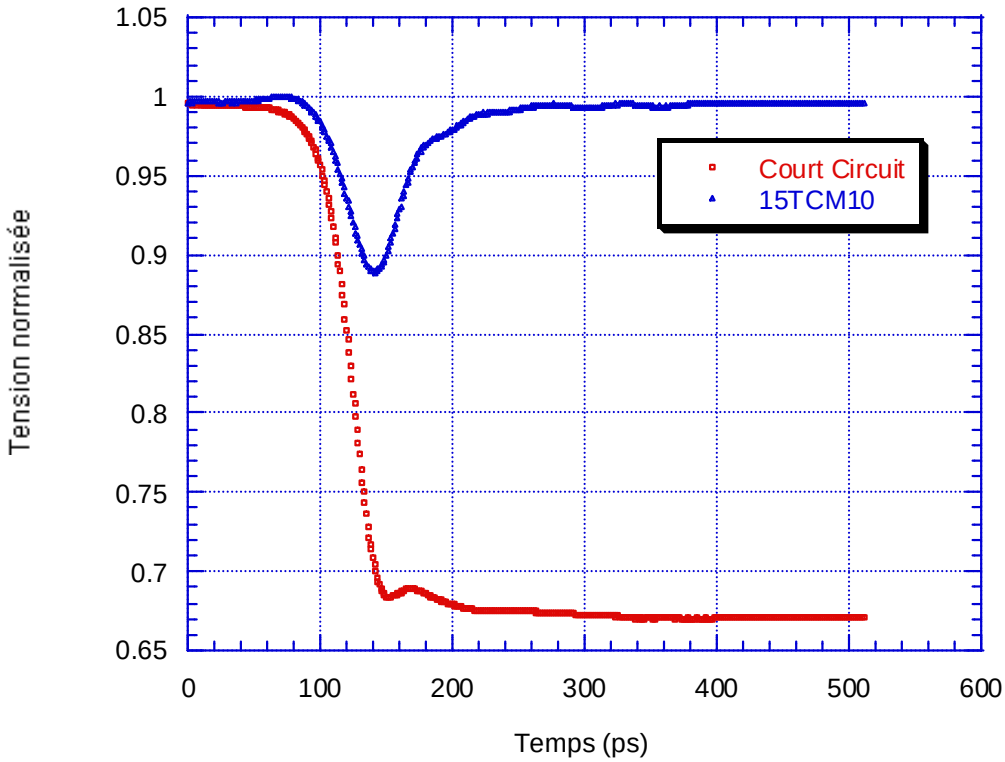


Figure 3.19 : Réponse TDR du composite 15TCM10

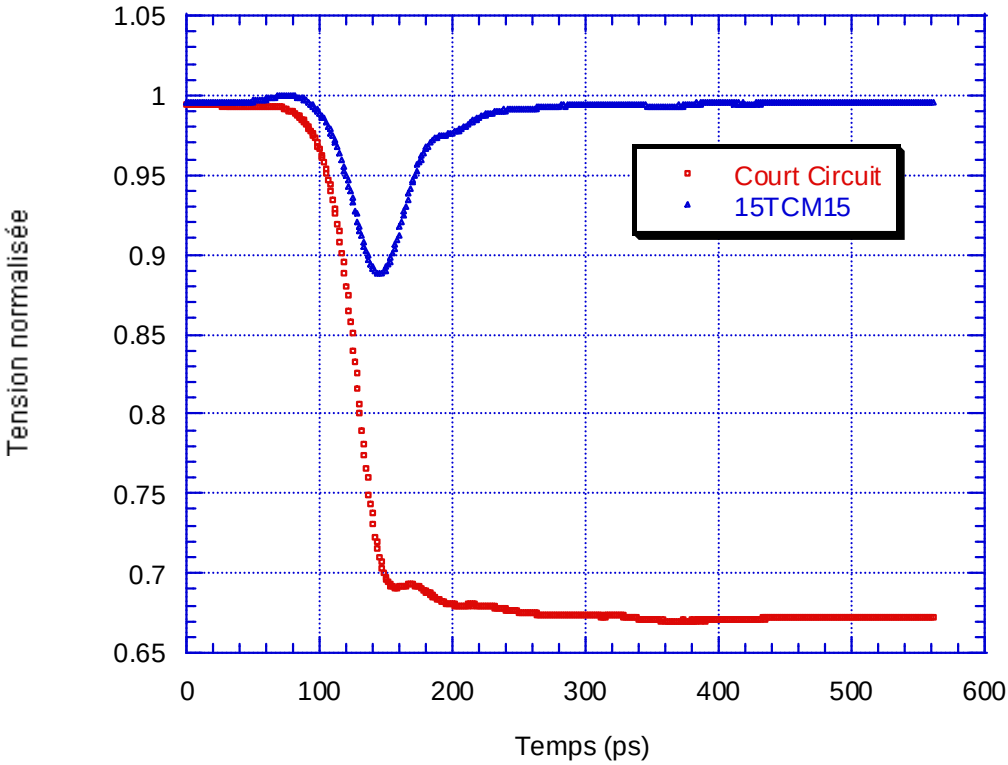


Figure 3.20 : Réponse TDR du composite 15TCM15

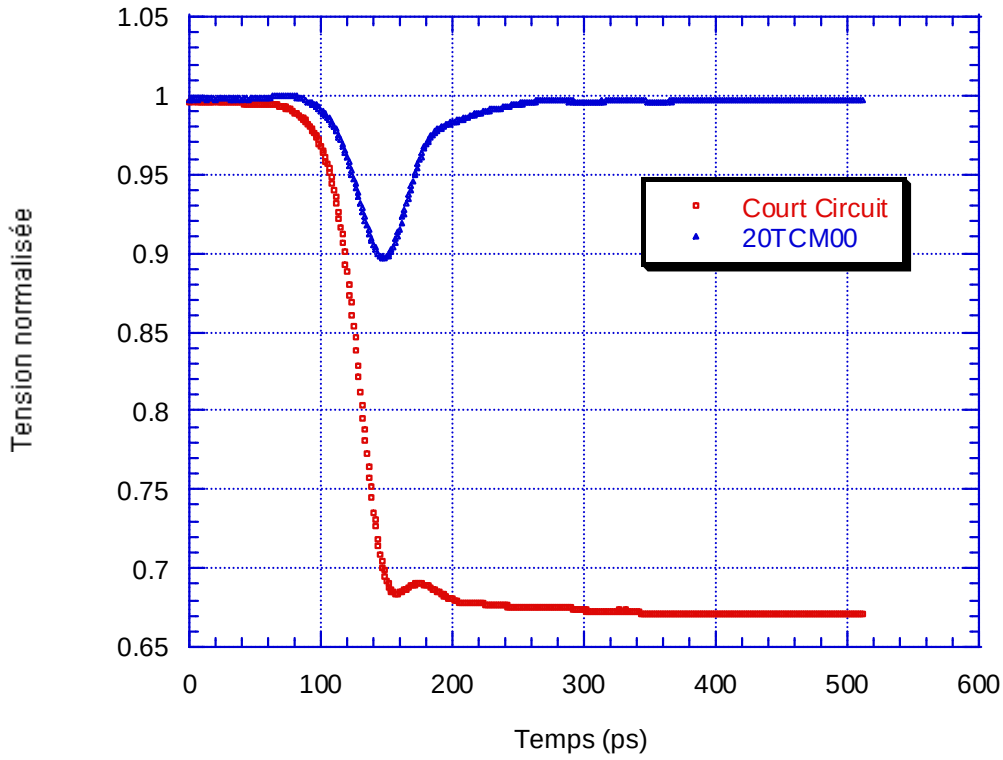


Figure 3.21 : Réponse TDR du composite 20TCM00

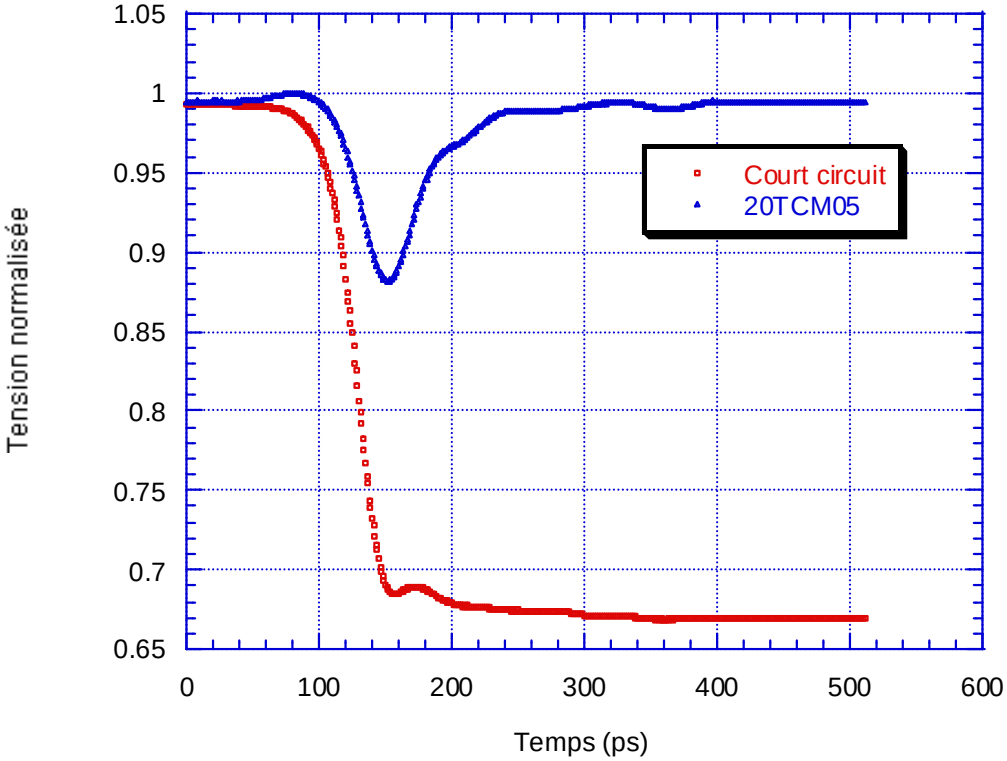


Figure 3.22 : Réponse TDR du composite 20TCM05

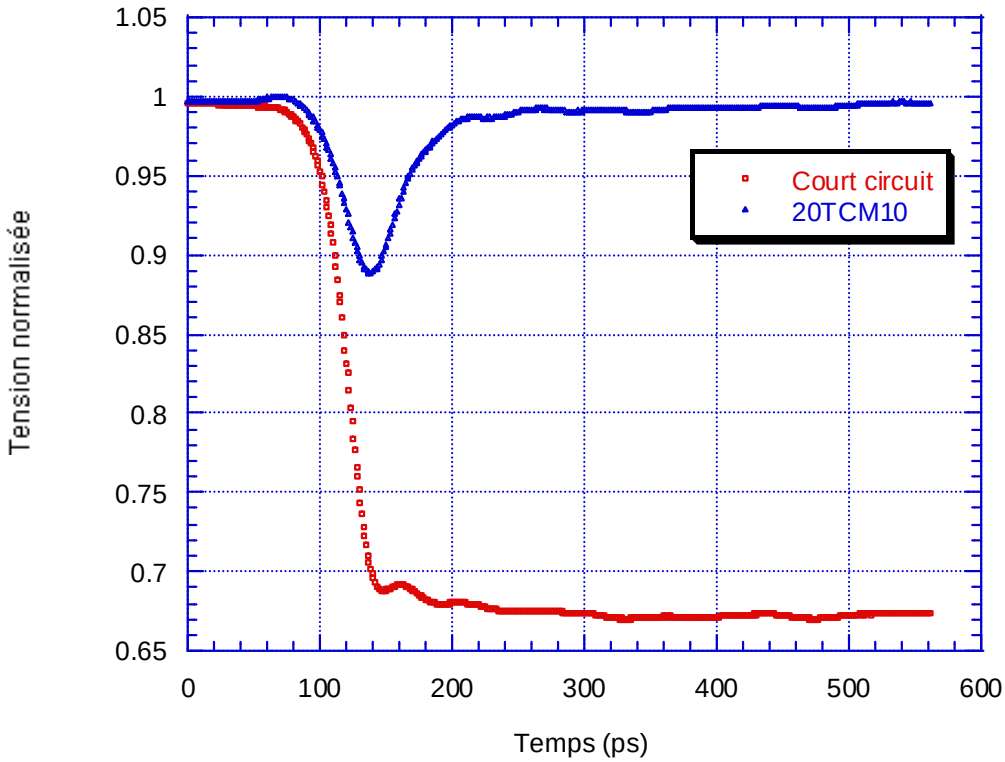


Figure 3.23 : Réponse TDR du composite 20TCM10

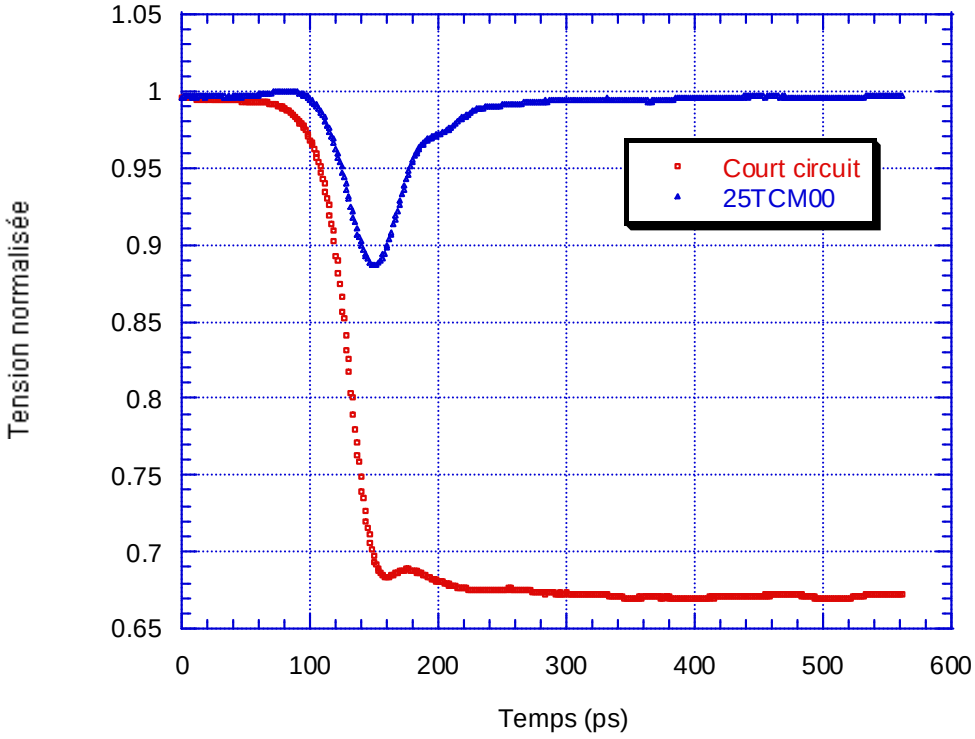


Figure 3.24 : Réponse TDR du composite 25TCM00

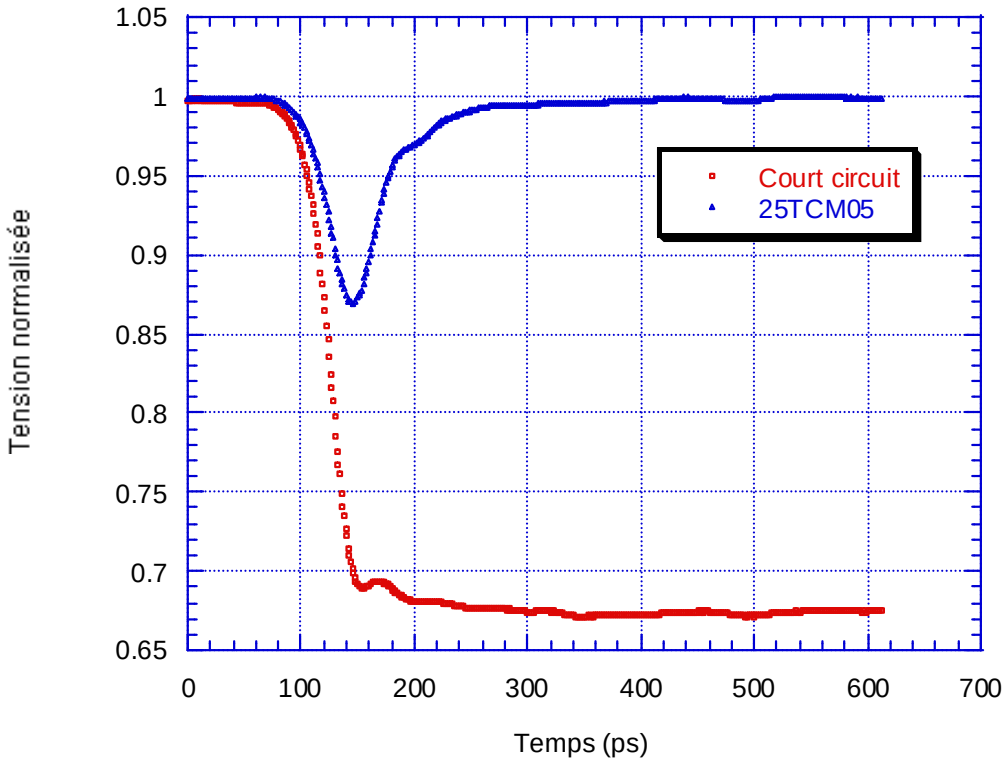


Figure 3.25 : Réponse TDR du composite 25TCM05

En examinant les différentes figures ci-dessus (3.6 –3.25), nous pouvons constater clairement que la réponse TDR, relative aux différents échantillons, est celle des composites de nature diélectrique [1, 2, 32, 33, 34]. En outre, ces courbe TDR présentent des minimums dont les valeurs varient en fonction des concentrations des différents constituants.
Il est à noter que les ondulations qui ont émaillé les courbes en rouge, relatives aux réponses TDR des courts-circuits, sont principalement dues, soit à l'accumulation des charges statique sur ledit court circuit placé au bout de la cellule de mesure, soit aux mauvais contacts des différents raccords existants le long de la ligne de mesure.

3-8 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exposé brièvement la démarche expérimentale suivie lors de toutes les mesures. Par contre, nous nous sommes penchés davantage sur la technique de fabrication des matériaux composites en donnant des informations un peu détaillées sur les matériaux constituants. Et ce, en prenant en considération leurs propriétés moléculaires et cristallographiques. Ces informations seraient d'une grande utilité lorsqu'il s'agit d'interpréter les résultats obtenus. Par ailleurs, il nous a semblé essentiel de présenter les différentes posologies, et ce, pour chaque constituant tout en respectant un pas bien déterminé ainsi que les conditions nécessaires pour l'obtention des mélanges de caractère aléatoire.
En effet, Vu que la spectroscopie est basée essentiellement sur l'analyse fréquentielle des résultats bruts de la réflectométrie temporelle, nous avons essayé d'élargir notre compréhension vis-à-vis de l'aspect traitement de signaux en mettant en exergue la transformée de Fourier discrète et l'utilisation de la méthode Samulon dont le but est de simplifier les calculs et l'extraction de la permittivité. Et à la fin de ce chapitre, nous avons passé en revue les résultats bruts de la réflectométrie temporelle.

Références

1 *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*

2 *A. Benhamouda «Caractérisation électromagnétique de polymère chargé par des mélanges de titanates et d'oxyde en utilisant la spectroscopie en domaine temporel» thèse de Doctorat. UFAS : s.n. 2010*

3 *Lee H, Neville K (1957). Epoxy resins. Their applications and technology, McGraw-Hill, New York*

4 *Kolthoum Ismail Osman" synthesis and characterization of $BaTiO_3$ ferroelectric material" doctor of philosophy in metallurgical engineering, Faculty of engineering, Cairo university Giza, Egypt 2011*

5 *N. Nikulin, "Fundamentals of electrical materials", Mir Publishers, Moscow, (1988).*

6 *D. W. Richerson, "Modern ceramic engineering: Properties, processing, and use in design", Second Edition, Marcel Dekker, inc., (1992).*

7 *S. Luo, Z. Tang, W. Yao, and Z. Zhang, "Low-temperature combustion synthesis and characterization of nanosized tetragonal barium titanate powders", Microelectronic Engineering, 66 (2003) 147-152.*

8 *S. Ahmad, R. K. Panda, and V. F. Janas, "Ferroelectric ceramics: processing, properties & applications", http://www.rci.rutgers.edu/~ecerg/projects/ferroelectric.html , (2006)*

9 *Tony Oates (2007), "Lime and Limestone", Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry (7th ed.), Wiley, pp. 1–32, doi:10.1002/14356007.a15_317*

10 *Gretton, Lel. "Lime power for cooking - medieval pots to 21st century cans". Old & Interesting. Retrieved 13 February 2018.*

11 *Fellner-Feldegg, H., The measurement of dielectrics in time domain. J. Phys. Chem., 73, pp. 616-623, 1969.*

12 *Fellner-Feldegg, H. et Barnett, E.F., Reflexion of a voltage step from a section of transmission line filled with a polar dielectric. 74, pp. 1962-1965, 1970.*

13 *R. H. Cole, Dielectric response by real time analysis of time domain spectroscopy data. J. Phys. Chem., 78, pp. 1140-1141, 1974.*

