

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE MANTOURI DE CONSTANTINE
FACULTE DES SCIENCES DE L'INGENIEUR
DEPARTEMENT DE GENIE CIVIL

THESE

Présentée en vue de l'obtention du grade de

DOCTEUR D'ETAT EN GENIE CIVIL

Option : Matériaux

Par Ahmed BEROUAL

**CARACTERISATION DES HETEROSTRUCTURES PAR LA
METHODE DES IMPEDANCES ET PAR LA PERMITTIVITE
DIELECTRIQUE EFFECTIVE COMPLEXE**

Soutenu le

2006 devant la commission d'examen :

Président :

Dr : CHABIL Hocine

Professeur Université Mentouri Constantine

Rapporteur :

Dr : HOUARI Hacène

Professeur Université Mentouri Constantine

Examineurs :

Dr : HABITA Med Faouzi

Professeur Université de Annaba

Dr : BELACHIA Mouloud

Professeur Université de Skikda

Dr : BELLEL Azzedine

M.C Université Mentouri Constantine

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein du laboratoire Matériaux et Durabilité des Constructions de l'Université Mentouri de Constantine en collaboration avec le centre de génie électrique (CEGELY) – Ecole centrale de Lyon.

Je remercie Monsieur le Professeur L.Nicolas Directeur du CEGELY qui m'a accueilli dans son laboratoire.

Je remercie Monsieur le Président et Messieurs les membres du jury pour l'honneur qu'il me font en acceptant de juger ce travail.

J'exprime ma profonde gratitude et ma reconnaissance envers Monsieur le Professeur Hacène Houari pour l'aide qu'il m'a apportée tout au long de ce travail.

Je remercie également toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

A la Mémoire de mes parents.

A tous les Miens.

Tables des matières

| | |
|--|----|
| INTRODUCTION GENERALE | 1 |
| Bibliographie | 6 |
| | |
| CHAPITRE I : PERMITTIVITE DIELECTRIQUE COMPLEXE ET LOIS DE MELANGES | |
| | |
| I.1 Introduction | 8 |
| I.2 Phénomènes de polarisation | 9 |
| I.2.1 Polarisation électronique | 10 |
| I.2.2 Polarisation ionique | 10 |
| I.2.3 Polarisation dipolaire | 11 |
| I.2.4 Polarisation macroscopique | 12 |
| I.2.5 Polarisation interfaciale | 12 |
| I.3 Permittivité complexe et pertes diélectriques | 13 |
| I.3.1 Définitions | 13 |
| I.3.2 Influence de la fréquence | 15 |
| I.4 Lois de mélanges | 17 |
| I.4.1 Théories du champ électrique local | 17 |
| I.4.2 Permittivité effective et champ d'excitation | 19 |
| I.4.3 Théorie moléculaires des milieux hétérogènes | 21 |
| I.4.4 Théories des milieux effectifs | 23 |
| I.4.5 Attribut stochastique | 26 |
| I.4.6 Influence de la géométrie des inclusions sur la permittivité | 28 |
| I.4.7 Matériaux composites diélectriques avec une phase conductrice discrète | 30 |
| I.5 Conclusion | 31 |
| Bibliographie | 32 |

CHAPITRE II : METHODES DE CARACTERISATION DES HETEROSTRUCTURES

| | |
|--|----|
| II.1 Introduction | 38 |
| II.2 Classification des matériaux | 38 |
| II.2.1 Classification basée sur la conductivité électrique | 38 |
| II.2.2 Classification basée sur les niveaux d'énergie | 38 |
| II.2.3 Classification basée sur la permittivité diélectrique | 39 |
| II.2.4 Classification basée sur la susceptibilité magnétique | 40 |
| II.3 Méthodes de caractérisation | 40 |
| II.3.1 Méthodes nucléaires | 40 |
| II.3.2 Méthode thermique | 41 |
| II.3.3 Méthode électrique – résistivité | 41 |
| II.3.4 Méthodes diélectriques | 41 |
| II.3.4.1 Méthode capacitive | 42 |
| II.3.4.2 Méthode T.D.R. (Time Domain Reflectometry) | 43 |
| II.3.5 Méthode acoustique (ultra sons) | 43 |
| II.3.6 Méthodes magnétiques | 44 |
| II.3.7 Méthodes des rayons X | 44 |
| II.4 Conclusion | 45 |
| Bibliographie | 46 |

CHAPITRE III : MODELISATION DES HETEROSTRUCURES PAR DES CIRCUITS ELECTRIQUES : METHODE DE L'IMPEDANCE ELECTRIQUE EQUIVALENTE

| | |
|---|----|
| III.1 Introduction | 50 |
| III.2 Principe de base de la méthode de l'impédance équivalente | 50 |
| III.3 Lois de mélanges | 52 |
| III.4 Technique de mesure de l'impédance électrique | 57 |
| III.5 Validation expérimentale des lois de mélanges | 58 |
| III.6 Représentation d'une hétérostructure à deux phases | 63 |
| III.7 Procédure de détermination de l'impédance équivalente | 67 |
| III.8 Application : Hétérostructures avec inclusions longues distribuées périodiquement | 70 |

| | |
|---|----|
| III.8.1 Hétérostructures avec trous | 72 |
| III.8.1.1 Matériau hôte diélectrique sans pertes | 72 |
| III.8.1.2 Matériau hôte diélectrique avec pertes | 73 |
| III.8.1.3 matériau hôte conducteur | 77 |
| III.8.1.4 Matériau hôte et inclusions diélectriques avec pertes | 78 |
| III.8.2 Hétérostructures avec des conducteurs comme inclusions | 80 |
| III.8.2.1 Matériau hôte diélectrique sans pertes | 80 |
| III.8.2.2 Matériau hôte diélectrique avec pertes | 81 |
| III.9 Validation expérimentale | 83 |
| III.10 Remarque | 85 |
| III.11 Conclusion | 86 |
| Bibliographie | 87 |

CHAPITRE IV : METHODES NUMERIQUES POUR LA DETERMINATION DE LA PERMITTIVITE DIELECTRIQUE EFFECTIVE COMPLEXE

| | |
|---|-----|
| IV.1 Introduction | 89 |
| IV.2 Méthodes numériques | 90 |
| IV.2.1 Méthode des différences finies | 90 |
| IV.2.2 Méthode des éléments finis | 93 |
| IV.2.3 Méthode des différences finies dans le domaine des temps | 96 |
| IV.2.4 Méthode des équations intégrales de frontière | 97 |
| IV.3 Application aux matériaux composites | 98 |
| IV.4 Description géométrique des matériaux modèles | 102 |
| IV.5 Modélisation de l'hétérostructure | 104 |
| IV.6 Conclusion | 105 |
| Bibliographie | 106 |

CHAPITRE V : APPLICATION DE LA METHODE DES EQUATIONS INTEGRALES DE FRONTIERE POUR LA DETERMINATION DES TENEURS EN EAU ET DE CAVITES DANS DES HETEROSTRUCTURES A TRAVERS LA PERMITTIVITE DIELECTRIQUE COMPLEXE

| | |
|------------------|-----|
| V.1 Introduction | 109 |
|------------------|-----|

| | |
|---|-----|
| V.2 Application de la méthode des équations intégrales de frontière | 109 |
| V.3 Technique expérimentale | 110 |
| V.4 Résultats et discussion | 112 |
| V.5 Conclusion | 118 |
| Bibliographie | 119 |
| | |
| CONCLUSION GENRALE | 120 |
| | |
| ANNEXES | 123 |

INTRODUCTION GENERALE

L'idée d'associer des matériaux de natures différentes pour concevoir de nouveaux matériaux dits composites ou hétérostructures de performances supérieures à celles de ces constituants pris séparément a été introduite il y a plus d'un siècle. Et depuis elle n'a cessé de progresser et d'envahir de nombreuses technologies grâce aux propriétés très intéressantes que présentent ces matériaux : Une légèreté permettant leur intégration dans le domaine de l'aéronautique et l'aérospatial, une rigidité faisant d'eux un matériau champion (roi) dans les applications relevant des domaines des sports et loisirs, une aptitude à la mise en forme les rendant un partenaire important de la construction automobile, une résistance à la corrosion les qualifiant à être un matériau de choix dans l'industrie navale. Dans le domaine du génie civil, les hétérostructures ont pénétré fortement ; les applications courantes concernent le gros œuvre, le second œuvre ainsi que l'assainissement et l'ameublement. ; le béton armé en est un exemple typique.

Le succès des hétérostructures provient de leur aptitude à être conçus « à la carte ». Le concepteur peut en modifier à volonté les comportements en jouant sur la nature des matériaux constituants et leurs propriétés, la géométrie des inclusions (forme et taille), leur concentration et leur disposition dans la matrice. Cependant, des problèmes affectant la performance de ces matériaux peuvent surgir au cours de leur exploitation et de ce fait menacer la sûreté de fonctionnement des structures dont il font partie. Il s'agit en particulier de l'apparition de fissures, de cavités, d'eau dans ces cavités et de détérioration de renforts résultant de différentes contraintes (agression chimique, échauffement, séismes, mauvais dosage, ...). Il est par conséquent important de caractériser ces matériaux lors de leur conception et de suivre l'évolution de leurs propriétés durant leur exploitation.

Diverses méthodes ont été développées pour caractériser les hétérostructures. Parmi les méthodes développées, on peut citer la méthode thermique [1], les méthodes nucléaires [2], la méthode basée sur la mesure de la résistivité appelée « méthode électrique » [3 - 5] et les méthodes basées sur la mesure de la permittivité diélectrique appelée « méthodes diélectriques » [6 - 8]. Ces dernières ont connu un développement remarquable ces dernières années. Ainsi, plusieurs techniques basées sur la détermination de la permittivité diélectrique relative ϵ (ou constante diélectrique) ont vu le jour : la méthode capacitive [1, 6], la méthode de réflectométrie connue sous l'appellation méthode T.D.R. (Time Domain Reflectometry) [7, 8] et les méthodes radars [9, 10].

La permittivité effective des hétérostructures, décrivant les relations entre les propriétés microscopiques et macroscopiques des hétérostructures et leur constituants, a été décrite par de nombreuses formules analytiques et théories, appelées « lois de mélanges ». Les

premières ont été proposées il y déjà plus de 150 ans ; il s'agit des célèbres formules de Clausius Mossotti, de Maxwell-Garnett et de Rayleigh. Cependant, les travaux sur les lois de mélanges se poursuivent encore. La raison de cette évolution est que les lois de mélanges ne peuvent prédire que les propriétés électriques de certaines hétérostructures particulières, et seulement dans certains cas spécifiques. Les problèmes principaux qui se posent encore, concernent les grandes concentrations de la charge dans la matrice, les interactions multipolaires qui ne sont pas prises en considération, les rapports importants des valeurs de permittivités des phases constituantes, la forme des inclusions et la répartition des particules dans la matrice.

Depuis environ trois décennies et grâce aux progrès considérables réalisés dans la modélisation et les calculs électromagnétiques, les efforts et tentatives utilisant les méthodes numériques pour le calcul de la permittivité diélectrique effective des hétérostructures ont permis d'obtenir des valeurs plus proches des valeurs exactes que celles données par les lois de mélanges analytiques. Les méthodes numériques constituent une section des mathématiques appliquées traitant de l'élaboration et de l'étude des méthodes de résolution approximative des problèmes de calculs dans les modèles mathématiques. La recherche de méthodes de résolution approximative des problèmes mathématiques, physiques et autres, possède une longue tradition (C.F. Gauss, I. Newton, J.B.J. Fourier, ...). Cependant, le développement des méthodes numériques modernes n'a commencé que dans les années 50 du XX siècle grâce à l'emploi des ordinateurs et aux développements des possibilités de calculs.

La modélisation des hétérostructures permet leurs analyse d'une manière universelle et une économie de temps et de coût, ce qui est d'une immense importance des points de vue scientifique et industriel. Mais ceci permet avant tout une étude plus complète de leurs propriétés, comme par exemple la prédiction de leur permittivité effective en fonction des paramètres constituant les points faibles des lois de mélanges qui limitent leurs applications. De nombreuses méthodes numériques, rapides et efficaces, ont été élaborées. Les travaux portant sur ces méthodes sont centrés sur la création de nouvelles techniques de calculs et englobent l'analyse des erreurs et du coût de ces méthodes. Il en est de même de la modélisation des structures hétérogènes et des calculs de leurs permittivités effectives.

Ce travail porte sur la caractérisation des hétérostructures modèles par : (1) une nouvelle méthode basée sur la mesure de l'impédance équivalente pour des systèmes à géométrie simple, et (2) une méthode numérique utilisant les équations intégrales de frontière pour des matériaux à géométrie complexe. Il s'agit de prévoir la valeur effective d'une

propriété donnée (permittivité diélectrique et résistivité électrique) caractérisant un mélange (hétérostructure) tout en connaissant les valeurs de chacun des constituants de cette même propriété ainsi que les proportions du mélange.

Les hétérostructures que nous considérons sont constituées principalement de matériaux diélectriques et/ou conducteurs rencontrés dans la construction.

Le premier chapitre est consacré à la définition de la permittivité complexe, grandeur caractéristique des matériaux diélectriques, à la description des phénomènes de polarisation, à la présentation des lois de mélanges et des problèmes fondamentaux rencontrés dans la prédiction de la permittivité effective complexe des hétérostructures.

Dans le deuxième chapitre, nous exposons les différents types de classification des matériaux et décrivons les méthodes actuelles permettant de caractériser les hétérostructures et leurs spécificités.

Le chapitre trois est consacré à la caractérisation des hétérostructures constituées de matrices homogènes à trois dimensions (matrice hôte) et d'inclusions diélectriques ou conductrices en utilisant une nouvelle méthode basée sur la détermination de l'impédance équivalente. Cette méthode permet de rallier deux méthodes : la méthode électrique et la méthode diélectrique. Nous présentons d'abord les principes de base de la méthode des impédances équivalentes que nous appliquons pour déterminer l'impédance équivalente de structures types, à savoir des structures « sandwich » dont les constituants peuvent être des diélectriques, des conducteurs ou les deux à la fois (diélectriques et conducteurs). Les relations ainsi établies seront validées sur plusieurs types de matériaux et utilisées par la suite. Dans une deuxième étape, nous déterminons l'impédance équivalente de deux structures types : matériau creux et un matériau contenant de long conducteurs. Enfin, nous présentons une validation expérimentale de notre méthode en considérant des échantillons contenant des inclusions identiques alignés, en forme de tubes carré, encastrés dans une matrice polymère et qui peuvent être remplis d'air ou d'eau.

Le quatrième chapitre porte sur la description des méthodes numériques pour la détermination de la permittivité effective des hétérostructures. Nous présentons de manière plus détaillée la méthode des équations intégrales de frontière (MEIF) utilisée dans notre travail ainsi que les modèles d'hétérostructures (forme des inclusions) considérés. La modélisation des hétérostructures modèles et les simulations sont effectuées à l'aide du code de calcul Phi3d.

Dans le chapitre cinq, nous appliquons la méthode des équations intégrales de frontière en utilisant le code de calcul PHI3D développé au Centre de Génie Electrique de

Lyon (France) pour évaluer la présence d'inclusions et leur concentrations dans une structure donnée. Cette méthode permet la détermination de la permittivité diélectrique complexe d'une hétérostructure donnée avec des inclusions distribuées périodiquement en partant du premier principe de l'électrostatique, c'est à dire l'équation de Laplace. Des validations expérimentales ont été menées sur des hétérostructures où les inclusions sont des cavités vides ou remplies d'eau.