14 *E. Mattei, A. De Santis, A. Di Matteo, E. Pettinelli, G. Vannaron, Electromagnetic parameters of dielectr and magnetic mixtures evaluated by TDR, IEEE Geoscience and remote sensing letters, Vol. 5, N°. 4. 2008.*

15 *G. Moradi, A. Abdipour, Measuring the Permittivity of Dielectric Materials Using STDR Approach, Progress In Electromagnetics Research, PIER 77, pp. 357–365, 2007.*

16 *P. J. Gregory, Poss Roland, J. Eastham, S. Micin, Use of Time Domain Reflectometry (TDR) to measure the water content of sandy soils. Australian Journal of Soil Research, (33), pp. 265-276, 1995.*

17 *R. H. Cole, Evaluation of dielectric permittivity by time domain spectroscopy. J. Phys. Chem., 79, pp. 93-94. 357, 1975.*

18 *Cole, R.H., Evaluation of dielectric behavior by time domain spectroscopy, I. Dielectric response by real time analysis. J. Phys. Chem., 79" 1459—1469, 1975b.*

19 *Cole, R.H., Evaluation of dielectric behavior by time domain spectroscopy, II. Complex permittivity J. Phys. Chem., 79, pp. 1469-1474, 1975c.*

20 *M. Garcia Gracia. Caracterizacion Electromagnetica De Dielectricos En El Domino Del Tiempo. Memoria de Doctor en Ciencias, ZARAGOZA. 1995.*

21 *J. R. Andrews. TDR, Step Response & 'S' Parameters Measurements in the Time Domain. Picosecond Pulse Labs AN-3044, Revision 1, 5/89. 1989.*

22 *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.*

23 *S. W. Smith. The Scientist & Engineer's Guide to Digital Signal Processing. 2001.*

24 *B. Parruck, S. M. Riad. TDR, Step response ans 'S' parameters measurements in the time domain. Picosecond pulse labs AN-3044, Revision 1, 5/89. 1989.*

25 *A. Mdarhri. Propriétés électromagnétiques de matériaux hétérogènes: Approche expérimentale et modélisation. thèse de doctorat. 2007.*

26 *S. Liang, S. Chong, E. Giannelis. Barium titanate/epoxy composite dielectric materials. Proceedings of the 48th ECTC, pp. 171–175. 1998.*

27 *H. A. Samulon. Proc. IRE, 39, 175. 1951.*

28 *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.*

29 *A. Bennia, S. M. Riad. An optimization technique for iterative frequency domain deconvolution. IEEE transactions on instrumentation and measurement, Vol. 39. N° 2. 1990.*

30 *W. L. Gans. école d'été du Trégor, Lanion. 1978.*

31 *A. M. Nicolson. Electorn. Lett., 9, 317. 1973.*

32 *F. Sischka. Characterization Handbook. TDR. 2002.*

33 *V. Dobrincu, S. B. Balmus, G. N. Pascariu, D. D. Sandu. Characterization of dielectric mixtures by the time domain reflectometry (TDR). Journal of optoelectronics and advaced materials, Vol. 8, No. 3, p. 956 - 961. 2006.*

34 *P. Gasner. Measurement of Complex Permittivity by Time Domain Reflectometry Comparison with Frequency Domain Reflectometry. 1995.*

CHAPITRE 4

Mesures, Résultats et discussions

4.1 Introduction

Nous allons entamer ce chapitre par une description un peu détaillée des différentes parties constituant le banc de mesure TDS (Figure 4.1), en mettant un accent particulier sur celles de la partie RDT (réflectométrie dans le domaine temporel). Ensuite, nous allons exposer les résultats de notre contribution **[1]**, obtenus lors de ce travail, portant sur le comportement électromagnétique des composites quaternaires $RE/BaTiO_3/CaO/MnO_2$ en haute et en basse fréquences. Un modèle théorique, à savoir celui de Lichtenecker modifié, a été adopté pour les composites quaternaires en vue de prédire ce comportement en basse fréquence. Pour déduire les valeurs du facteur de forme relatif à ce modèle, nous allons recourir à une méthode numérique en l'occurrence celle de la régression non linéaire RNL. Pour valoriser au mieux ces résultats, une étude comparative sera menée entre ceux obtenus par le travail expérimental et ceux issus de l'étude théorique. Cela doit se faire en estimant l'excès de la constante diélectrique pour chaque cas de figure.

4.2 Description du montage expérimental

Le dispositif, utilisé pour la caractérisation des milieux diélectriques par la méthode TDR, est constitué essentiellement des éléments suivants:

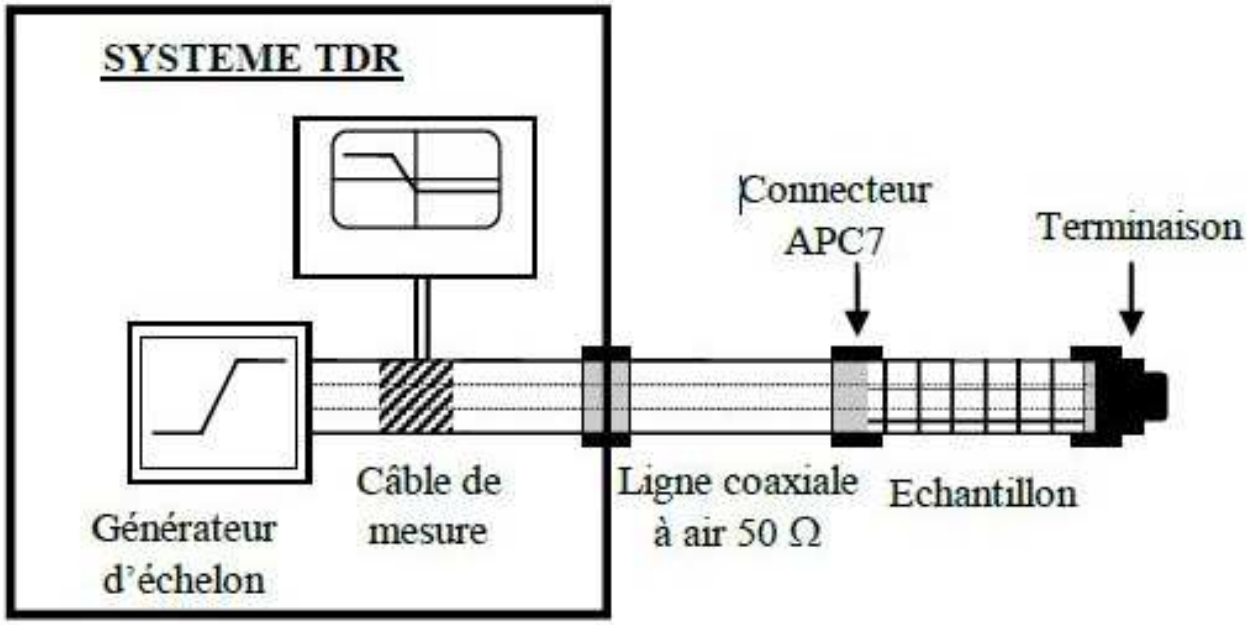


Figure 4.1: Schéma synoptique du système de mesure par TDR **[2]**

Un générateur de signal Figure 4.2 dont le temps de montée et l'amplitude sont respectivement 35ps et 200mV. Ce dernier fait partie d'un ensemble de test (HP 54121T), qui joue à la fois le rôle d'émetteur et de récepteur de signaux.

Un oscilloscope numérique (HP 54120B), Figure 4.3, relié à l'ensemble de test au moyen d'une tête d'échantillonnage qui enregistre les formes d'onde en temps équivalent. La bande passante de l'oscilloscope permet de travailler dans deux modes de fonctionnement de 12,5 GHz et 18 GHz.