Bibliographie

- [1] B. Pincent, D. Méline and J. Auriol, Measurement of the moisture content variation in non saturated, compacted clays, *Geoconfine 93*, Arnould, Barrès and Côme (eds), 1993.
- [2] J.P. Baron, La mesure de la teneur en eau par les méthodes nucléaires, *Journées de Physique. L.C.P.C.*, 1987, pp.151-156.
- [3] P.J. Tumidajski, A.S. Schumacher, S. Perron, P. Gu and J.J. Beaudoin, On the relationship between porosity and electrical resistivity in cementitious systems, *Cement and Concrete Research*, Vol. 26, No. 4, 1996, pp. 539-544.
- [4] P.J. Tumidajski, Electrical conductivity of Portland cement mortars, *Cement and Concrete Research*, Vol. 26, No. 4, 1996, pp. 529-534.
- [5] Zhongzi Xu, Ping Gu, Ping Xie and J.J. Beaudoin, Application of A.C. impedance techniques in studies of porous cementitious materials, *Cement and Concrete Research*, Vol. 23, 1993, pp. 1007-1015.
- [6] Davis J.L., Chudobiak W.J., In situ method for measuring relative permittivity of soils, *Geological Survey of Canada, Ottawa*, 1975, paper 75-1, A, pp.75-79.
- [7] G.C. Topp, J.L. Davis, A.P. Annan, Electromagnetic determination of soil water content using T.D.R. Evaluation of installation and configuration of parallel transmission lines, *Soil Science Society of America. Journal*, Vol. 46, 1982.
- [8] G.C. Topp, J.L. Davis, Measurement of soil water content using T.D.R. : a field evaluation, *Soil Science Society of America. Journal*, Vol. 49, 1985.
- [9] O. Buyukozturk, H.C. Rhim, Radar Imaging of concrete specimens for nondestructive testing, *Construction and Building Materials*, Vol. 11, N° 3, 1997, pp. 195-198.
- [10] H.C. Rhim, O. Buyukozturk, Electromagnetic properties of concrete at microwave frequency range, *ACI Materials Journal*, Vol. 95, N° 3, 1998, pp. 262-271.

CHAPITRE I

PERMITTIVITE DIELECTRIQUE COMPLEXE

ET LOIS DE MELANGE

I.1 Introduction

L'étude de la permittivité effective des matériaux composites remonte au début du XIX^e siècle. Et les recherches dans ce domaine continuent de manière intense en vue de nouvelles applications technologiques. Le concept de la permittivité effective est pratiquement indispensable dans la modélisation des matériaux composites à basses fréquences [1]. La permittivité effective (ou constante diélectrique macroscopique) permet de décrire des milieux qui restent homogènes tant que les effets de dispersion sont insignifiants lorsque les ondes radio pénètrent le matériau. La taille des inclusions dans le matériau devrait être beaucoup plus faible que la variation spatiale du champ électromagnétique incident, donc de sa longueur d'onde. Dans cette gamme de basses fréquences, les effets de dispersion dus à la présence des inclusions sont négligés. Bien que les pertes de dispersion ne soient pas incluses dans la permittivité effective en raison de restrictions quasi-statiques, les pertes par absorption sont prises en considération. Si les constituants du composite sont avec pertes, il en sera de même du composite. Et la permittivité du composite sera alors complexe.

La permittivité effective dépend des permittivités des matériaux constituants, de leurs fractions volumiques et de la forme des inclusions. L'accès à la permittivité effective dépend du degré de complexité de la structure du composite. Si le mélange a une structure périodique, la permittivité effective peut être évaluée analytiquement sous certaines conditions (formes des dispersions, orientation du champ électrique, ...) par des lois dites de mélanges. Par contre pour des milieux dont la structure est désordonnée et la concentration des inclusions est importante, il n'existe pas de solutions rigoureuses, ni de méthodes systématiques de calcul de la permittivité effective. La multitude des lois de mélanges rencontrées dans la littérature reflète ces difficultés. Des travaux récents ont montré que, pour des milieux où les concentrations d'inclusions sont importantes, le recours aux méthodes numériques s'avère indispensable.

Plusieurs théories et modèles ont été développés pour calculer les grandeurs électriques effectives des matériaux hétérogènes constitués de deux ou plusieurs phases en fonction des permittivités de chaque constituant et de sa concentration. Ces théories sont basées soit sur une approche typiquement phénoménologique (théorie de Wiener [2, 3], Wagner [3-5], Rayleigh [3, 5]), soit sur des lois de mélanges moléculaires (théories de Clausius-Mossotti [4], Onsager [2, 3, 4]). Des théories plus générales consistant à étudier les permittivités effectives des systèmes à deux composants sans se préoccuper des détails de leurs comportement (Looyenga [6], McLachlan [7 - 9]) ont été également développées.

Dans ce qui va suivre nous présentons les différents types de polarisation, la permittivité complexe des matériaux ainsi que l'influence de ces paramètres sur les pertes diélectriques. Nous introduirons par la suite les principaux modèles (lois de mélange) permettant de calculer les grandeurs électriques caractéristiques des matériaux composites diélectriques.

I.2 Phénomènes de polarisation

Les pertes diélectriques sont dues aux mouvements des porteurs de charges suite à l'application d'un champ électrique. L'effet de ces mouvement est appelé polarisation induite. L'effet de la polarisation diélectrique avait été découvert par Michael Faraday en 1837. On distingue plusieurs types de polarisation (Tableau I.1): électronique, ionique, dipolaire, macroscopique, interfaciale (ou du type Maxwell - Wagner), spontanée (Figure I.1); celles-ci peuvent co-exister ou apparaître séparément.

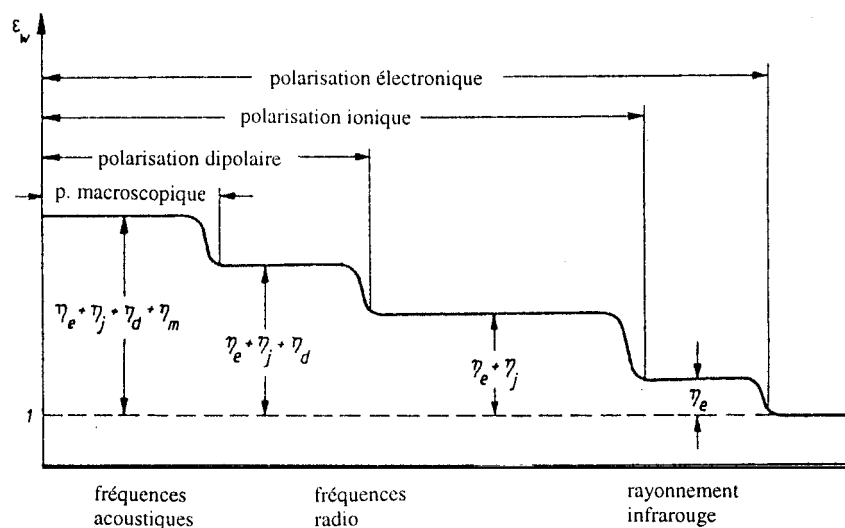


Figure I.1. Variation de la permittivité diélectrique en fonction de la fréquence

Tous ces types de polarisation peuvent être classés en deux groupes selon leurs caractères: la polarisation élastique (ou de résonance) et la polarisation de relaxation. La polarisation totale P est la somme des différents types de polarisation [10-12] :

$$P = \sum_k N_k a_k (\mathbf{E}_L)_k \quad (I.1)$$

a_k est la polarisabilité, N_k le nombre de dipôles k par unité de volume et E_L le champ inducteur qui polarise le dipôle.

I.2.1. Polarisation électronique

Elle est présente dans tous les diélectriques sans exception. Elle résulte des déplacements orbitales électroniques externes par rapport au noyau d'un atome. L'atome est considéré comme formé d'un noyau ponctuel, portant une charge Z_e . Ce noyau est entouré d'électrons confinés dans une sphère de rayon R , à l'intérieur de laquelle ils constituent une densité de charge r uniforme. En l'absence de champ, le noyau se trouve au centre de la sphère. Un champ local E_L crée des forces F_r tendant à extraire le noyau de la sphère chargée. Mais un déplacement δ du noyau par rapport au centre de la sphère, crée à son tour des forces d'attraction coulombienne F_a tendant à ramener le noyau au centre de cette sphère (Tableau I.1).

La polarisation électronique s'établit en quelques 10^{-15} s; elle est donc indépendante de la fréquence jusqu'à l'ultraviolet. La déformation de l'orbite qui l'accompagne est élastique, c'est à dire que le travail nécessaire à son apparition n'est pas converti en chaleur mais stocké dans le champ électrique. La polarisation élastique électronique ainsi que les dipôles induits disparaissent quand le champ est supprimé.

I.2.2. Polarisation ionique (ou atomique)

La polarisation ionique (ou atomique) résulte du déplacement des atomes liés par des liaisons ioniques. Dans le cas des liaisons ioniques, les électrons de valence parcourent les orbitales partagées avec d'autres atomes. On rencontre les liaisons ioniques dans la plupart des diélectriques solides non-organiques avec une structure cristalline (exemple: un monocristal ionique de structure cubique simple). Dans une structure donnée, le déplacement des ions sous l'action d'un champ local d'une quantité Dx par rapport à leurs positions de repos, donne naissance à une polarisation dite ionique (ou atomique). Dx correspond à l'équilibre entre les forces de rappel et la force due au champ local. Pour les petits déplacements, les forces de rappel peuvent être supposées proportionnelles à Dx (tableau I.1).