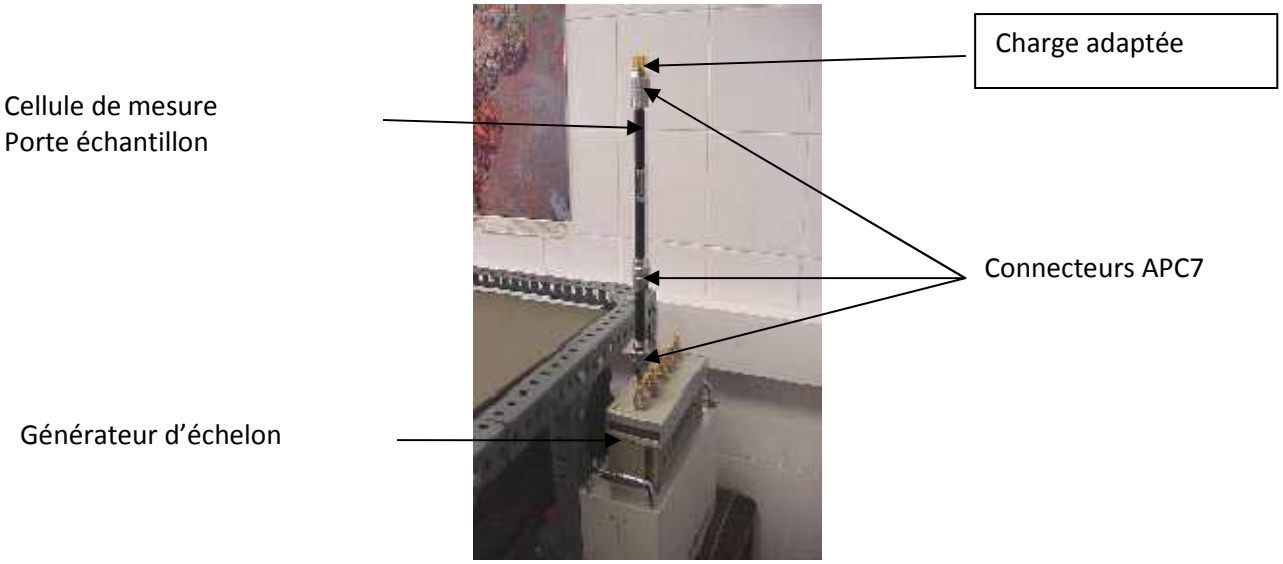


Figure 4.2: Photo du générateur de signaux et de la ligne d'air coaxiale

Figure 4.3: Oscilloscope numérique (HP 54120B)

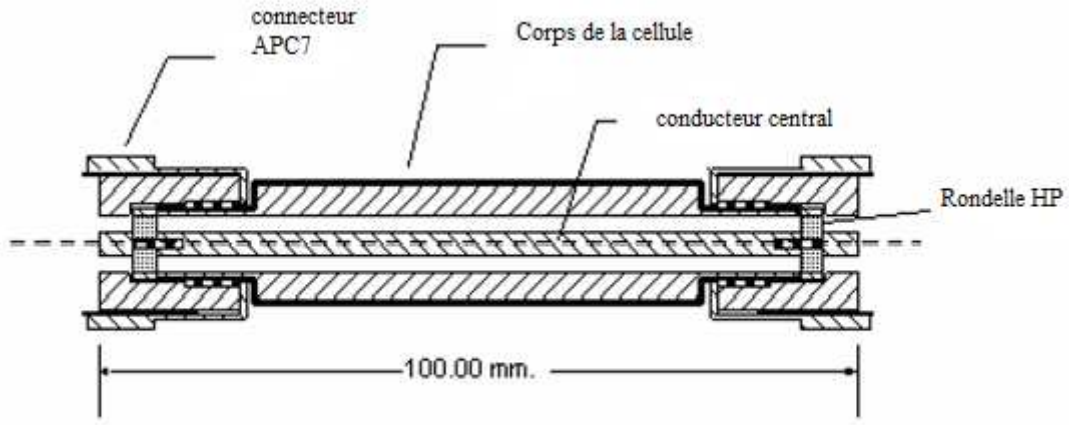


***Figure 4.4: Schéma de la cellule de mesure* [3]**

Une ligne coaxiale de haute précision, dont l'impédance caractéristique est (Z_0= 50Ω), et des connecteurs type APC-7, assurent le lien entre la tête d'échantillonnage et la cellule de mesure, DUT 'Device Under Test'. Le schéma complet, de la cellule en guide coaxial, est illustré sur la figure 4.4. Ladite cellule de mesure est composée d'un conducteur interne et externe de diamètres 3,04 mm et 7 mm, respectivement. Par ailleurs, sa longueur est 100 mm, tel qu'elle est représentée dans la figure 4.4.

La longueur du corps de la cellule, à savoir, le conducteur externe, est de 85mm (figure 4.5). Et il est composé d'acier inoxydable. Cependant, le conducteur interne est un bon matériau conducteur. Les extrémités du corps de la cellule permettent un couplage parfait des deux connecteurs, et ce, grâce à la contribution des deux rondelles de centrage HP. Ces dernières sont placées entre le corps et ses connecteurs (Figure 4.5) et maintiennent le conducteur central au centre du corps de la cellule.

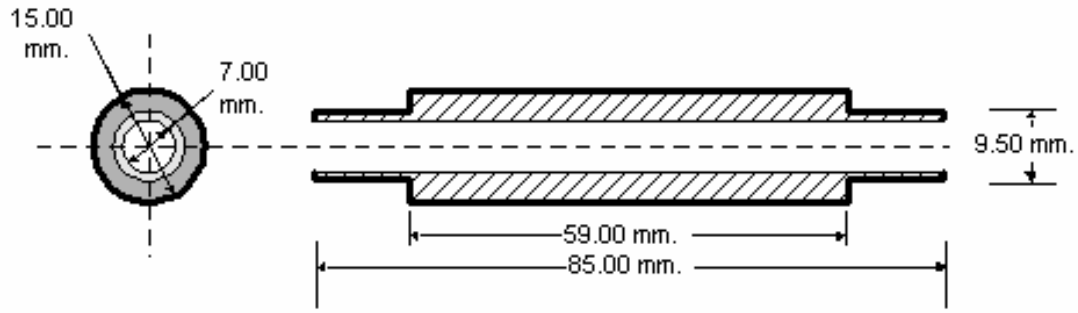


Figure 4. 5: Coupe transversale du corps central de la cellule **[3].**

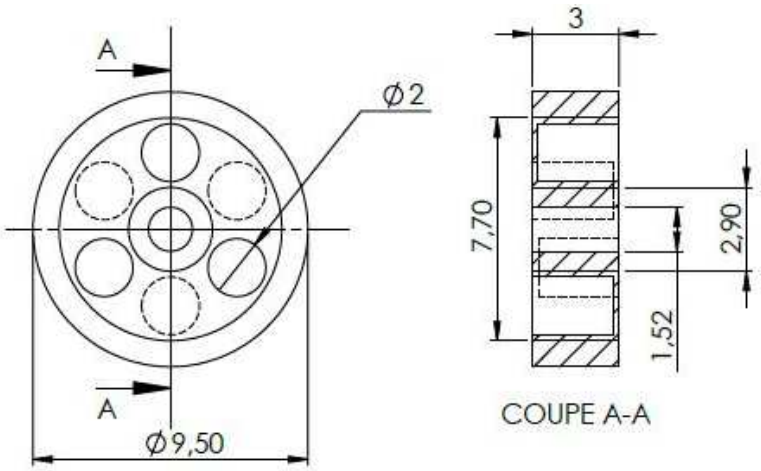


Figure 4.6 Vue de la rondelle de centrage (HP). **[4]**

Les rondelles de centrage, Figure 4.6, sont faites d'un type de diélectrique qui est pratiquement transparent dans la gamme des micro-ondes. De plus, grâce à leur géométrie (avec six trous de 2 mm de diamètre), elles ne produisent aucune distorsion lors de la mesure, c'est-à-dire que le signal n'y sera pas réfléchi.

Tandis que la zone de contact des deux conducteurs, externe et interne, sont faites de façon à assurer une bonne conduction. Voici le processus d'assemblage de la cellule que nous avons décrit figure 4.7:

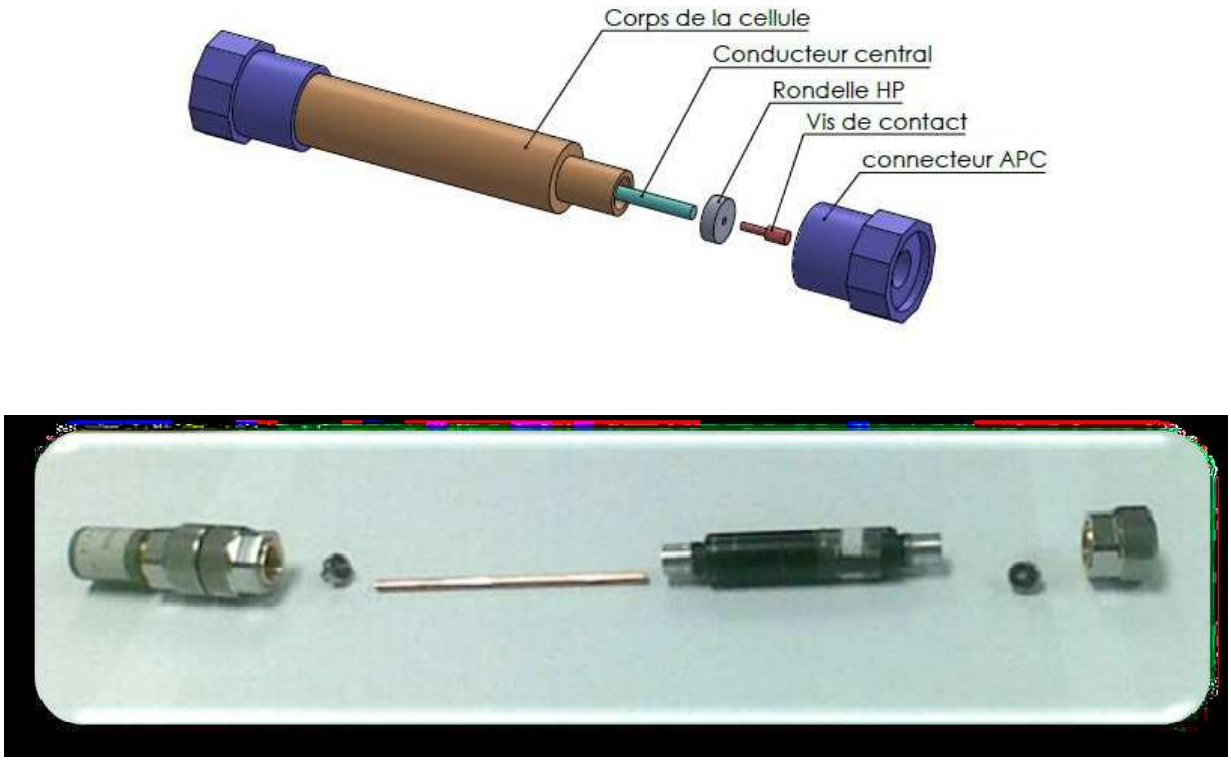


Figure 4.7: a) Schéma et b) Photo de la cellule de mesure **[2]**

A la fin de la cellule précitée, une terminaison spécifique est connectée. Il existe deux types: un court-circuit est utilisé lorsqu'il s'agit de la méthode de la première réflexion et une charge adaptée 50Ω dans le cas où nous optons pour la méthode de réflexion multiple. Ainsi, la méthode choisie est le facteur clé dans la détermination de la terminaison à utiliser.

Dans ce travail, nous allons mesurer une série d'échantillons solides sous forme de rondelle et la méthode utilisée est celle de la réflexion multiple, et pour cette raison nous avons décrit précédemment plus en détail en quoi consiste cette méthode. La rondelle diélectrique (échantillon) à mesurer est placée à l'intérieur de la cellule, à l'extrémité initiale de la ligne de façon que la surface de l'échantillon soit en contact total avec celle de la rondelle HP.

Dans le cas où on applique la méthode de réflexion multiple, une mesure du signal de référence doit être faite au préalable. Par conséquent, un court-circuit est placé à la fin de la ligne coaxiale, et en l'absence de l'échantillon à mesurer et ce, pour obtenir un signal de référence. Ensuite, la terminaison de court-circuit est remplacée par la cellule, contenant l'échantillon à caractériser, terminée par la charge adaptée d'impédance caractéristique de 50Ω (Figure 4.8).

Il est à noter que le dispositif expérimental est relié à un ordinateur qui va nous permettre de contrôler le processus de mesure et d'acquisition des données. Ceci peut se faire en spécifiant le nombre de moyennes souhaitées pour chaque point des signaux du court-circuit de référence et de l'échantillon.

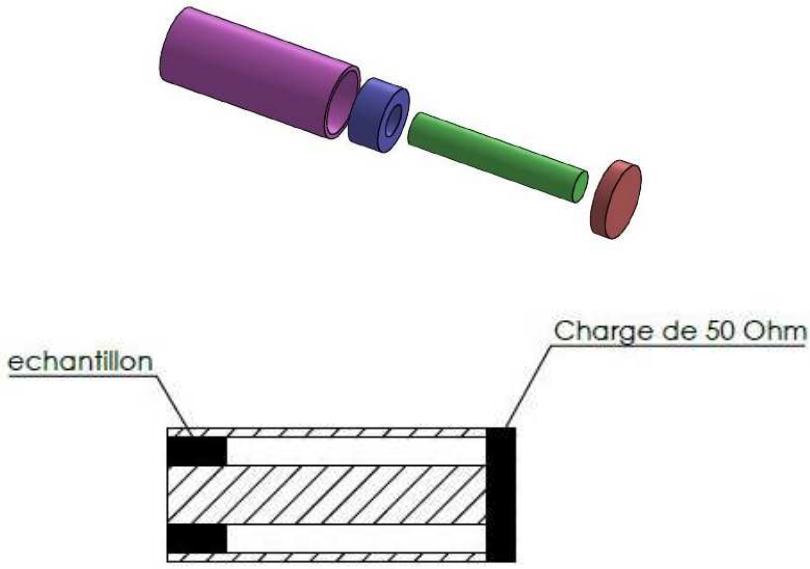


Figure 4.8 Schéma de la méthode de réflexion multiple.

4.3 Résultats et discussions

4.3.1 Analyse spectrale

4.3.1.1 Détermination de la permittivité complexe (ε'- j ε'') des différents composites

Dans cette section, nous voulons étudier la partie réelle (ε') et imaginaire (ε") de la permittivité complexe, et qui sont reliés respectivement au stockage et à la dissipation de l'énergie, sur une bande de fréquence DC–2GHz. Ces deux paramètres diélectriques ont fait l'objet de mesure pour différents échantillons de composites quaternaires RE/$BaTiO_3$/CaO/MnO_2 produits suivant différentes proportions de ces constituants à l'exception de celle de la résine –époxyde qui est maintenue constante (70%) pour éviter le problème de viscosité rencontré en phase de préparation du mélange.

Ces deux composantes de la permittivité diélectriques ont été déduites à partir du coefficient de réflexion, comme mentionné précédemment, qui est mesuré par la technique de réflectométrie en domaine temporel. L'étude de ces paramètres fut conduite en domaine fréquentiel grâce à la transformée de Fourier afin de mettre en évidence le caractère diélectrique du composite de son comportement ohmique et de son importance en cas d'effets de percolation possible.
La Figure 4.9 (a) représente l'évolution de la partie réelle de la permittivité complexe des différents échantillons quaternaires en fonction de la fréquence sur une gamme allant de DC jusqu'à 2GHz. Par ailleurs, il est à noter qu'un code, de type xxTCMyy, à été utilisé où le premier chiffre xx revient à la fraction volumique du titanate de baryum TB, et le dernier chiffre yy représente celle de dioxyde de manganèse, tandis que la fraction volumique d'oxyde de calcium est égale à la fraction

restante (c'est à dire 30-(xx+yy)). La résine époxyde est toujours fixée à 70%. Les codes correspondants à ces composites sont indiqués dans les légendes attachées aux graphes de la Figure 4.9.

Nous constatons, à partir de la famille des courbes relatives aux différentes concentrations de charges possibles, que les deux composites ternaires 5TCM00 et 25TCM05 donnent des courbes qui représentent respectivement les limites inferieure et supérieure de celles des mélanges quaternaires (RE/$BaTiO_3$/CaO/MnO_2).