Vu l'inertie des ions relativement lourds, ce type de polarisation s'établit en environ 10^{-13} s, donc plus lentement que la polarisation électronique, et dépend de la charge de l'ion et des forces de liaisons ioniques mutuelles. La polarisation ionique, de même que la polarisation électronique, créent des dipôles induits; elle ne provoque pas de pertes d'énergie et disparaît avec la suppression du champ appliqué. C'est donc une polarisation élastique. Elle existe jusqu'aux fréquences correspondant à l'infrarouge; elle est propre à la plupart des matériaux céramiques.

I.2.3. Polarisation dipolaire (ou d'orientation)

La polarisation dipolaire (ou d'orientation) consiste en l'orientation, sous l'action du champ électrique, des molécules polaires, c'est à dire celles qui possèdent un moment dipolaire permanent. La structure de ces molécules est asymétrique: le centre de gravité résultant de toutes les charges négatives d'une telle molécule ne coïncide pas avec celui de toutes ses charges positives – la molécule est un dipôle électrique. Le caractère dipolaire est généralement propre aux molécules des composés chimiques ayant des liaisons ioniques, mais également aux composés ayant des liaisons covalentes qui ont une structure asymétrique (par exemple H_2O). La figure I.1.a correspond à la molécule CO_2 qui, parfaitement symétrique, ne présente pas de moment dipolaire spontané. La figure I.1.b correspond à celle de H_2O qui présente un moment dipolaire P_m (Tableau I.1).

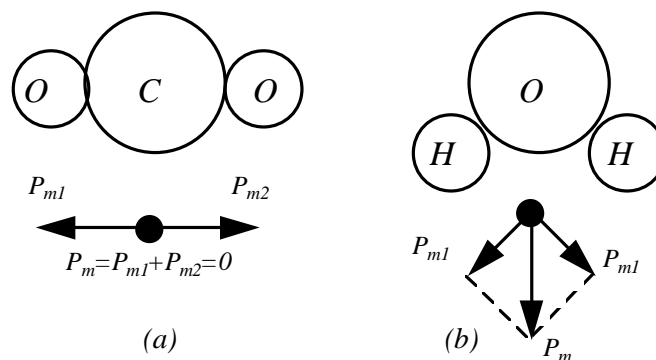


Figure I.1 Polarisation dipolaire ou d'orientation

I.2.4. Polarisation macroscopique

La polarisation macroscopique (appelée également polarisation de la charge spatiale) décrit le processus du déplacement limité des charges libres. Elle peut être rencontrée dans les diélectriques liquides et solides, surtout avec une structure non-homogène ou amorphe. La polarisation macroscopique s'établit lentement. Selon le type de matériau et des conditions de mesure (température, hygrométrie), le courant de déplacement qui l'accompagne lorsqu'une tension constante est appliquée, peut être observé pendant quelques millisecondes jusqu'à des centaines d'heures. La polarisation macroscopique dans les diélectriques liquides résulte de l'amasement des ions au voisinage des électrodes. Dans les diélectriques solides, le mouvement des charges est limité à cause des états énergétiques locaux de capture ou des barrières de potentiel. Les deux phénomènes résultent de la non-homogénéité du matériau.

I.2.5. Polarisation interfaciale

La polarisation interfaciale (ou du type Maxwell-Wagner) apparaît dans les diélectriques non-homogènes dont les permittivités (ϵ'_1 et ϵ'_2) et les conductivités (σ_1 et σ_2) des matériaux constituants 1 et 2 sont telles que:

$$\epsilon'_1 / \epsilon'_2 \neq \sigma_1 / \sigma_2 . \quad (\text{I.1})$$

Elle résulte d'une accumulation de charges à la frontière des deux milieux dues à l'ensemble des phénomènes de migration. En effet, les porteurs de charges, jamais totalement absents dans un diélectrique, migrent sous l'effet du champ et tendent à se concentrer autour de défauts tels que les impuretés, les lacunes et les joints de grains. Cette polarisation est caractérisée par le temps d'établissement le plus long de tous, qui peut atteindre plusieurs minutes et même davantage (Tableau I.1).

Ce type de polarisation possède aussi un caractère de relaxation; le temps de relaxation augmente quand la conductivité décroît. Généralement, la polarisation interfaciale s'affaiblit au voisinage des fréquences supérieures aux fréquences acoustiques.

| Type de polarisation | $E=0$ | \xrightarrow{E} |
|----------------------|-------|-------------------|
| Electronique | | |
| Ionique | | |
| Par orientation | | |
| Interfaciale | | |

atome
noyau

anion

cation

molécule
polaire

grain

Les déplacements des charges sont très fortement exagérés

Tableau I.1

I.3 Permittivité complexe et pertes diélectriques

1.3.1 Définitions

Un diélectrique est caractérisé par sa permittivité relative ou constante diélectrique ϵ_r . Dans le cas d'un diélectrique parfait, ϵ_r est le quotient de la capacité C_x entre deux électrodes, supposées noyées dans ce diélectrique, par la capacité C_v de la même configuration d'électrodes dans le vide:

$$\epsilon_r = \frac{C_x}{C_v} \quad (\text{I.2})$$

La permittivité absolue ϵ est le produit de la permittivité relative ϵ_r par la permittivité du vide ϵ_0 ($\epsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12}$ F/m) :

$$\mathbf{e} = \mathbf{e}_r \mathbf{e}_0. \quad (\text{I.3})$$

La permittivité absolue définit la possibilité d'être traversé par un courant électrique, sous l'action du champ électrique. Ceci résulte de diverses contributions de déplacements des charges : déplacement des électrons, déplacements des atomes et des ions, orientation des dipôles électriques et déplacement des charges d'espace. En effet, la densité de courant traversant ce diélectrique en présence d'un champ électrique sinusoïdal est [13,14] :

$$J(t) = \mathbf{s}E(t) + \frac{\partial D(t)}{\partial t} \quad (\text{I.4})$$

En passant par la transformé de Fourier, on aura :

$$J(\omega) = \mathbf{s}E(\omega) + j\omega D(\omega) \quad (\text{I.5})$$

$$J(\omega) = [\mathbf{s} + j\omega \mathbf{e}_0(1 + c'(\omega) - jc''(\omega))]E(\omega) \quad (\text{I.6})$$

ou encore

$$J(\omega) = [\mathbf{s}_c + \omega \mathbf{e}''(\omega) + j\omega \mathbf{e}'(\omega)]E(\omega) \quad (\text{I.7})$$

où

$$\mathbf{e}_0(1 + c'(\omega) - jc''(\omega)) = \mathbf{e}'(\omega) - j\mathbf{e}''(\omega) = \mathbf{e}^*(\omega) \quad (\text{I.8})$$

χ' et χ'' sont les composantes réelle et imaginaire de la susceptibilité électrique χ du milieu. ϵ' et ϵ'' sont les composantes réelle et imaginaire de la permittivité électrique complexe ϵ du milieu. Cette permittivité complexe tient compte de dissipation d'énergie, des pertes par absorption et par diffusion. On définit également une permittivité complexe relative :

$$\mathbf{e}_r^* = \mathbf{e}_r' - j\mathbf{e}_r'' \quad (\text{I.9})$$

où \mathbf{e}_r' joue le rôle qu'avait \mathbf{e}_r dans le cas des isolants parfaits. La permittivité complexe absolue est, de la même manière, égale au produit de la permittivité complexe relative par \mathbf{e}_0 . La composante en phase que présente J avec E est à l'origine des pertes diélectriques ; elle représente la dissipation d'une puissance dans le diélectrique. Ces pertes sont dues au travail nécessaire à l'établissement de la polarisation et à la conduction ohmique résiduelle \mathbf{s}_c du diélectrique [15, 16].

Le facteur de dissipation diélectrique est égale au quotient $\frac{e_r''}{e_r'}$; ce quotient est appelé aussi tangente de l'angle de perte ou *tan d*; *d* est l'angle complémentaire du déphasage entre la tension appliquée au diélectrique et le courant qui en résulte ($\tan d = \frac{e_r''}{e_r'}$).

En pratique, il n'est pas possible de s'affranchir des pertes par conduction [13] ; dans ce cas

$$\tan d = \frac{e_r''(\omega) + (S_c / \omega \epsilon_0)}{e_r'(\omega)}. \quad (\text{I.10})$$

I.3.2 Influence de la fréquence

En général, les propriétés diélectriques des matériaux varient considérablement avec la fréquence du champ électrique appliquée. L'apparition des pertes diélectriques peut être expliquée comme suit: aux très basses fréquences, la polarisation suit le champ alternatif, ce qui fait que sa contribution à la constante diélectrique est maximale et les pertes n'apparaissent pas. Aux fréquences très élevées, le champ alterne trop vite pour que la polarisation puisse augmenter et il n'y a aucune contribution à la constante diélectrique – aucune énergie n'est perdue dans le milieu [11]. Mais quelque part entre ces deux extrêmes, la polarisation commence à prendre du retard par rapport au champ électrique d'où dissipation de l'énergie. Le facteur de pertes atteint une valeur maximale à une fréquence f_m , liée au temps de relaxation caractéristique par la relation:

$$t = \frac{1}{2\pi f_m} = \frac{1}{\omega_m}. \quad (\text{I.11})$$

La permittivité et la polarisation de relaxation dépendent du temps; on distingue deux états d'équilibre pour chacune de ses caractéristiques. Dans un champ statique ($\omega \rightarrow 0$), la permittivité diélectrique vaut ϵ_s , et dans les fréquences optiques ($\omega \rightarrow \omega_{opt}$), elle vaut ϵ_∞ . L'équation typique décrivant ce modèle simple de relaxation diélectrique est l'équation de dispersion de Debye

$$e^* = e_\infty + \frac{e_s - e_\infty}{1 + \omega^2 t^2} - i \frac{(e_s - e_\infty) \omega t}{1 + \omega^2 t^2}. \quad (\text{I.12})$$

L'équation de Debye peut être écrite sous différentes formes selon la caractéristique expérimentale cherchée.

Plusieurs types de polarisation peuvent être décrits qualitativement de la même manière et c'est pourquoi, dans la plupart des cas, on peut appliquer l'équation de Debye. Il faut cependant rappeler que cette équation a été établie spécifiquement pour le cas de la relaxation dipolaire.

L'inconvénient de ce modèle est qu'il ne considère qu'un seul temps de relaxation et omet les interactions moléculaires alors que les diélectriques dipolaires réels correspondent rarement à ce modèle. De ce fait, on ne peut pas toujours décrire le phénomène de relaxation à l'aide de cette équation simple de Debye, car bien souvent les diélectriques se caractérisent par plusieurs temps de relaxation, comme c'est le cas par exemple des substances macromoléculaires, et des composites. Cole-Cole, Davidson-Cole ainsi que d'autres chercheurs ont proposé des modifications de l'équation de Debye en y introduisant des exposants empiriques menant à une augmentation du nombre de temps de relaxation pris en considération.

Néanmoins, toutes ces tentatives de description des phénomènes de dispersion et de relaxation diélectrique n'expliquent pas la complexité des phénomènes et relations observés pour un grand nombre de corps solides, surtout dans le spectre des basses fréquences. Il semble que les processus résultant des interactions entre plusieurs molécules chargées et responsables de la polarisation du diélectrique, jouent un rôle fondamental. Par conséquent, la description des mécanismes physiques (à l'échelle microscopique) impliqués dans les propriétés diélectriques des matériaux demeure toujours ouverte. Et la dépendance exponentielle du courant $i(t)$ ou de la polarisation du temps, ne sont pas les seules descriptions possibles de ce problème. Déjà au début du siècle dernier, une loi exponentielle, connue sous le nom de loi de Curie - von Schweidler, avait été proposée:

$$i(t) \sim t^{-n}, \quad (\text{I.13})$$

Certains auteurs, en particulier R.M. Hill, A.K. Jonscher et L.A. Dissado, ont remarqué que cette loi possède un caractère universel. Ces auteurs ont présenté un modèle universel d'interactions de plusieurs corps, en passant du domaine du temps au domaine de la

fréquence, pour obtenir des équations légèrement différentes pour des intervalles de basses et hautes fréquences [12].

I.4 Lois de mélanges

I.4.1 Théories du champ électrique local

L'approche théorique du problème de la permittivité diélectrique des mélanges diélectriques nécessite le calcul des polarisabilités et des moments dipolaires des inclusions composant le mélange. Ceci conduit au calcul du champ local au niveau de chaque inclusion et oblige à un passage par l'état mésoscopique de la matière.

Le champ électrique local E_l est par définition le champ régnant à l'emplacement d'un dipôle i donné, autrement dit c'est la résultante du champ macroscopique appliqué E et des champs créés par tous les autres dipôles E_j [11,7]:

$$(E_l)_i = E + \sum_{j \neq i} E_j \quad (\text{I.14})$$

Considérons un matériau diélectrique se trouvant dans un champ électrique E , et les particules du diélectrique se trouvant dans une cavité macroscopique sphérique (Figure I.2). Le diélectrique qui entoure cette cavité est considéré comme homogène. Le champ régnant à l'intérieur de la cavité sera la résultante du champ macroscopique extérieur E , du champ macroscopique E_1 provenant des charges induites sur la surface de la cavité, donc du milieu continu uniformément polarisé par P (si la cavité est sphérique, ce champ est déterminé par un calcul électrostatique élémentaire: $E_1 = P/3\epsilon_0$, le facteur $1/3\epsilon_0$ étant le coefficient de dépoliarisation d'une sphère), et du champ E_2 représentant la somme des champs individuels créés par les n dipôles (particules) situés à l'intérieur de la cavité. Le champ électrique local de ce diélectrique sera alors:

$$E_l = E + E_1 + E_2. \quad (\text{I.15})$$

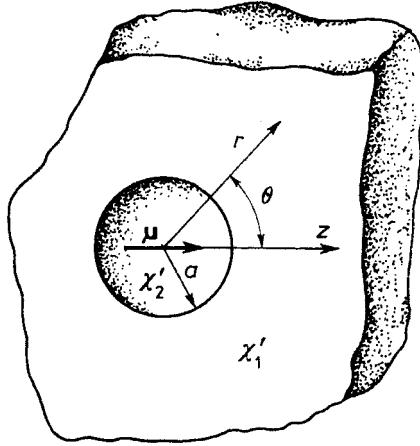


Figure I.2. Cavité macroscopique située dans le champ électrique externe E .

Le calcul du champ électrique local est l'un des principaux problèmes de la théorie des diélectriques. C'est un problème très complexe qui n'a toujours pas été résolu d'une manière complète et précise. Néanmoins, en utilisant certaines approximations et en partant de principes bien fondés, on arrive à obtenir des relations simples entre le champ local E_l et le champ extérieur E .

Le champ local et le champ appliqué (extérieur) sont liés selon Lorentz (1880) par la relation [17]:

$$E_l = E + \frac{P}{3\epsilon_0} = \frac{\epsilon' + 2}{3} E. \quad (\text{I.16})$$

Lorentz est parti du principe que les champs électriques, créés par les particules remplissant la cavité sphérique du diélectrique, s'annulent à l'intérieur de cette cavité ($E_2=0$). Ce principe limite le domaine d'application de l'équation décrivant le champ de Lorentz. Elle n'est satisfaite que dans le cas où les particules n'ont pas de moments dipolaires permanents, ou quand elles sont distribuées de façon désordonnée, ou bien quand elles constituent un réseau cristallin ayant une symétrie importante (dans ce cas $E_2=0$). De simples considérations de symétrie montrent que ce terme (E_2) s'annule pour toute distribution cubique et purement aléatoires des dipôles ($n \gg 1$). Le modèle du champ local de Lorentz n'est donc applicable que dans le cas des diélectriques non dipolaires avec des particules sphériques. On ne peut donc négliger le champ E_2 provenant du voisinage le plus proche de la particule dans le cas des gaz

condensés ou des liquides avec les particules dipolaires. Toutes les équations basées sur le modèle du champ local de Lorentz ne décrivent pas correctement les processus se produisant dans les diélectriques dipolaires condensés.