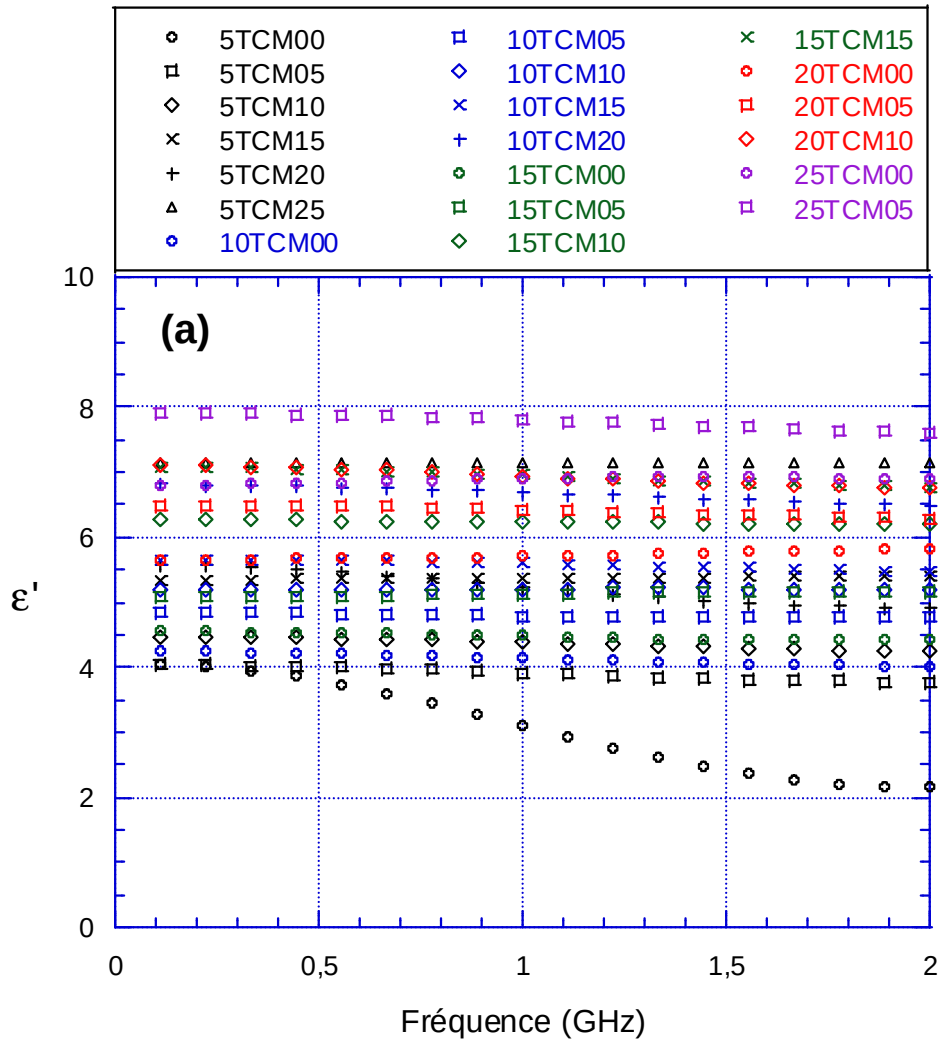


Figure 4.9 (a) Variation de la partie réelle de la permittivité complexe des différents composites en fonction de la fréquence

A partir de l'examen de ces résultats graphiques, trois principaux points d'analyse peuvent être tirés. En premier, l'augmentation de ε' au fur et à mesure que la fraction volumique du titanate de baryum TB et celle de l'oxyde de manganèse MnO_2 augmentent, ce qui signifie une nette contribution de la permittivité du composite. En deuxième lieu, en termes de fréquence, les différents composites quaternaires réalisés (RE-$BaTiO_3$-CaO-MnO_2) présentent approximativement des spectres plats, avec quelquefois de légère décroissance le long de la gamme de fréquences choisie (du DC-2GHz.). Le troisième point d'analyse est caractérisé par l'exception faite par le composite ternaire 5TCM00

où on note un important fléchissement de la courbe de la partie réelle de la permittivité dont la valeur passe de 4 à 2.1 sur une gamme de fréquence allant de 0.5 à 1.5 GHz. Ceci est probablement dû à la forte concentration de CaO et ayant un comportement plus conducteur par rapport à celle du TB. Le fléchissement de ce paramètre pourrait être attribué à une présence d'effet de percolation autour d'une fréquence de 1GHz.

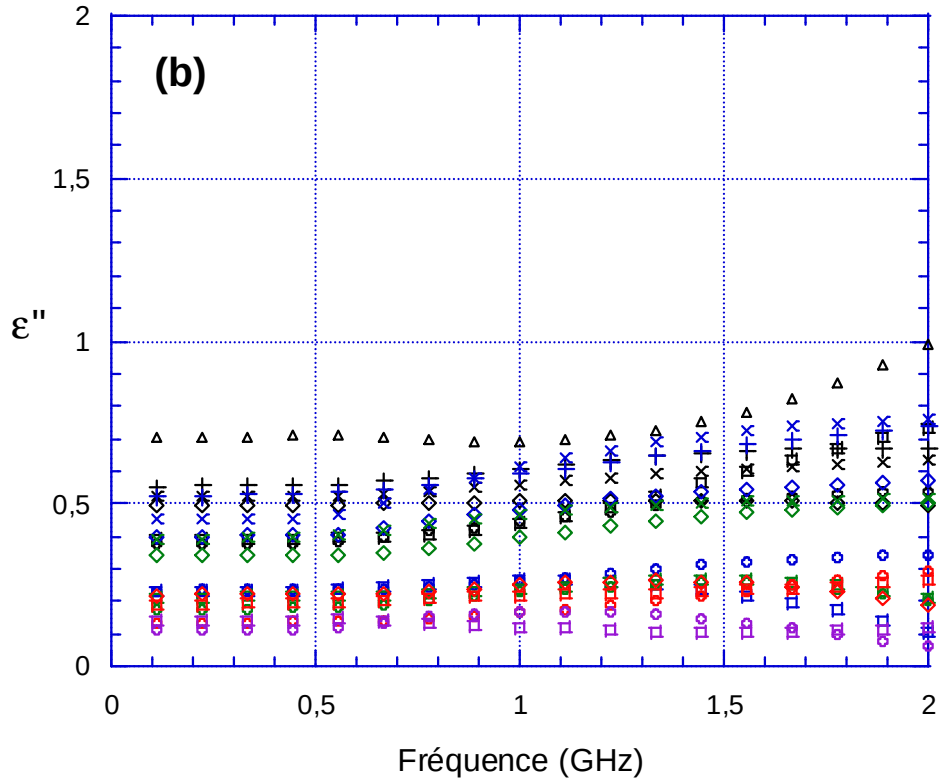


Figure 4.9 (b) Variation de la partie imaginaire de la permittivité complexe des différents composites en fonction de la fréquence

La Figure 4.9(b) montre l'évolution de la composante imaginaire de la permittivité complexe en fonction de la fréquence, pour différentes combinaisons de concentration volumique des constituants. Nous constatons que cette permittivité imaginaire fournit des spectres d'amplitude relatifs aux différents échantillons presque constants pour des fréquences basses allant jusqu'à 1.2GHz et où, cependant, au delà de celle-ci on assiste à une légère augmentation en amplitude. Néanmoins, l'exception est faite d'une façon notable à la croissance de cette permittivité observée pour le composite dépourvu de L'oxyde de calcium (5TBCM25) et qui est plus substantielle par rapport à celles du reste des composites. Ce qui est remarquable ici est que l'amplitude spectrale de ce constituant est vue comme une limite supérieure à celles du reste des échantillons. Par ailleurs, une parmi ces dernières constitue leur limite inférieure et provient une fois d'une composition d'un mélange ternaire (25TBCM05).

Du point de vue d'effet de charge sur ε", il est clair que l'augmentation de celle-ci est due en général à la croissance de la charge de CaO dans le mélange prouvant ainsi le caractère semi-conducteur du CaO dominant par rapport aux autres constituants. Cette croissance, nettement apparente en hautes fréquences, est due probablement à l'incapacité des dipôles à suivre le champ externe appliqué en termes d'orientation. Cet effet diminue substantiellement lors de l'injection progressive du MnO_2 qui se substitue au précédent oxyde.

4.3.1.2 Détermination de la conductivité des différents composites

Si nous nous permettons d'élargir un peu le spectre d'utilisation de l'équation (1), nous serons en mesure de mettre en évidence l'effet de la fréquence sur la conductivité des différents composites.

$$\varepsilon''_{BF} = \frac{\sigma_S}{\omega \varepsilon_0} \tag{1}$$

Il est à noter que celle-ci est déduite de la partie imaginaire de la permittivité complexe et sa valeur dépend de l'application à laquelle nous voulons orienter ces matériaux composites. Par exemple, dans les applications concernant le blindage d'interférence électromagnétique, il est important d'avoir une valeur élevée de la partie imaginaire. Par contre, dans le cas des condensateurs, nous avons intérêt à diminuer davantage la partie imaginaire [5].

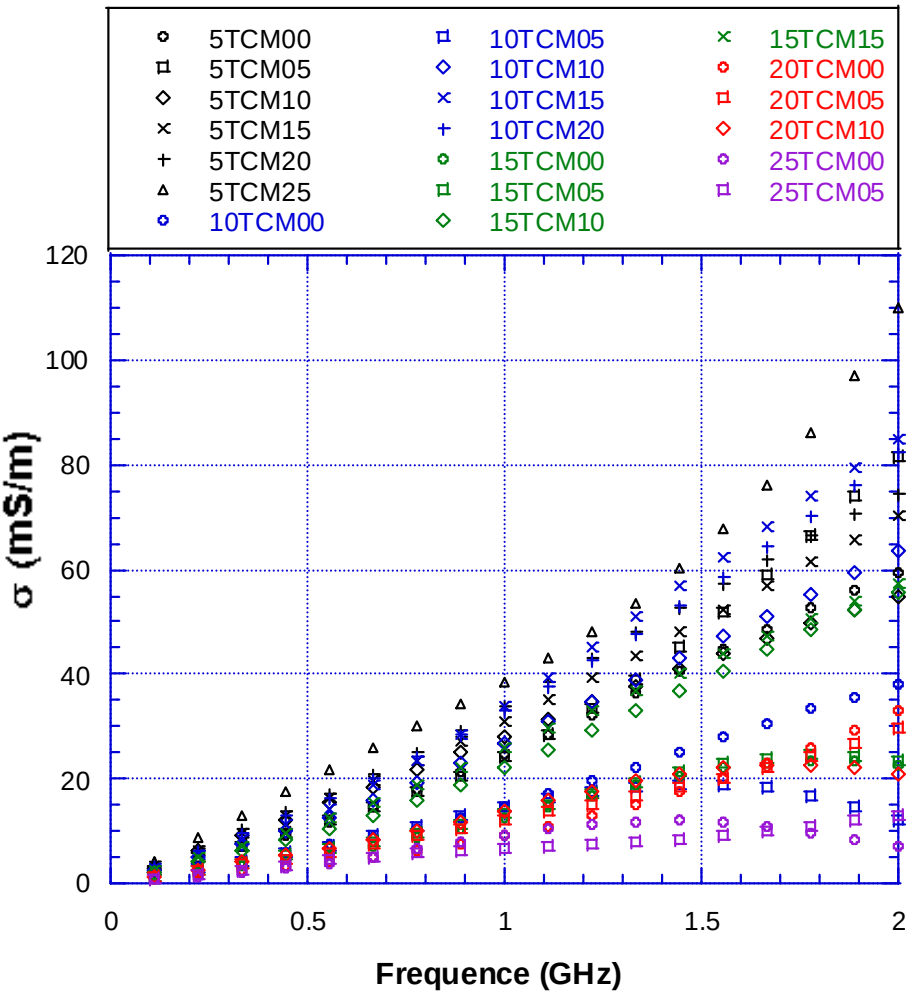


Figure 4.10 Variation de la conductivité des différents composites en fonction de la fréquence de DC-2 GHz

La Figure 4.10 montre l'évolution de la conductivité statique, σ_s des différents composites en fonction de la fréquence. Les courbes résultantes de la mesure de ce paramètre suivent une tendance quasi-linéaire pour la plupart des composites. Nous observons bien l'augmentation accentuée de la conductivité lorsque nous augmentons la concentration de dioxyde de manganèse MnO_2 et diminuons celle de titanate de baryum $BaTiO_3$.

Seulement, à l'approche des fréquences élevées supérieures à 1.5GHz, deux courbes correspondantes aux codes (5TCM25, 25TCM00) changent de tendance et présentent des points d'inflexion où l'une va en crescendo et l'autre en décrescendo respectivement. En effet, ces courbes correspondant aux composites ternaires délimitent de part et d'autre l'ensemble des courbes des composites quaternaires.

4.3.2 Analyse basse fréquence

Dans cette partie de travail, on limite notre analyse uniquement aux résultats enregistrés en basses fréquences (DC - 2GHz) dont l'objectif est l'investigation sur l'effet des oxydes sur la permittivité complexe et la conductivité statique (σ_s) du composite quaternaire et la modélisation de ce paramètre diélectrique. Concernant la partie réelle de cette permittivité (ε'), il a été remarqué ultérieurement la stabilité de sa valeur pour des fréquences allant jusqu'à 2 GHz à l'exception de composite au code 5TCM00 (ternaire) dont la constante diélectrique doit être évaluée dans la région qui précède l'inflexion. Cependant, la partie imaginaire ε"a montré précédemment une inconstance dans sa valeur le long de cette bande de fréquence, alors nous avons opté pour une analyse à une fréquence optimale de 500MHz comme traité dans les travaux antérieurs pour des composites ternaires [6].Cette composante diélectrique a en conséquence confiné l'étude et l'estimation de la conductivité à cette même fréquence.

4.3.2.1 Le comportement diélectrique du composite sous l'effet des oxydes

Figure.4.11 nous montre la variation de la constante diélectrique statique des différents mélanges en fonction de la concentration volumique de dioxyde de manganèse MnO_2. On constate la présence de deux différentes familles d'iso-courbes, la première est tracée avec des concentrations volumiques constantes de CaO, tandis que la deuxième est faite avec des proportions fixes de $BaTiO_3$.

Les concentrations fixes de CaO et $BaTiO_3$ sont indiquées dans les légendes ci-attachées à cette figure ci. Nous remarquons que pour une concentration fixe de l'oxyde de calcium CaO, la variation des deux autres concentrations celle de MnO_2 et $BaTiO_3$ conduit à des courbes de la constante diélectrique présentant un changement de concavités. Celui-ci s'opère à partir des concentrations de CaO allant au delà de 15%. Ce qu'il faut retenir ici est la diminution importante de la permittivité diélectrique que peut entrainer l'augmentation de cet oxyde au détriment des autres constituants.

Le second point important de cette figure émane de famille de courbes pour des concentrations fixes de $BaTiO_3$. Il s'agit des courbes à tendance linéaire pour des concentrations de $BaTiO_3$ supérieures à 15% d'une part et, d'autre part, la valeur de la permittivité qui va en crescendo lorsque l'oxyde MnO_2 croît, atteignant ainsi une valeur proche de 8 pour le composite de code (25TCM05). En ce qui concerne la permittivité d'un composite quaternaire, sa plus haute valeur est proche de 7 et atteinte pour une composition (RE-$BaTiO_3$-CaO-MnO_2) de concentrations respectives (70-20-5-5).

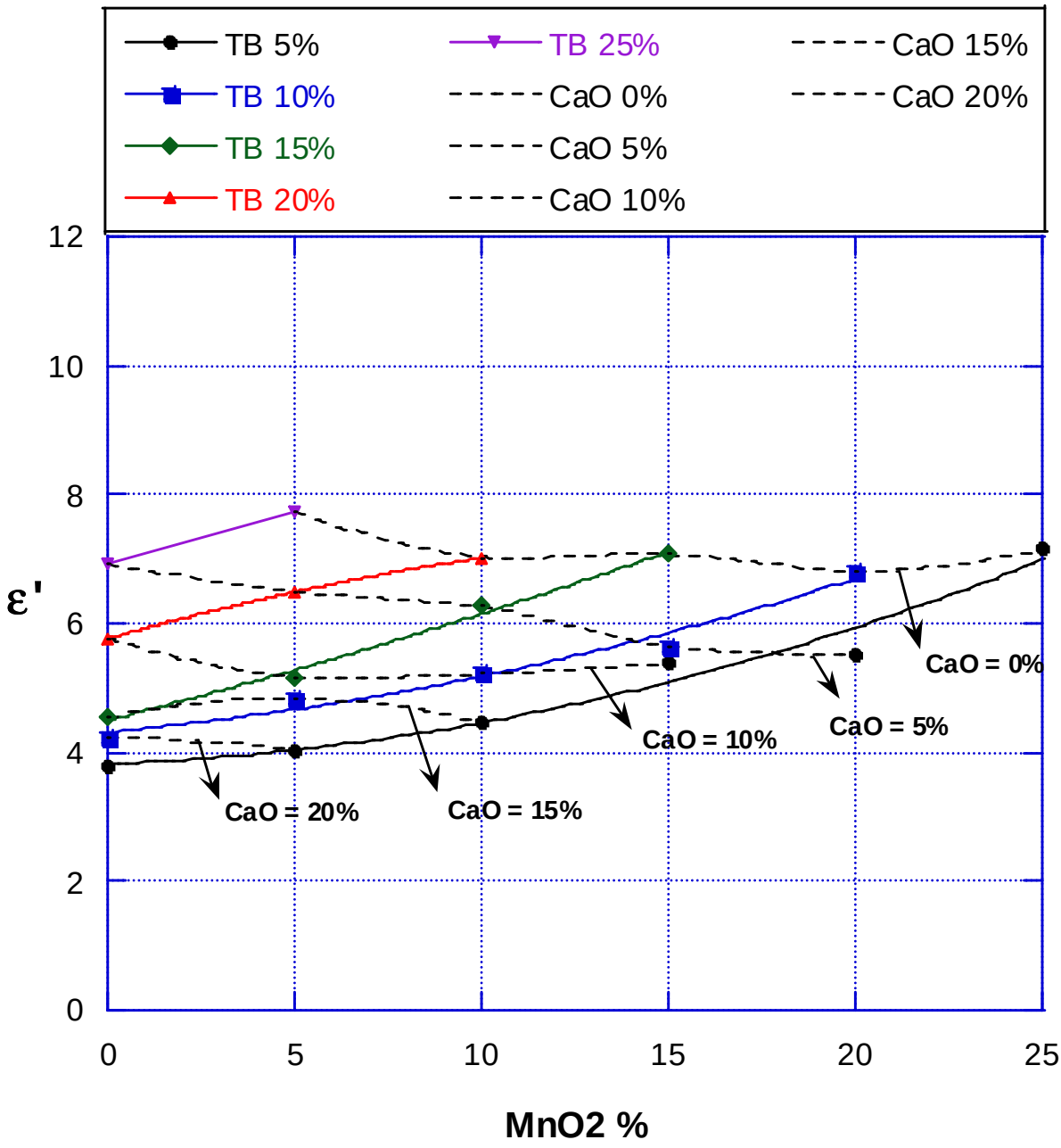


Figure.4.11 Variation de la constante diélectrique statique des différents composites en fonction de la concentration du MnO_2

Le plus significatif de ce résultat s'illustre par le bornage supérieur de ces iso-courbes par la jonction de deux courbes dont l'une est à concentration fixe de 25% $BaTiO_3$ (en trait plein) et l'autre est de 0% de CaO (en pointillé) correspondant aux composites ternaires.

Sous un autre angle d'analyse, la Figure.4.12 présente l'évolution de la constante diélectrique des différents composites en fonction de la proportion de CaO. Il est clair que les fluctuations de la constante diélectrique des différents composites sont peu importantes lorsque la proportion de CaO est fixée à 0% et à 5% et deviennent négligeable au fur et à mesure que la concentration de CaO va en augmentant au delà d'un seuil qui dépasse 5%. Le fait saillant de cette évolution réside en la constante diélectrique des composites qui diminue considérablement en fonction de la fraction volumique de CaO et atteint même une valeur plus basse de 4 pour 25% de cet oxyde. Ce constat

confirme également l'effet de ces deux oxydes lors de l'étude des ternaires (RE-$BaTiO_3$-MnO_2) et (RE-TB-CaO) [6].

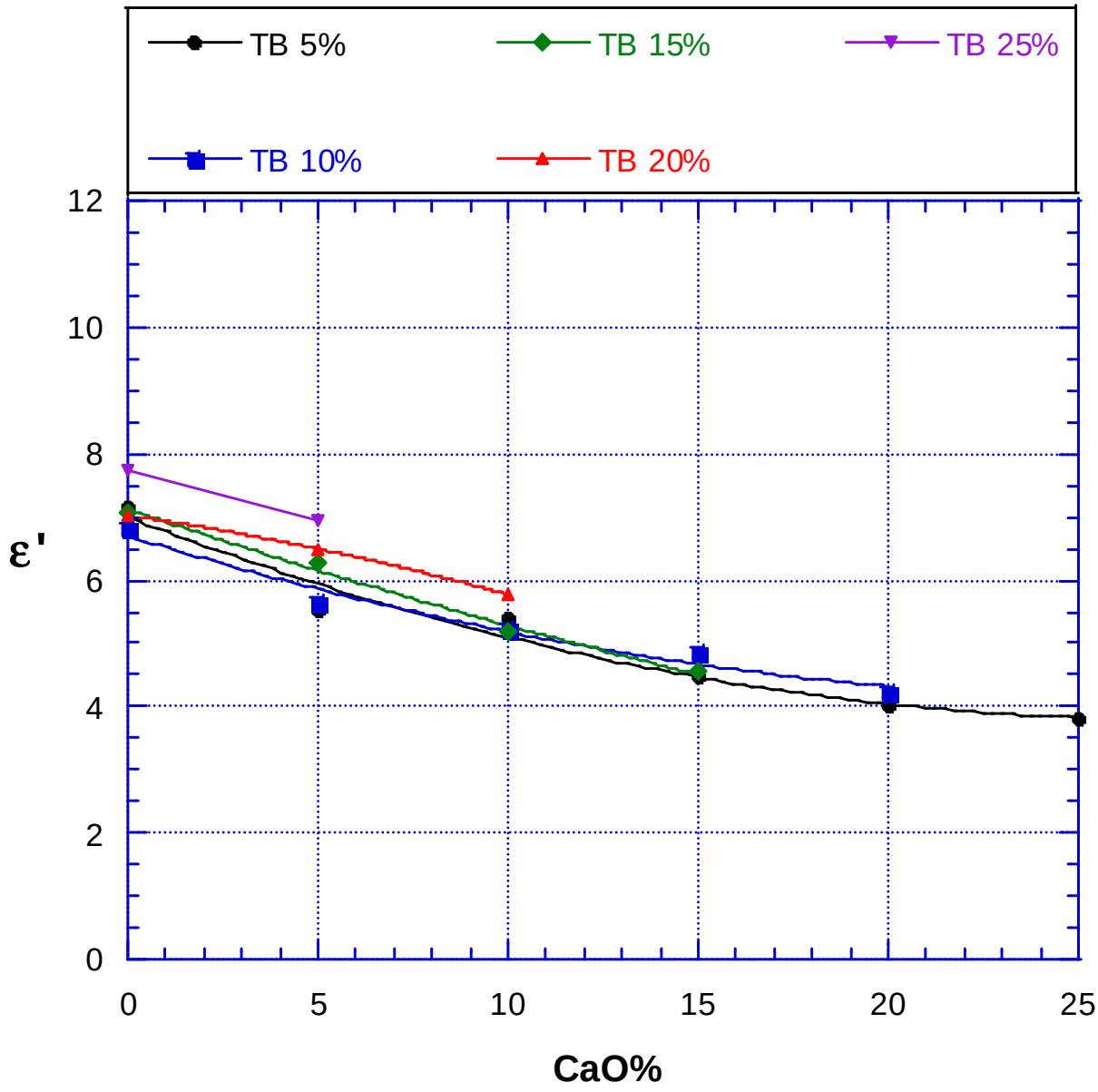


Figure.4.12 Variation de la constante diélectrique statique des différents composites en fonction de la concentration du CaO

La Figure.4.13 nous montre l'évolution de la partie imaginaire de la permittivité ε" des différents composites en fonction de la proportion de MnO_2. Des courbes de tendance linéaire de cette composante diélectrique imaginaire apparaissent pour des fractions volumiques fixes de $BaTiO_3$ à 10%, 15%, et à 25%. Tandis que l'allure du reste des courbes tend à être concave et convexe pour des fractions volumiques fixes respectives de $BaTiO_3$ à 5% et 20%.

Il apparait clairement, de cette figure, que cette composante diélectrique de la permittivité complexe des composites à concentration de $BaTiO_3$ supérieure ou égale à 20% croît légèrement pour des proportions du MnO_2 croissantes. Cependant, quant aux charges de $BaTiO_3$ en deçà de 20% de

concentration, les courbes correspondantes montrent une évolution plus ou moins accentuée de la permittivité imaginaire.

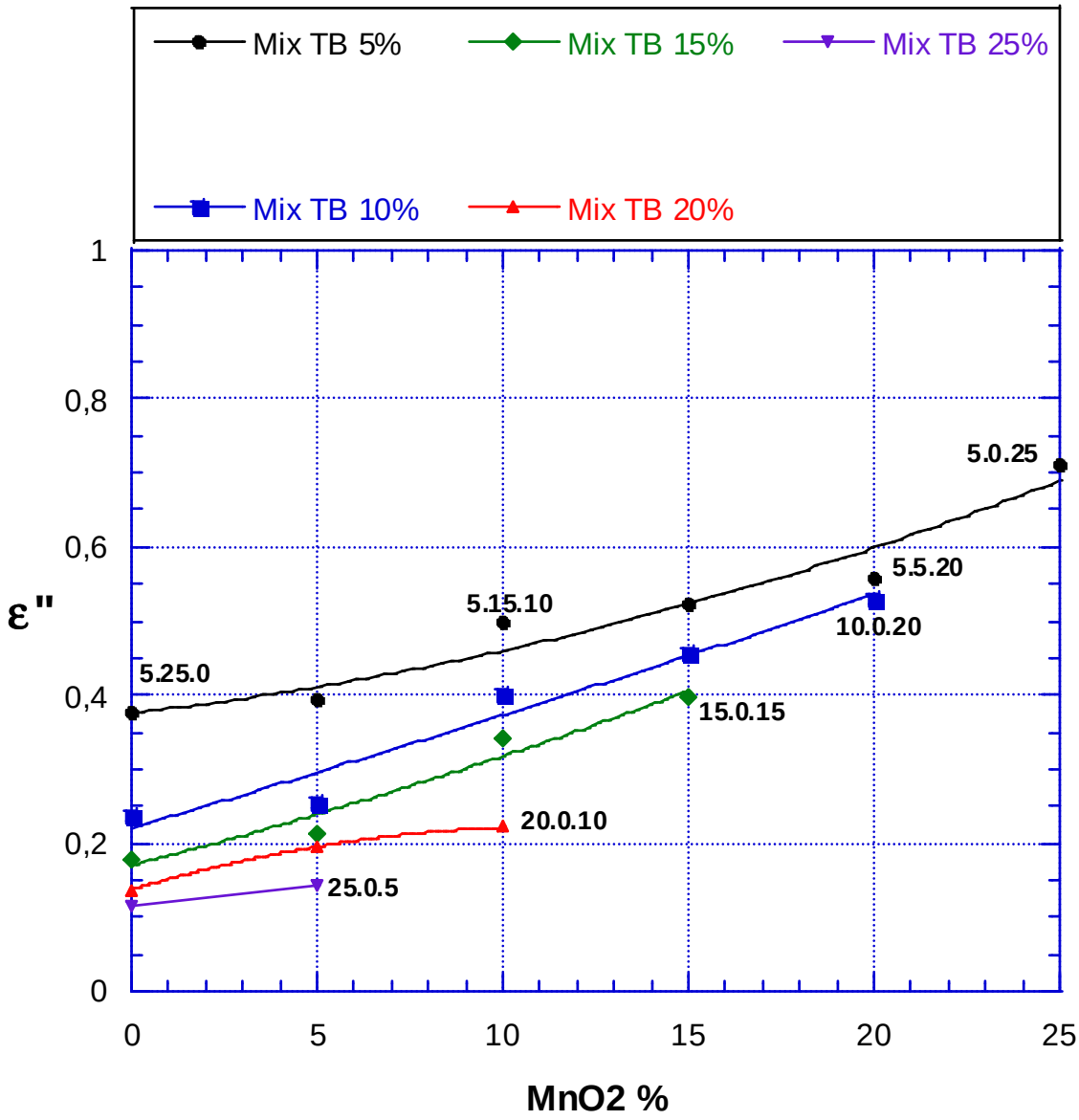


Figure.4.13 Variation de la partie imaginaire de la permittivité des différents composites en fonction de la concentration de MnO_2

Figure 4.14 représente l'évolution de la partie imaginaire statique des différents composites en fonction de la concentration volumique de CaO. Deux familles d'iso-courbes ont été représentées en vue de connaitre l'effet des trois constituants. La première famille de ces courbes est calculée à concentration fixe de $BaTiO_3$ et la deuxième est obtenue pour des proportions constantes de MnO_2.Nous remarquons que ces iso-courbes sont bornées par deux courbes limites inférieure et supérieure dont la première est celle d'un composite ternaire (0% de MnO_2) et la seconde correspond à celle d'un quaternaire à 5% de $BaTiO_3$. Parmi les points importants qu'on tire de ces caractéristiques, on cite les plus significatifs.

Comme premier point, on note que les courbes à concentrations fixes de MnO_2 exhibent des valeurs de ε" croissantes pour des fractions volumiques de CaO allant en crescendo.