En 1936, Onsager [18] a proposé un nouveau modèle du champ local – pour les diélectriques dipolaires. Afin de calculer le champ local, Onsager a traité une molécule comme un dipôle ponctuel polarisable, placé dans une cavité sphérique, le milieu extérieur étant un diélectrique continu et homogène. Le champ local de ce système serait constitué du champ A de la cavité, créé par le champ extérieur E , et du champ de réaction R régnant également dans la cavité mais qui est créé par les charges induites par le dipôle:

$$E_l = A + R = bE + r\mathbf{m} \quad (\text{I.17})$$

où

$$b = \frac{\mathbf{e}'(\mathbf{e}_0 + 2)}{2\mathbf{e}' + \mathbf{e}_\infty} \quad (\text{I.18})$$

$$r = \frac{2(\mathbf{e}' - 1)(\mathbf{e}_\infty - 1)}{3(2\mathbf{e}' + \mathbf{e}_\infty)\mathbf{a}_d} \quad (\text{I.19})$$

μ étant le moment dipolaire et \mathbf{a}_d la polarisabilité dipolaire.

Le champ d'Onsager prend en compte les faibles distances entre les particules; par conséquent, il peut être appliqué aux systèmes contenant un nombre important de dipôles par unité de volume. Cependant, le fait que ce modèle suppose que le dipôle est entouré d'un milieu continu et homogène, limite son application.

En 1939, Kirkwood [19] a proposé un modèle un peu plus amélioré que celui d'Onsager. Mais la théorie la plus générale du champ local, et la plus considérée aujourd'hui, est celle proposée par Fröhlich en 1958 [20]. Néanmoins, les lois de mélanges connues se basent toujours sur le champ local de Lorentz.

I.4.2 Permittivité effective et champ d'excitation

La permittivité effective, ou la permittivité macroscopique, \mathbf{e}_{eff} , est définie comme le rapport entre le déplacement et le champ électrique:

$$D = \mathbf{e}_{eff} E \quad (\text{I.20})$$

Le déplacement D dépend de la polarisation P dans le matériau:

$$D = \epsilon_0 E + P = \epsilon_{eff} E . \quad (I.21)$$

La polarisation P est par définition la somme de tous les moments multipolaires induits. Elle peut donc être reliée à une caractéristique des constituants microscopiques du milieu: la polarisabilité. Dans le cas où les moments multipolaires d'ordre supérieur à deux sont négligeables [11], on obtient une relation entre la polarisation (dipolaire) P et la polarisabilité a de la forme:

$$P = \sum_k N_k \mathbf{a}_k (E_l)_k \quad (I.22)$$

où la sommation s'effectue sur les différents types de dipôles; N_k est le nombre de dipôles k par unité de volume et E_l est le champ inducteur qui polarise le dipôle. Cette équation permet de relier les caractéristiques microscopiques et macroscopiques du milieu [7]. En substituant (I.21) dans (I.22), il vient :

$$(\epsilon_{eff} - \epsilon_0)E = \sum_k N_k \mathbf{a}_k (E_l)_k . \quad (I.23)$$

Par conséquent, si on peut établir une relation entre le champ macroscopique appliqué E et le champ local E_l , on peut alors obtenir une relation entre ϵ_{eff} , grandeur macroscopique caractéristique du milieu et \mathbf{a}_k caractérisant ses constituants élémentaires. L'établissement de relations entre les grandeurs macroscopiques et les grandeurs microscopiques de la matière est un problème physique d'une grande complexité et nécessite de nombreuses approximations qui sont loin d'être satisfaisantes. En effet, on suppose que l'équation (I.23) qui relie la fonction diélectrique ϵ_{eff} à la polarisabilité \mathbf{a} s'applique aussi bien au cas des atomes et des molécules qu'à celui d'une inclusion de plusieurs centaines d'Angström d'un matériau k caractérisé lui même par une fonction diélectrique ϵ_k . Il faut pour cela que la relation linéaire (I.21) soit applicable, ce qui suppose que : (1) l'approximation dipolaire est valable aussi bien pour l'atome que pour l'inclusion, ce qui limite les formes acceptables pour celle-ci, et (2) le champ est uniforme sur le dipôle, ce qui limite la taille supérieure de l'inclusion

(approximation quasi-statique). Dans ces conditions, la fonction diélectrique effective \mathbf{e}_{eff} est donnée par :

$$(\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_0)E = \sum_k N_k \mathbf{a}_k (E_m)_k \quad (I.24)$$

où N_k est le nombre d'inclusions k par unité de volume, \mathbf{a}_k leurs polarisabilité et $(E_m)_k$ le champ inducteur sur l'inclusion k , \mathbf{a}_k est relié à la fonction diélectrique du matériau k par l'équation:

$$(\mathbf{e}_k - \mathbf{e}_0)E = Na_k \mathbf{a}_k (E_l)_k \quad (I.25)$$

où Na_k est le nombre d'atomes k par unité de volume du matériau k , et $(E_l)_k$ le champ local dans le matériau pur. L'équation (I.24) devient alors

$$(\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_0) = \sum_k \frac{Na_k}{N_k} (\mathbf{e}_k - \mathbf{e}_0) \frac{(E_m)_k}{(E_l)_k} . \quad (I.26)$$

Na_k/N_k est égal à la fraction volumique occupée par le matériau k dans le composite. Il faut maintenant déterminer la relation entre le champ inducteur mésoscopique $(E_m)_k$ polarisant l'inclusion et le champ local microscopique $(E_l)_k$ polarisant ses atomes. C'est très précisément le problème, à une échelle intermédiaire, traité à trois dimensions par Lorentz et qui conduit à l'équation de Clausius-Mossotti, que nous décrirons dans le paragraphe suivant. D'autres approches plus simples sont cependant envisageables; elles conduisent à des théories dont le champ d'application est réduit mais qui constituent parfois de très bonnes approximations.

I.4.3 Théorie moléculaire des milieux hétérogènes

La première version du modèle diélectrique d'un mélange hétérogène à deux phases a été proposée par Mossotti et Clausius. En 1848, l'astronome Mossotti [21] a constaté que le comportement de la poussière constituée de particules identiques peut être décrit par la quantité $N_k \mathbf{a}_k / 3\mathbf{e}_0$ laquelle quantité est proportionnelle à la densité de la poussière (N_k est le

nombre de particules par unité de volume et a_k est la polarisabilité de chaque particule). En 1879, Clausius [22] le thermodynamicien a montré que le rapport $(e - e_0)/(e + 2e_0)$ était proportionnel à la densité, e étant la permittivité macroscopique. Finalement les deux descriptions, microscopique (Mossotti) et macroscopique (Clausius), ont été réunies en une seule, appelée aujourd'hui relation de Clausius-Mossotti [23]:

$$\frac{\sum_k N_k a_k}{3e_0} = \frac{e - e_0}{e + 2e_0}. \quad (\text{I.27})$$

Cette équation avait été établie en supposant que le champ local était identique au champ externe [11], et en admettant le modèle du champ local de Lorentz (équation (I.16):

$$P = (e - e_0)E = NaE_l \quad (\text{I.28})$$

Elle ne peut donc décrire que le comportement de systèmes dilués et ne s'applique pas aux diélectriques dipolaires.

Dans l'analyse ci-dessus (équations (I.27) et (I.28)), la polarisabilité a est la somme de toutes les polarisabilités: électronique, atomique, ionique et inter faciale. Au niveau moléculaire, la validité de cette sommation des polarisabilités est discutable dans le cas des mélanges contenant des molécules polaires, comme l'eau. L'équation de Clausius-Mossotti a été contestée par Onsager qui en a dérivé une formule avec une correction tenant compte de la présence des dipôles. Avec sa formule, il était possible d'expliquer les propriétés ferroélectriques des matériaux où la température joue un rôle important.

D'autres analyses sur le rôle des molécules polaires en suspension, ont été faites également par Kirkwood et Fröhlich.

Néanmoins, à partir de cette relation unique de Clausius-Mossotti, on peut retrouver toutes les grandes théories classiques de la fonction diélectrique du milieu effectif. Il suffit, pour chacune d'elles, de définir le milieu dans lequel baignent les inclusions.