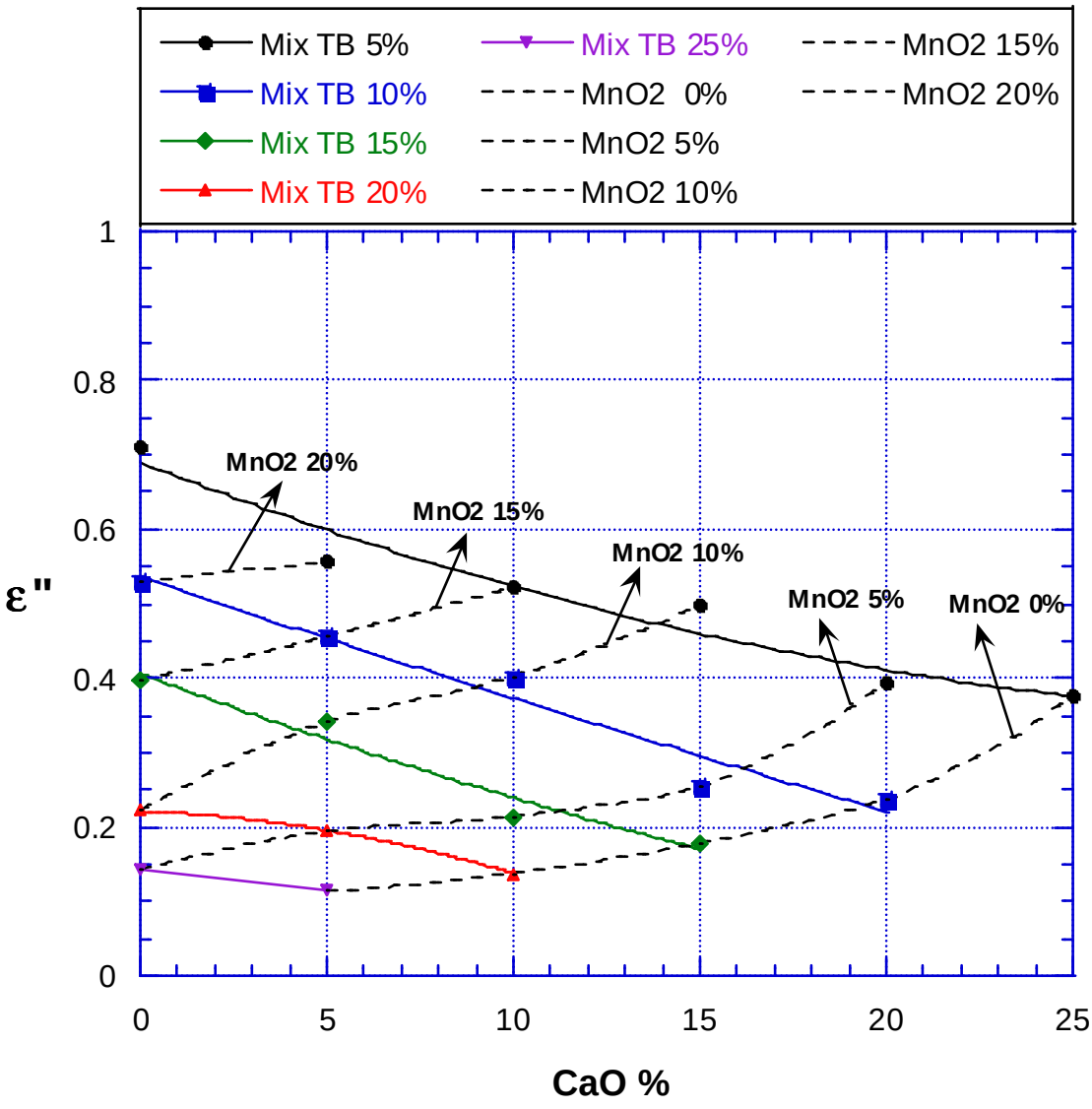


Figure.4.14 Variation de la partie imaginaire des différents composites en fonction de la concentration de CaO (MnO_2 = const, et $BaTiO_3$ = const)

Seules les valeurs les plus élevées proviennent des courbes à concentrations de MnO_2 les plus élevées. Par contre, le deuxième point concerne l'autre famille de courbes (à % fixe de $BaTiO_3$) qui présentent toutes une tendance décroissante de la permittivité imaginaire quand la concentration de l'oxyde de calcium va en montée. Il en découle aussi que les valeurs de ε" les plus basses sont celles fournies par les courbes à concentration de $BaTiO_3$ les plus élevées.

4.3.2.2 Comportement de la conductivité du composite sous l'effet des oxydes

La Figure 4.15 montre l'évolution de la conductivité statique déduite à partir de l'équation (1) à la fréquence de 500MHz en fonction de la fraction volumique de MnO_2. A partir des courbes des différents composites, où chacune est à concentration fixe de TBa, nous observons que cette conductivité est comprise entre $3.1574x10^{-3}$ $(\Omega cm)^{-1}$ et $19.737x10^{-3}(\Omega cm)^{-1}$ appartenant respectivement aux composites ternaires 25TCM00 et 5TCM25. Par ailleurs, la conductivité des composites réalisés augmente en fonction de la concentration de MnO_2 et elle diminue en fonction de celle de $BaTiO_3$.

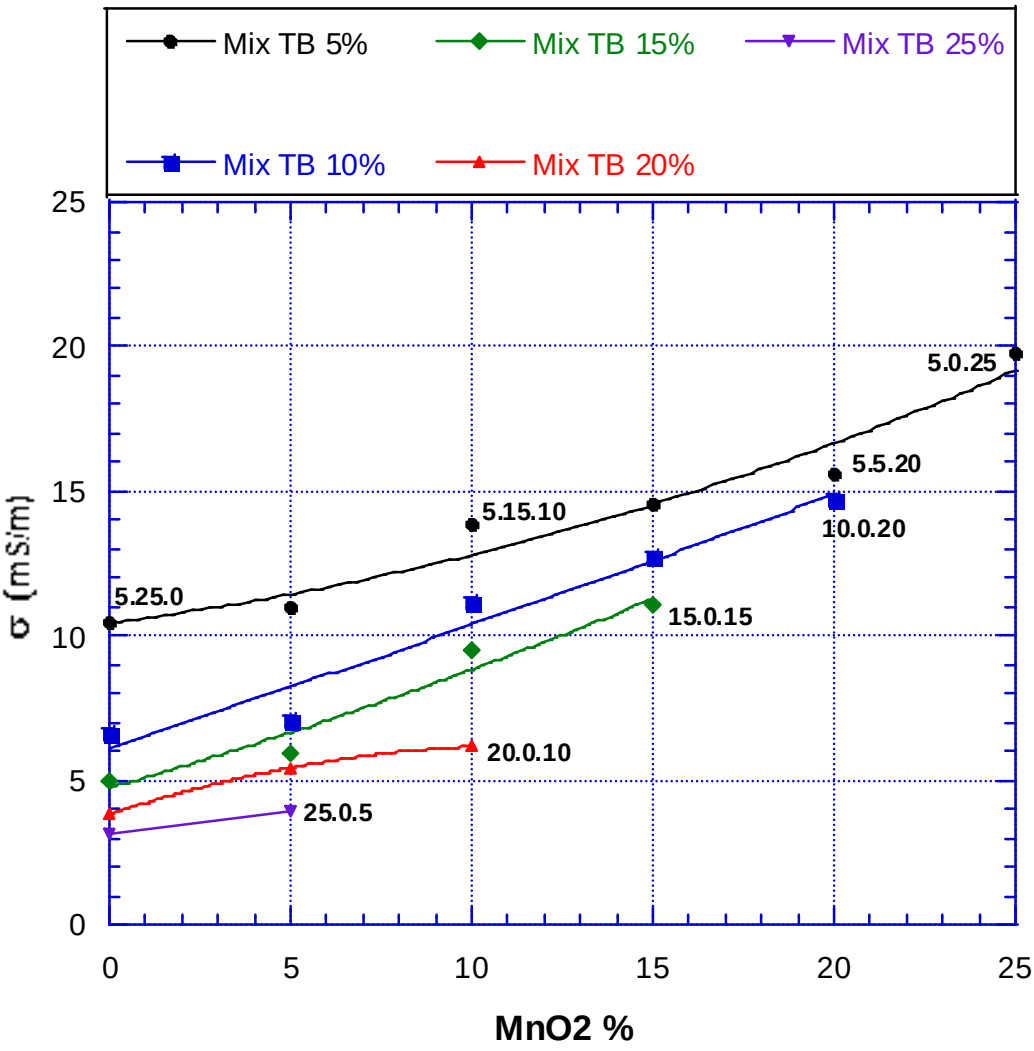


Figure.4.15 Variation de la conductivité statique des différents mélanges en fonction de la concentration de MnO_2

La Figure.4.16 montre l'évolution de la conductivité des différents composites en fonction de la concentration de CaO. Il en résulte une nappe de deux familles d'iso-courbe dont la première est celle à fractions volumiques constantes de TB et la deuxième correspond aux courbes à proportions constantes de MnO_2. Cette nappe de courbes se trouve située entre une courbe limite inférieure d'un composite ternaire (à 0%de MnO_2) d'une part et une courbe supérieure du composite quaternaire renfermant 5% de TB d'autre part. En plus de cette description, nous dévoilons une autre similitude entre la Figure 4.14 et la Figure 4.16, caractérisée par la tendance décroissante des courbes à concentration fixe de TB. Toutes ces courbes présentent des minimums de conductivité dont le plus petit est estimé à 3.2 $10^{-3}(\Omega cm)^{-1}$ et qu'est fourni au point d'intersection de deux courbes de composites ternaires correspondant à 5% de CaO.

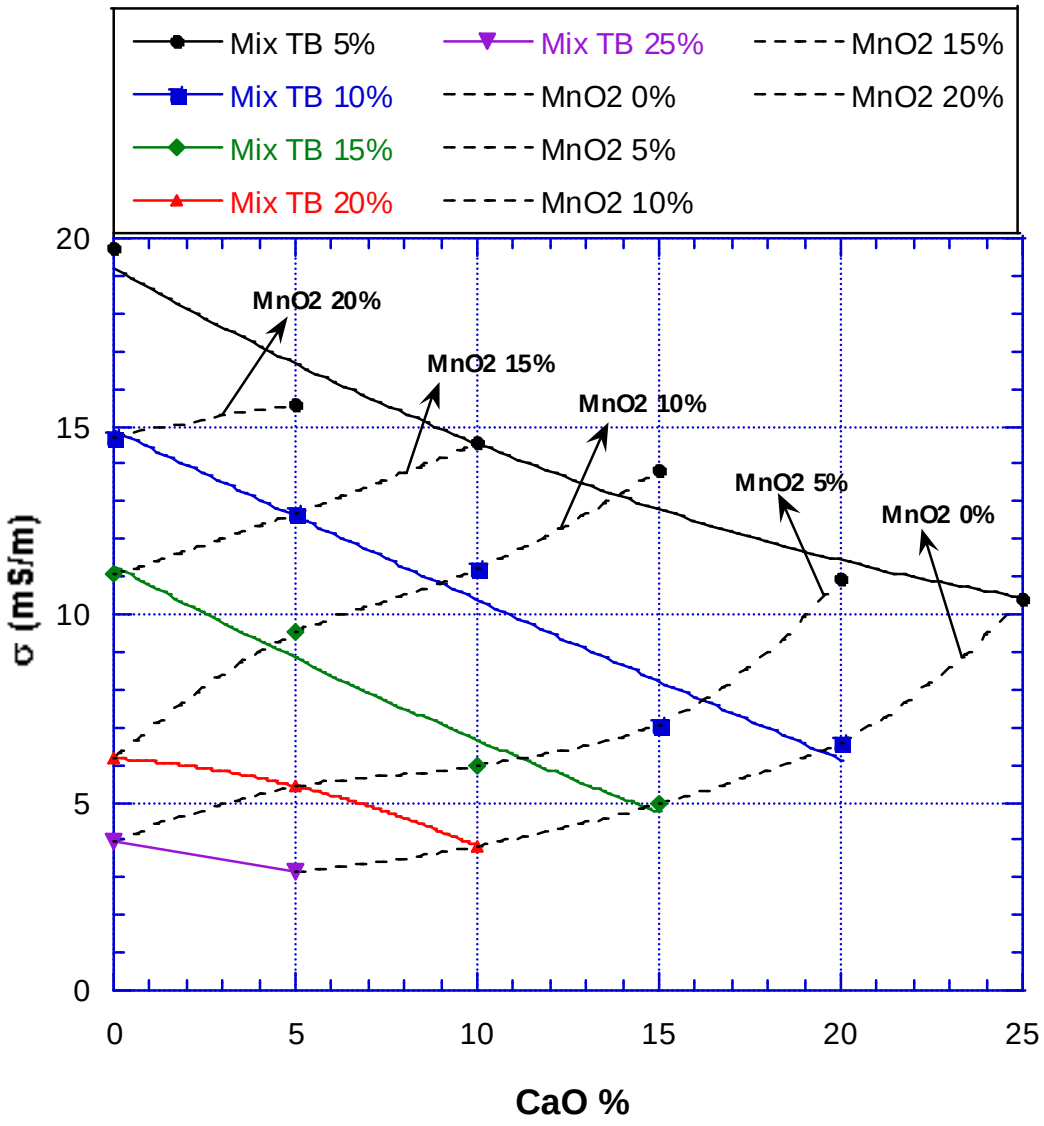


Fig.4.16 Variation de la conductivité statique des différents composites en fonction de la concentration de CaO (TB = const. MnO_2 = const.)

Par contre, si on fixe la concentration de MnO_2, la tendance des courbes devient croissante, donc la conductivité augmente en fonction de la fraction de CaO. On peut en conclure que l'oxyde de calcium CaO est toujours dominé par le constituant avec lequel il complète la fraction restante.

4.3.2.3 Processus de modélisation

Le processus de modélisation consiste à identifier les paramètres d'une loi qui décrit un ensemble de données expérimentales, dans notre cas, la loi sélectionnée est celle de Lichtenecker modifiée LLM. Cette loi est reconduite ici suite aux résultats obtenus dans des travaux de recherche antérieures montrant sa capacité de reproduire approximativement le phénomène diélectrique rencontré pratiquement dans le cas des mélanges hétérogènes et aléatoires [6-8].Elle se distingue de celle de Lichtenecker usuelle par l'insertion du facteur de forme qui sert à fournir la solution optimale aux paramètres diélectriques inconnus pour ce type de mélange hétérogène en l'occurrence notre composite quaternaire RETBCM. La construction de ce modèle requiert la détermination des facteurs de forme associés à chaque composition de ce mélange tout en respectant les limites

inférieure et supérieure de Wiener qui représentent les cas limites d'arrangements en parallèles et en série [9, 10] et qui sont donnés par :

$$(\varepsilon_{ef})_{WL} = \frac{1}{\sum_{i=1}^{N} \frac{\alpha_i}{\varepsilon_i}} \quad (2)$$

$$(\varepsilon_{ef})_{WU} = \sum_{i=1}^{N} \alpha_i \times \varepsilon_i \quad (3)$$

Où ε_i, α_i représentent respectivement la constante diélectrique des ième constituants et leurs fractions volumiques.

La Figure 4.17 qui représente l'évolution de la permittivité réelle expérimentale $(\varepsilon_{eff})_{exp}$ des divers échantillons du composite (RE.$BaTiO_3$.CaO. MnO_2) ainsi que leurs limites de Wiener en fonction de la fraction volumique de MnO_2. Il en découle clairement que tous les résultats obtenus dans cette étude respectent les limites supérieures et inférieures de Wiener en conformité avec l'inéquation suivante:

$$(\varepsilon_{ef})_{WL} < (\varepsilon_{ef})_{exp} < (\varepsilon_{ef})_{WU} \quad (4)$$

La constante diélectrique $(\varepsilon_{eff})_L$ calculée selon le LLM est donnée par l'expression suivante:

$$(\varepsilon_{eff})_{L\,(RE.BT.CaO,\,MnO_2)} = A_{\%\,TB} \times \varepsilon_{RE}^{\alpha_1} \times \varepsilon_{BT}^{\alpha_2} \times \varepsilon_{CaO}^{\alpha_3} \times \varepsilon_{MnO_2}^{\alpha_4} \quad (5)$$

avec

$$\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 + \alpha_4 = 1$$

Où $A_{\%TB}$ est le facteur de forme du mélange pour chaque fraction volumique de TB .

Puisque l'équation LLM conduit à un problème non linéaire, il est intéressant d'introduire une approche algorithmique (méthode numérique) pour identifier les paramètres inconnus, à savoir les permittivités des différents constituants, le facteur de forme $A_{TBa\%}$.

Pour aboutir à la solution optimale pour ce paramètre ci, nous avons opté donc pour la méthode de la régression non linéaire RNL [11-13]. Les facteurs de forme, appropriés chacun à une composition spécifique du mélange et obtenus par la méthode dite RNL, sont résumés dans le tableau 4.1.

Tableau. N 4.1: estimation du facteur de forme $A_{\%TB}$ selon différents % de $BaTiO_3$

$\%ox$	**5**	**10**	**15**	**20**	**25**
$A_{\%TBa}$	**0,67528**	**0,70262**	**0,73925**	**0,80940**	**0,90255**

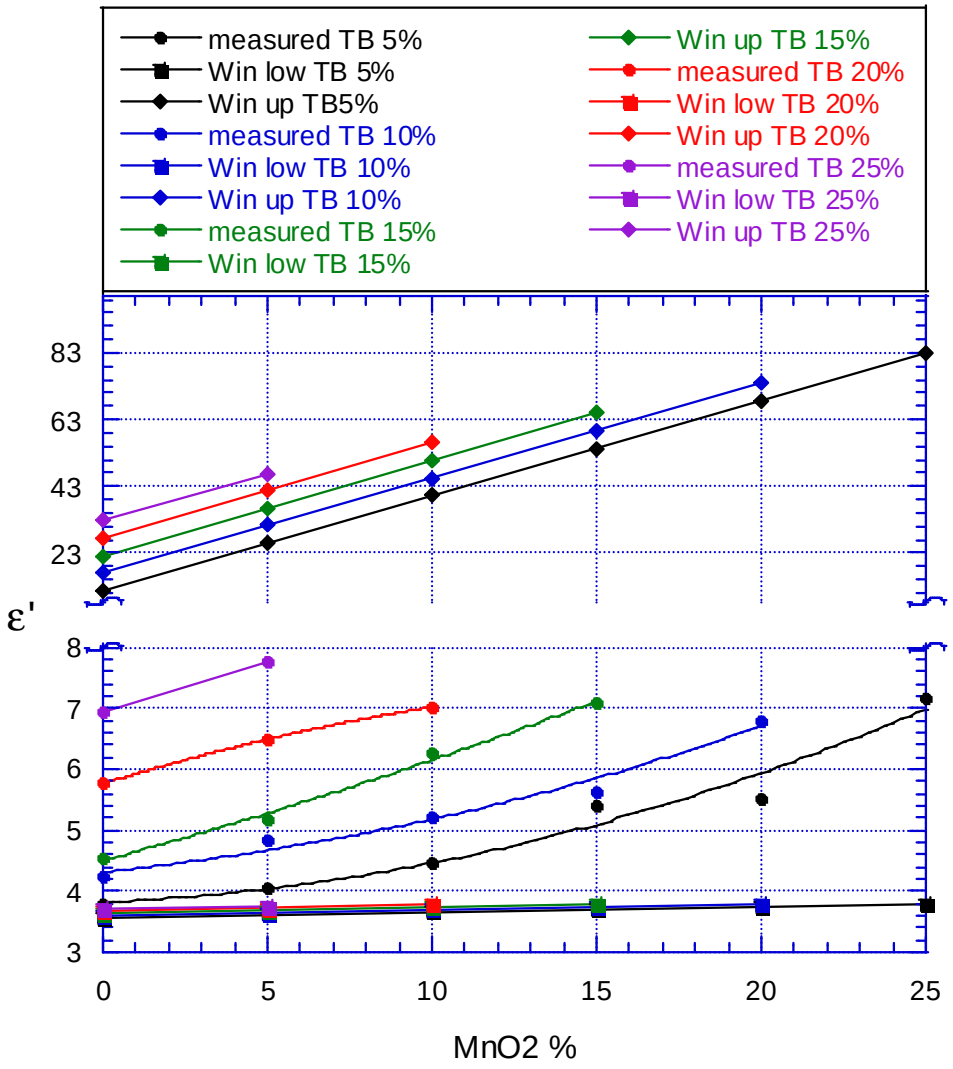


Figure.4.17 Comparaison entre les résultats expérimentaux et les limites de Wiener en fonction de MnO_2

La Figure 4.18 présente une comparaison entre l'évolution des facteurs de forme obtenus dans le présent travail (composites quaternaires) et celui fait des travaux antérieurs (composites ternaires), [6] en terme de la fraction volumique de TB. Nous remarquons que, selon l'allure des courbes, le facteur de forme n'est pas constant et est loin d'être égal à l'unité comme le stipule le modèle de Lichtenecker non modifié.

Selon la représentation graphique donnée de cette figure, ce facteur $A_{\%TB}$ varie non linéairement en fonction du % de $BaTiO_3$. Cette évolution est nettement remarquée par une courbure non aplatie pour le composite quaternaire et qui pour des raisons de précision pourra être approchée sous forme d'un polynôme d'ordre n comme l'indique la relation 6.

En vue d'identifier les coefficients B_n de ce polynôme procurant un meilleur lissage aux valeurs du facteur de forme, nous avons utilisé la méthode des moindres carrés amorties (DLSM), connue sous le nom d'algorithme de Levenberg-Marquardt, qui peut être assimilé à celui de Gauss-Newton basé sur une approche de région de confiance [14, 15]. Les coefficients de l'équation (6) sont résumés au tableau 2.

$$F(x) = \sum_{0}^{N} B_n x^n \qquad (6)$$

Où x, F, représentent respectivement le pourcentage du TB injecté dans le mélange diélectrique à étudier**.**

Le nombre de coefficients *Bn* et leurs valeurs sont arrêtés suivant leur aptitude à permettre un meilleur lisage du modèle de Lichtenecker modifié avec les résultats expérimentaux. Cette approche de calcul a été projetée pour le cas de composites ternaires relatifs aux travaux antérieurs [6]. Ces coefficients du polynôme sont utiles non seulement comme indicateur de degré de dépendance du facteur de forme vis-à-vis du % de TB mais aussi comme moyen de son ajustement pour un meilleur lissage de courbe.

Tableau N.2:valeurs de coefficients du polynôme des facteurs de forme pour composites ternaires et quaternaires.

Facteur de forme Fs	B_0	B_1	B_2
Fs Re-TB-CaO-MnO_2	0,68	-0,0029276	0,0004718
Fs Re-TB-CaO [6]	0,75394	0,0073219	-0,00023873
Fs Re-TB-MnO_2 [6]	0,74658	0,0059779	-0,00018184

La permittivité réelle du mélange hétérogène pourra être décrite par l'équation (6) sous sa nouvelle forme:

$$(\varepsilon_{eff})_{L\,(RE\,.BT\,.CaO,\,MnO_2)} = \mathbf{F(x)} \times \varepsilon_{RE}^{\alpha_1} \times \varepsilon_{BT}^{\alpha_2} \times \varepsilon_{CaO}^{\alpha_3} \times \varepsilon_{MnO_2}^{\alpha_4} \qquad (7)$$

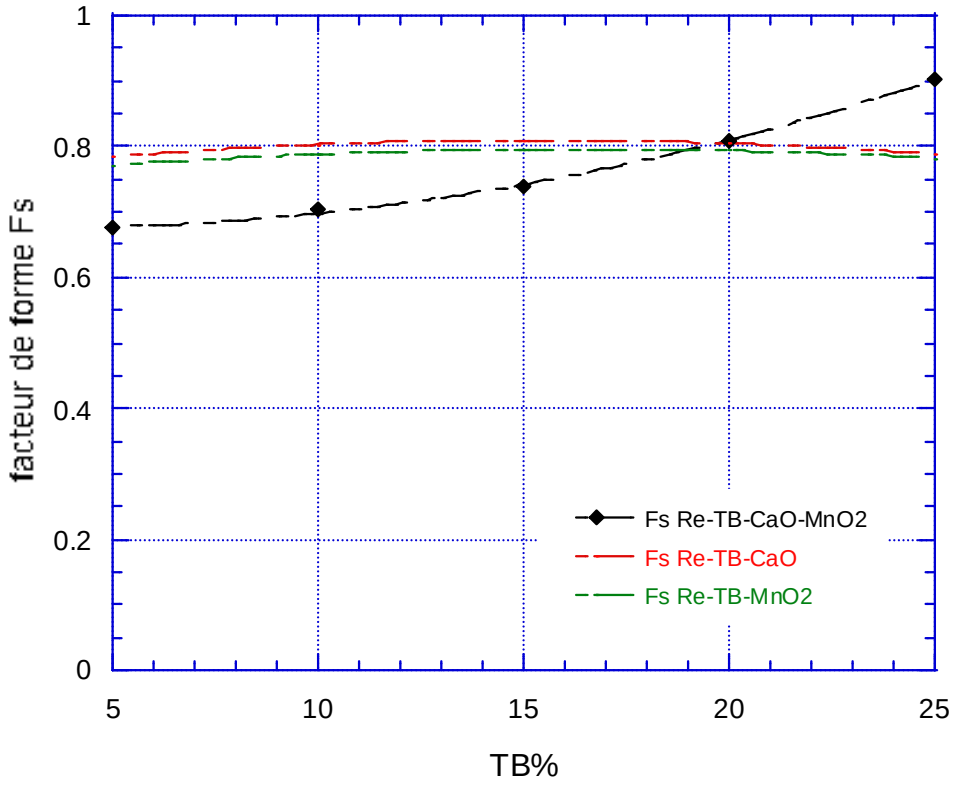


Figure.4.18 Comparaison entre les facteurs de forme obtenus lors de ce travail et ceux de Bourouba et al [6].

4.4 Etude comparative entre les valeurs expérimentales et celle de Lichtenecker modifié

En Figure.4.19**,** nous avons reporté les résultats expérimentaux et ceux du modèle théorique LLM côte à côte afin de les comparer et d'en déduire les différences entre les permittivités effectives expérimentale et théorique (ε'_{exp} , ε'_{L}). Ceci peut être pris comme une bonne hypothèse pour justifier la validation du Modèle de Lichtenecker modifié appliqué à un composite quaternaire.

Pour une meilleure crédibilité de cette étude comparative, il est nécessaire de quantifier leur divergence et d'en déduire la qualité de ce modèle .A cet effet, un des moyens de quantification auquel on a eu recours est l'estimation de la valeur de l'excès de la constante diélectrique et qui est donnée comme suit [10]:

$$(\Delta\varepsilon_s^E)_L = (\varepsilon_s)_{exp} - (\varepsilon_s)_{ML} \qquad (8)$$

Où $(\varepsilon_s)_{exp}, (\varepsilon_s)_{ML}$ représentent respectivement la constante diélectrique expérimentale et celle de Lichtenecker modifié

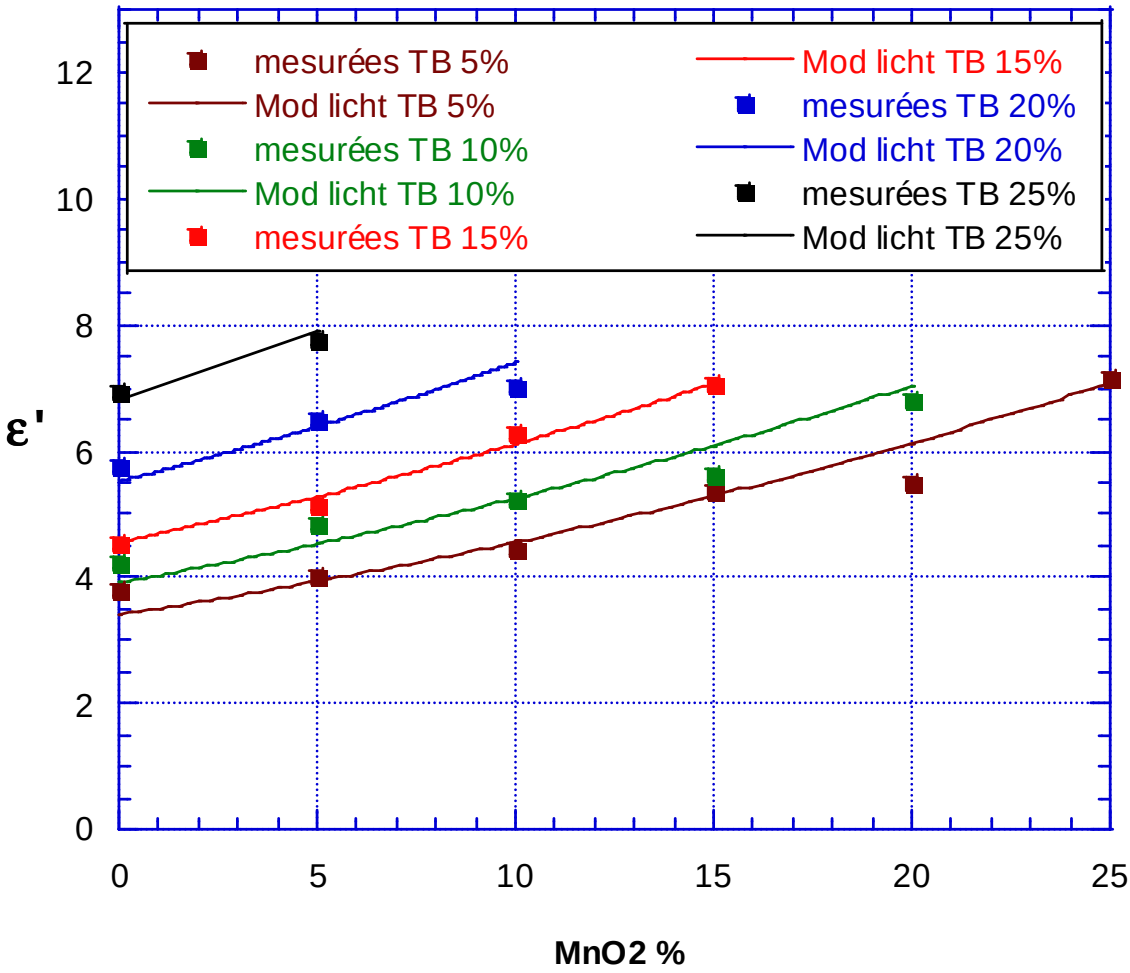


Figure.4.19 Comparaison entre le modèle de Lichtenecker modifié et les résultats expérimentaux de composites quaternaires

Tous les résultats obtenus de ce calcul de quantification de Δε', en fonction de la fraction volumique de dioxyde de manganèse MnO_2, sont reportés en Figure.4.20. Il apparait que l'évolution de l'excès

de la constante diélectrique du modèle de Lichtenecker modifié des composites quaternaires, est localisée entre -0.6 et 0.5. L'excès le plus important revient au composite (RE. $BaTiO_3$. CaO. MnO_2) de concentrations respectives (70- 5 - 20- 5) ayant une valeur de -0.64, tandis que le moins important est celui dont les concentrations sont respectivement (70 -15- 15 - 0). En général, ces excès ne sont pas vraiment des valeurs importantes et sont dus à des imperfections dont l'origine peut être probablement un défaut d'usinage des échantillons ou une présence des bulles d'air dans ces derniers ou encore du bruit dans la mesure.