I.4.4 Théories des milieux effectifs

La caractérisation d'un milieu non homogène par ces fonctions diélectriques n'est pas si évidente, puisqu'on doit connaître l'arrangement géométrique exact des constituants du matériau. Cependant, si la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique est beaucoup plus grande que la dimension de la particule, les théories classiques des milieux non homogènes présument que le matériau peut être traité comme une substance homogène avec une fonction diélectrique effective. Cette quantité dépend des propriétés des constituants, aussi bien que de leurs fractions de volume et que de leurs tailles.

Les lois de mélange les plus célèbres sont celle du milieu effectif (EMT), connue sous le nom de théorie de Maxwell-Garnett (MGT), et celle du modèle de l'approximation du milieu effectif (EMA), connue sous le nom de théorie de Bruggman.

La théorie de Maxwell-Garnett est dérivée de la relation de Clausius-Mossotti (équation (I.27)); elle est basée sur la polarisation induite par un champ uniforme externe sur des inclusions sphériques isolées, placées dans le matériau hôte. La formule célèbre établie par Maxwell- Garnett en 1904 [24] a pour expression:

$$\frac{\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_m}{\mathbf{e}_{eff} + 2\mathbf{e}_m} = p \frac{\mathbf{e}_k - \mathbf{e}_m}{\mathbf{e}_k + 2\mathbf{e}_m} \quad (\text{I.29})$$

où le constituant décrit par \mathbf{e}_m constitue une matrice continue dans laquelle sont immergées les inclusions \mathbf{e}_k (ou \mathbf{e}_i s'il s'agit d'un seul type d'inclusions), \mathbf{e}_{eff} étant la permittivité effective du milieu. Dans un article original, "*Colours in metal glasses and metallic films*" daté de 1904, Maxwell- Garnett avait traité la coloration des verres, par la dispersion d'une très faible quantité de particules métalliques dans une matrice continue. Le domaine d'application de cette théorie est clairement défini à la fois par les hypothèses de base et par sa formulation, à savoir que l'ensemble des inclusions est équivalent à un dipôle unique, isolé dans la matrice, dont la polarisabilité est la somme des polarisabilités individuelles (Figure I.3). Les inclusions sont donc sans interactions; il s'agit simultanément de faible volume d'inclusions et de grandes distances inter particules.

En pratique il peut être difficile de décider lequel des composants devrait être considéré comme le matériau hôte (le cas de la céramique poreuse). Et le modèle de Maxwell-Garnett est incertain pour les concentrations d'inclusions supérieures à 50% [6, 25, 26].

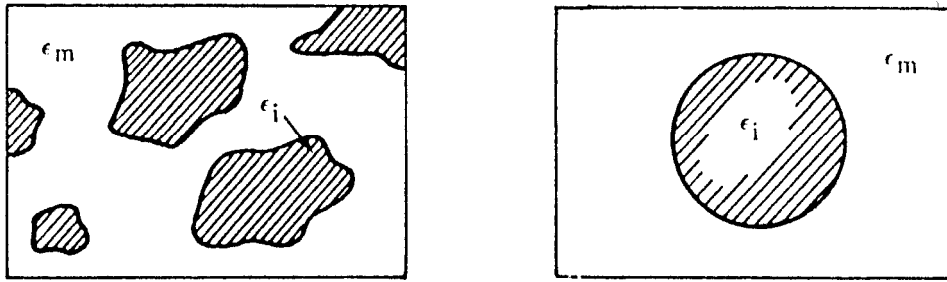


Figure I.3. La cellule unité représentative du milieu modélisé par la théorie de Maxwell-Garnett. Toutes les inclusions (modélisées par des sphères) sont ramenées à une inclusion unique: elles sont sans interactions.

Pour traiter ce problème, une autre théorie a été proposée par Bruggeman en 1935 [27]. Dans le modèle de Bruggeman (ou modèle du milieu effectif approximatif), l'hypothèse de l'existence du matériau hôte explicite n'est plus considérée [6, 25, 28]. Au lieu de cela, les particules d'un composant quelconque d'un matériau simple sont supposées encastrées dans un milieu effectif de permittivité égale à la permittivité du mélange e_{eff} que l'on essaye de trouver (Figure I.4). Ainsi e_{eff} doit être déterminé à partir de la relation:

$$(1-f) \frac{e_m - e_{eff}}{e_m + 2e_{eff}} + f \frac{e - e_{eff}}{e + 2e_{eff}} = 0. \quad (I.30)$$

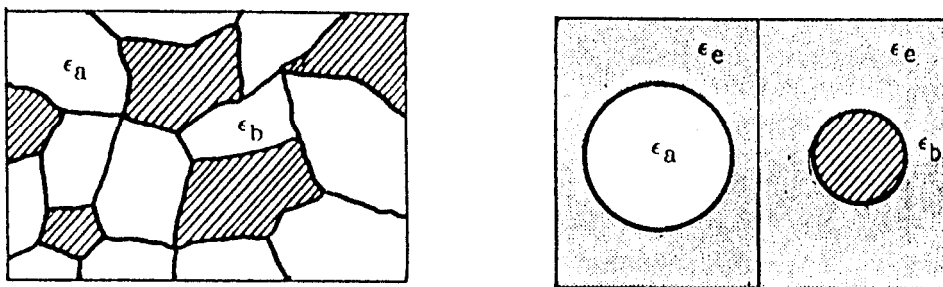


Figure I.4. Cellule unité de la théorie de Bruggeman. Elle est complexe et les deux inclusions types baignent dans le milieu moyen: elles sont donc en interaction.

Pour les faibles fractions volumiques, les deux théories MGT et EMA donnent des résultats très proches pour les constantes diélectriques effectives. Cependant, le modèle EMA

assure la validité aux fractions volumiques plus élevées puisqu'il traite les deux constituants de manière symétrique [28]. La deuxième hypothèse dans la théorie EMA porte sur la géométrie de la particule, puisque il est nécessaire de relier entre eux les champs interne et externe associés à la particule. Habituellement on suppose que les particules sont sphériques.

Les théories ci-dessus, basées sur les principes de l'électrostatique, ont été modifiées par d'autres auteurs durant le XX siècle, pour prendre en compte en particulier le paramètre taille des inclusions, ignoré jusque là dans la théorie des mélanges. En 1924, Fricke [29,30] a été le premier à inclure le facteur de forme pour prendre en compte la forme des particules. Le terme d'excentricité qu'il introduisit est basé sur l'aspect géométrique des inclusions sphéroïdales allongées ou aplaties aux pôles.

Böttcher [31] a proposé une formule permettant de retrouver la permittivité effective des milieux où la concentration des particules est si élevée que chaque particule est entourée par le mélange plutôt que par un composant. Cette relation a pour expression:

$$(\mathbf{e}_{eff} - \mathbf{e}_2) / \mathbf{e}_{eff} = 3q(\mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_2) / (\mathbf{e}_1 + 2\mathbf{e}_{eff}). \quad (\text{I.31})$$

où \mathbf{e}_1 est propre à la matrice et \mathbf{e}_2 est propre aux inclusions; q est la fraction volumique du composant dispersé.

Une autre équation intéressante a été développée par Looyenga [6] qui a supposé qu'en mélangeant deux constituants dont les permittivités sont telles que $\mathbf{e}_1 = \mathbf{e}_{eff} - \Delta\mathbf{e}_{eff}$ et $\mathbf{e}_2 = \mathbf{e}_{eff} + \Delta\mathbf{e}_{eff}$ et vice versa, la permittivité effective \mathbf{e}_{eff} du mélange peut être écrite sous la forme suivante:

$$\mathbf{e}_{eff} = \left\{ \mathbf{e}_2^{1/3} + q(\mathbf{e}_1^{1/3} - \mathbf{e}_2^{1/3}) \right\}^3. \quad (\text{I.32})$$

L'équation ci-dessus a été également obtenue indépendamment par Landau et Lifschitz [32], comme indiqué dans la référence [33].

Ces formules et beaucoup d'autres ont été proposées au XX^{ème} siècle pour le calcul de la permittivité effective. Toutefois, les résultats obtenus par les différentes formules, pour le même milieu modèle, ne sont pas toujours en parfait accord. Ils diffèrent selon les équations utilisées. Néanmoins, toutes les prédictions obtenues à partir des différentes approches,

peuvent être englobées par une région sous forme de lentille. Celle-ci a été proposée par Bergman et Stroud [34] et Milton [35].