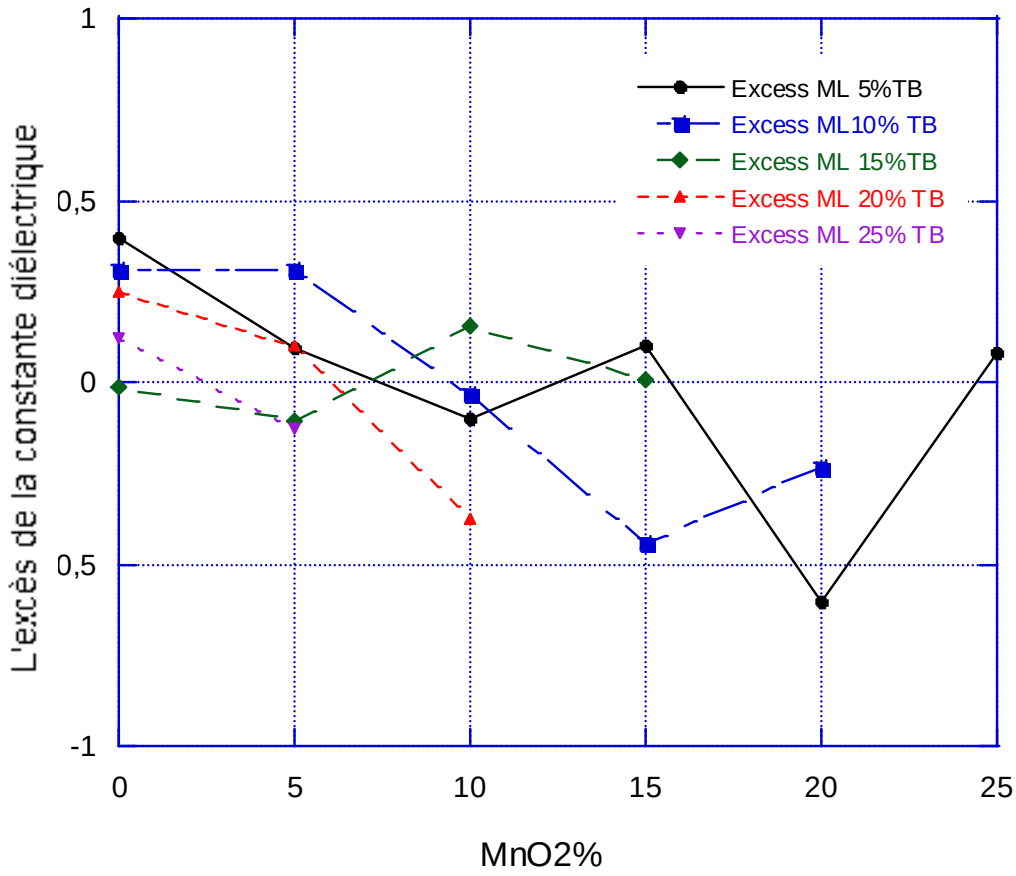


Figure.4.20 variation de l'excès de la constante diélectrique en fonction de la concentration du MnO_2

Ceci nous permet de dire que les résultats sont en bonne concordance et que le modèle de Lichtenecker modifié reste applicable à un certain degré de certitude pour les composites quaternaires préparés lors de ce travail.

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude portant sur la caractérisation électromagnétique des composites quaternaires (RE-$BaTiO_3$-CaO-MnO_2) par spectroscopie en domaine temporel SDT dans une gamme de fréquence DC-2GHz. Les résultats de cette étude nous ont permis de déterminer l'effet des deux oxydes, le CaO et le MnO_2 en présence de $BaTiO_3$ (TB) dans cette gamme. En ce qui concerne l'oxyde de calcium, la partie réelle ε' de la permittivité complexe des composites n'a pas vraiment connu une évolution importante dans le cas où la concentration de CaO est fixée à une fraction donnée. Par contre, le CaO n'influe pas sur la partie imaginaire ε'', qui est beaucoup plus liée aux concentrations des autres constituants en l'occurrence le MnO_2 et $BaTiO_3$, où la partie

imaginaire ε''est proportionnelle à la concentration de MnO_2, et inversement proportionnelle à celle de $BaTiO_3$. Ce composant à 25% de concentration dans un mélange ternaire a fait chuter la conductivité à sa plus basse valeur de $3.145x10^{-3}(\Omega.cm)^{-1}$ qui, déterminée à une basse fréquence, pourra être associée à une existence d'états de percolation. En revanche, la partie réelle ε' de la permittivité des composites quaternaires, dont la plus élevée est fournie par la composition (20TBCM5), reste tout de même surplombée par celle d'un ternaire. La modélisation de ce paramètre selon la loi de Lichtnecker modifiée a livré une meilleure concordance entre la théorie et la pratique, ceci est justifié d'une part par le faible excès existant entre ces résultats, qui est compris entre -0.6 et 0.4. Ceci renforce d'avantage la validation du modèle pour une prédiction jugée acceptable du comportement diélectrique d'un matériau à choisir pour une application ciblée dans l'industrie des composants électroniques. D'autre part, l'interprétation de l'évolution du facteur de forme du modèle selon un polynôme d'ordre deux a contribué à un meilleur lissage des résultats théoriques.

Références

1 *Mounir Bouchaour, Juan Pablo Martínez Jiménez, Nacerdine Bouzit, and Nacerdine Bourouba Eur. Phys. J. Appl. Phys.84, 10201 (2018)*

2 *A. Benhamouda. " Caractérisation électromagnétique de polymère chargé par des mélanges de titanates et d'oxyde en utilisant la spectroscopie en domaine temporel". Thèse de doctorat UFAS. 2010.*

3 *Carolina Gabaldón Ruiz « caracterización dieléctrica por T D R de una mezcla resina epoxy – titanato de calico » trabajo académicamente dirigido curso 2004 – 2005.*

4 *Daniel Digón Rodríguez « estudio de la relajación dieléctrica en mezclas polar-no polar por reflectometría en dominio del tiempo (t.d.r.) » trabajo académicamente dirigido curso 2005-06.*

5 *A. Shayesteh Zeraati, M. Arjmand, U. Sundararaj, ACS 621 Appl. Mater. Interfaces 9, 14328 (2017)*

6 *N. Bourouba, K. Lalla, J.P. Martínez Jiménez, N. Bouzit, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 65, 10202 (2014)*

7 *N. Bouzit, J.M. Fornies-Marquina, A. Benhamouda, and N. Bourouba, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 38, 147–152 (2007)*

8 *A. Benhamouda, J.M. Fornies-Marquina, N. Bouzit, and N. Bourouba, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 46, 20404 (2009).*

9 *P. S. Neelakanta, Handbook of Electromagnetic Materials (CRC Press, Boca Raton, FL, 1995).*

10 *J.P. Martínez Jiménez, J.M. Forniés-Marquina, D. Digón Rodríguez, S. OtínLacarra, J. Mol. Liq. 139, 48 (2008).*

11 *H. Bakhti, N. Bouzit, N. Bourouba, J.P. Martínez Jiménez, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 80, 20202 (2017)*

12 *A.M. Brown, Comput. Methods Programs Biomed. 65, 191 (2001)*

13 *M Zakwan, M. Muzzammil, J. Alam, Perspect. Sci. 8, 702 (2016)*

14 *J. Nocedal, S. Wright, Numerical Optimization (Springer, Berlin, 2006)*

15 *D. Bates, D. Watts, Nonlinear Regression Analysis and Its Applications (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1988)*

Conclusion générale

L'objectif principal de cette thèse était l'étude du comportement diélectrique des matériaux composites quaternaires. Ces derniers sont composés d'une matrice hôte à savoir la résine époxyde et des inclusions, sous forme de poudre, qui se présentent en trois éléments: un matériau ferroélectrique $BaTiO_3$ et deux oxydes CaO, et MnO_2. La méthode utilisée, pour parvenir à l'objectif précité, est celle de la spectroscopie en domaine temporel (STD) reposant sur le traitement de signal des données acquises à partir d'un banc de mesure basé sur la réflectométrie temporelle (RDT). Cette étude est, en effet, subdivisée en deux volets distincts, le premier concerne uniquement la gamme des basses fréquences, tandis que le deuxième couvre une gamme allant jusqu' à 2 GHz (hyperfréquences).

La technique d'élaboration des échantillons est celle des mélanges aléatoires. Ainsi, il est nécessaire de faire, au préalable, des calculs de pesage pour bien respecter les fractions volumiques existant entre les différentes inclusions et la matrice hôte. Pour faciliter la tâche de caractérisation, une codification des échantillons, de type alphanumérique, est introduite. En outre, tous les échantillons ont fait l'objet d'un usinage précis de façon à convenir aux dimensions géométriques de la cellule de mesure.

Compte tenu du nombre important des résultats sur la permittivité diélectrique obtenus que ce soit à l'état brut ou traités en domaine fréquentiel , il s'est avéré plus que nécessaire de recourir à un modèle effectif se basant sur une loi de mélange. Dans notre cas, nous avons opté pour la loi de Lichtenecker modifiée, et ce, pour valider les résultats expérimentaux relatifs aux composites quaternaires. Dans ce contexte, notre contribution réside dans le fait que le facteur de forme, relatif à cette loi, est exprimé en fonction d'un polynôme de deuxième degré. Ce polynôme est obtenu grâce à la méthode des régressions non linéaires (RNL) en vue de donner un aspect quantitatif à notre étude. Nous avons mené une comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux issus du modèle théorique en introduisant le concept de l'excès diélectrique.

Le recours aux mélanges quaternaires n'a pas vraiment apporté une amélioration en termes de permittivité diélectrique pour ce cas de mélange. Cette étude nous a permis de constater que sa valeur est toujours comprise entre deux valeurs limites supérieure et inférieure produites par des composites ternaires en l'occurrence à base de CaO et MnO_2. Par contre, ce travail a mis en exergue la contribution de chacun de ces oxydes à travers une étude relative à l'influence de chaque oxyde sur les caractéristiques du mélange en présence d'un matériau ferroélectrique à savoir le $BaTiO_3$. En ce qui concerne l'oxyde de calcium CaO, la partie réelle de la permittivité complexe diminue en fonction de l'augmentation de sa fraction volumique. Par contre, cet oxyde n'a pas vraiment un effet palpable sur la partie imaginaire de permittivité complexe des composites quaternaires. Celle-ci est beaucoup plus influencée par les autres constituants à savoir le $BaTiO_3$ et le MnO_2.

Les valeurs prédites, par le biais de la loi de Lichtenecker modifiée, de la partie réelle de la permittivité sont en bonne concordance avec celles issues du travail expérimental. Ceci est appuyé par le faible excès existant entre ces résultats (expérimental vs théorique) dont les valeurs restent comprises entre -0.64 et 0.40. Ce qui nous a conduit à conclure que la loi de mélange de Lichtenecker modifiée est applicable pour ces composites quaternaires qui ont déjà fait l'objet d'une étude ternaire séparément au sein de notre laboratoire par Monsieur BOUROUBA.

Le point marquant de cette étude consiste en l'introduction d'un polynôme de deuxième degré en tant que facteur de forme de la loi de Lichtenecker modifiée. Cette étape a conduit à améliorer la loi en elle-même en termes de prédiction tout en laissant une porte ouverte pour d'autres perspectives telle que l'introduction de l'effet de la chaleur dans le cas où ces échantillons recevront un recuit en amont de la caractérisation.

Les travaux de recherche actuels ouvrent une parenthèse à de futures recherches pour explorer de nombreux autres aspects des composites polymères chargés de particules. Parmi ces derniers, nous pouvons citer les suivants :

- Développement de modèles théoriques pour des particules de charge de formes différentes prenant en compte leurs géométries ainsi que les différentes interactions. Exemple : interface charge-matrice.
- Explorer la possibilité d'utiliser des charges oxydes autres que le dioxyde de manganèse MnO_2 et l'oxyde de calcium CaO, des matériaux ferroélectriques autres que le titanate de baryum $BaTiO_3$ et de résines polymères autres que l'époxyde dans le développement de nouveaux systèmes composites quaternaires voire plus.
- Explorer la possibilité d'utiliser des fibres naturelles avec différentes particules de céramique pour fabriquer de tels composites présentant des propriétés fonctionnelles améliorées.
- Analyser les coûts de ces composites pour évaluer leur viabilité économique dans les applications industrielles.

ملخص

يتناول هذا العمل التوصيف الكهرومغناطيسي للمواد المركبة الرباعية ، بناءً على الراتينج الإيبوكسيدي (المصفوفة المضيفة)، التي تحتوي على المركبات التالية: تيتانات الباريوم $BaTiO_3$ ، وثاني أكسيد المنغنيز MnO_2 وأكسيد الكالسيوم .CaO. تم إجراء هذا التوصيف باستخدام طريقة التحليل الطيفي الزمني TDS على مدى تردد من ثابت حتى 2 جيجا هرتز. من أجل نمذجة هذا السلوك الكهرومغناطيسي ، اخترنا نموذج Lichtenecker المعدل، حيث يتم الحصول على السماحية الفعالة للمادة المركبة كدالة لسماحية مكوناتها بالإضافة إلى النسب الحجمية لكل عنصر. يعتبر عامل الشكل المرتبط بهذا النموذج متعدد الحدود مع تقريب شبه ثابت. سمحت لنا النتائج التي تم الحصول عليها ليس فقط بالتحقق من صحة قانون Lichtenecker ، المعدل لحالة الرباعية المذكورة أعلاه ، ولكن أيضًا لتصور تأثير الأكاسدين في وجود مادة .فيرّوكهربائية. يمكن توجيه نتائج هذه الدراسة نحو التطبيقات في الإلكترونيات الدقيقة (تصغير الدوائر المتكاملة) أو في ترددات الميكروويف (الهوائيات ، الرنانات).

الكلمات المفتاحية: التحليل الطيفي للمجال الزمني، المواد المركبة العازلة، السماحية العازلة، قانون Lichtenecker المعدل.

Résumé

Ce travail porte sur la caractérisation électromagnétique des matériaux composites quaternaires, à base de résine époxyde (matrice hôte), contenant les inclusions suivantes: le titanate de baryum $BaTiO_3$, le dioxyde de manganèse MnO_2 et l'oxyde de calcium CaO. Cette caractérisation a été effectué via la méthode de la spectroscopie temporelle TDS sur une gamme de fréquence allant du statique jusqu'à 2 GHz. En vue de modéliser ce comportement électromagnétique, nous avons opté pour le modèle de Lichtenecker modifié, où la permittivité effective du matériau composite est obtenue en fonction de celle de ses constituants ainsi que de leurs fractions volumiques. Le facteur de forme, relatif à ce modèle, est considéré comme étant un polynôme avec une approximation quasi statique. Les résultats obtenus nous ont permis non seulement de vérifier la validité de la loi de Lichtenecker, modifiée pour le cas des quaternaires précités, mais également de visualiser l'effet des deux oxydes en présence d'un matériau ferroélectrique. Les résultats de cette étude pourraient être orientés vers des applications en microélectronique (miniaturisation des circuits intégrés) ou en hyperfréquences (antennes, résonateurs).

Mots clés : spectroscopie temporelle, matériaux composites diélectriques, permittivité diélectrique, la loi de Lichtenecker modifiée.

Abstract

This work focuses on the electromagnetic characterization of quaternary composite materials, based on epoxy resin (host matrix), containing the following inclusions: barium titanate BT, manganese dioxide MnO_2 and calcium oxide CaO. This characterization was carried out using the TDS temporal spectroscopy method over a frequency range from static up to 2 GHz. In order to model this electromagnetic behavior, we opted for the modified Lichtenecker model, where the effective permittivity of the composite material is obtained as a function of that of its constituents as well as of their volume fractions. The form factor, relating to this model, is considered to be a polynomial with a quasi-static approximation. The results obtained allowed us not only to verify the validity of Lichtenecker's law, modified for the case of the aforementioned quaternaries, but also to visualize the effect of the two oxides in the presence of a ferroelectric material. The results of this study could be oriented towards applications in microelectronics (miniaturization of integrated circuits) or in microwave frequencies (antennas, resonators).

Keywords: time domain spectroscopy, dielectric composite materials, dielectric permittivity, modified Lichtenecker's law.