I.4.5 Attribut stochastique

Dans toutes les théories susmentionnées, même si le mélange était considéré comme une entité aléatoire, aucun attribut stochastique, cependant, n'a été explicitement considéré [33]. Les descriptions analytiques des caractéristiques diélectriques d'un mélange formé par une dispersion volumique aléatoire d'inclusions formées, dans un mélange continu, sont en général compliquées à cause de la nature statistique des localisations spatiales aléatoires et des orientations de la phase dispersée. Cela veut dire que si un tel mélange est soumis au champ électrique, la conduction électrique et la polarisation dépendraient de la dispersion spatiale aléatoire et de l'orientation relative des inclusions formées dans le mélange. Les caractéristiques du milieu et plus particulièrement la permittivité diélectrique, seraient donc de nature statistique, puisqu'elles sont déterminées par la dispersion aléatoire des particules. Une telle attribution stochastique aux mélanges diélectriques a été développée en premier par Lichtenecker [36] et Lichtenecker et Rother [37]. D'après ces auteurs, la fonction qui décrit la permittivité effective ϵ_{eff} d'un mélange à deux constituants de permittivités diélectriques ϵ_1 et ϵ_2 (le nombre de constituants pouvant être étendu) et q (la fraction volumique), serait déterminée par l'induction du champ électrique dans le mélange et par des considérations statistiques dues à la dispersion volumique aléatoire (et orientation relative) des inclusions. Ainsi, la valeur de la permittivité effective d'un mélange statistique peut être décrite par une certaine fonction F_I comme suit:

$$\epsilon_{eff} = F_I(\epsilon_1, \epsilon_2, q, q) \quad (I.33)$$

où q est le facteur de forme, dépendant de la forme des inclusions. Tous les travaux théoriques sur ce sujet ont eu pour but de déterminer de manière explicite la fonction F_I dans cette équation. L'évaluation explicite de la fonction F_I revient à assurer les propriétés du système matriciel déterminé par les caractéristiques de ses composants. Toutes les recherches effectuées sur cet aspect avant Lichtenecker et Rother, ont conduit à une relation fonctionnelle générale du type:

$$F_2(\mathbf{e}_{eff}) = qF_2(\mathbf{e}_1) + (1-q)F_2(\mathbf{e}_2) \quad (\text{I.34})$$

avec $\mathbf{e}_{eff} = F_1(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2, q)$.

L'équation (I.34) détermine la loi de mélange. La fonction F_1 (et ainsi la valeur de \mathbf{e}_{eff}) peut être déterminée seulement si la fonction F_2 , dans cette équation, est explicitement connue. Les différents travaux menés pour évaluer analytiquement la fonction F_2 (ou la fonction F_1) pour divers types de mélanges diélectriques ont abouti à plusieurs lois de mélange qui ont été présentées dans une revue complète publiée par Brown [38] et van Beek [39].

Les formulations de mélanges diélectriques existantes peuvent être regroupées en trois catégories principales: (i) les formulations basées sur l'induction du champ électrique dans le mélange contenant des inclusions sphériques qui agissent ou non mutuellement les unes sur les autres (Lorenz [40], Rayleigh [41], Bruggeman [27], Böttcher [31], Meredith et Tobias [42], Looyenga [6]); (ii) les analyses basées sur l'induction du champ électrique dans le mélange contenant des inclusions formées (comme ellipsoïdes, sphéroïdes allongées ou aplaties aux pôles, inclusions sous formes de disques ou fissures, etc.) et où les effets de dépolarisation dues aux formes des inclusions sont soit pris en compte, soit ignorés (contributions significatives de Wiener [43], Fricke [29,30], Sillars [44], Polder et Van Santen [45], Lewin [46], Hamon [47], Boned et Peyrelasse [48], Shivola et Kong [5]); (iii) les formulations basées sur la théorie des mélanges et tenant compte de l'aspect aléatoire.

Les études qui traitent de cette troisième catégorie, basée sur des considérations statistiques des mélanges diélectriques, sont relativement peu nombreuses. En effet, on ne peut se référer qu'aux seuls travaux de Lichtenecker [36] et de Lichtenecker et Rother [37]. En considérant la théorie des mélanges, ces derniers ont déduit une loi logarithmique de mélange à partir des principes généraux de statistique. Pour un mélange à deux constituants, cette loi est donnée par la relation:

$$\mathbf{e}_{eff} = q\mathbf{e}_1^k + (1-q)\mathbf{e}_2^k \quad (-1 \leq k \leq 1). \quad (\text{I.35})$$

Pour k égal à 1 ou à -1 , on obtient deux systèmes qui décrivent les frontières de Wiener [43, 2], et quand k tend vers zéro, on obtient une formule décrivant un système désordonné:

$$\mathbf{e}_{eff} = \mathbf{e}_1^q \mathbf{e}_2^{(1-q)} \quad (\text{I.36})$$

ou encore

$$\log(\epsilon_{eff}) = q \log(\epsilon_1) + (1-q) \log(\epsilon_2) . \quad (I.37)$$

Les études expérimentales confortent la formule de Lichtenecker même pour le cas des milieux anisotropes. Cette loi logarithmique est considérée comme une bonne loi pour la description du comportement diélectrique (statique ou dynamique) des mélanges statistiques, pour toutes les fractions volumiques. Dans la loi logarithmique de Lichtenecker, la forme géométrique des inclusions ne joue pas un rôle important dans la détermination du comportement diélectrique macroscopique du mélange. Tous les petits effets de dépolarisation, qui peuvent surgir en raison de l'orientation relative des particules poreuses, ne sont pas pris en compte par la caractérisation stochastique résultante d'une dispersion aléatoire des inclusions dans le volume considéré du mélange. Par conséquent, comme le démontre l'équation (I.37), la permittivité de tels mélanges est une fonction seulement des permittivités et des volumes relatifs des constituants du mélange.

I.4.6 Influence de la géométrie des inclusions sur la permittivité

En considérant un mélange diélectrique contenant des inclusions formées, dispersées aléatoirement dans le matériau hôte, il est nécessaire d'attribuer la forme ou le facteur de forme aux inclusions en question pour expliquer les effets de la dépolarisation. Les inclusions (particules) sont appelées formées, quand au moins deux dimensions transversales diffèrent d'une manière significative, comme c'est le cas des ellipsoïdes, des sphéroïdes allongés ou aplatis aux pôles, des disques ou des fissures.

Pour introduire la forme des inclusions, Fricke [29,30] a développé une expression pour la permittivité effective d'un mélange diélectrique où le facteur de forme apparaît de manière explicite. Sa description analytique du mélange est basée sur l'induction du champ électrique dans le système dispersé. La permittivité effective du mélange est exprimée en fonction des permittivités du matériau hôte ϵ_2 et des inclusions ϵ_1 , de la fraction volumique q des inclusions et du facteur de forme x'_0 pour représenter les effets de la dépolarisation dans le flux de l'induction électrique:

$$e_{eff} = \frac{e_1 e_2 (1 + x'_0 q) + e_2^2 x'_0 (1 - q)}{e_1 (1 - q) + e_2 (x'_0 + q)} \quad (I.38)$$

où x'_0 dépend du rapport e_1/e_2 . Cependant, les résultats obtenus à partir de la formule de Fricke dévient d'une manière significative des résultats expérimentaux. Kisdnasamy et Neelakantaswamy [49] ont inclus l'aspect statistique dans la formule de Fricke sur les bases de la loi logarithmique, pour obtenir le facteur de forme modifié x_0 :

$$x_0 = M \frac{e_1^q e_2^{(1-q)} [e^{(1-q)} + e_2^q] - e_1 e_2}{e_2 [e_2^{(1-q)} + e_1^q - e_1^q e_2^{(1-q)}]} \quad (I.39)$$

où M est une fonction du rapport de deux demi axes des inclusions a/b .

Indépendamment de la forme, de la taille, de l'état physique, de la concentration volumique, ou de l'orientation de différentes phases, la réponse diélectrique effective du mélange se trouve toujours entre deux limites connues sous le nom de frontières de Wiener, suggérées par l'auteur en 1912 [44]. La permittivité des systèmes hétérogènes est étroitement liée à l'agencement des particules dans le système par rapport à la direction du champ appliqué, comme on peut le voir sur l'exemple simple d'un système stratifié à deux constituants (Figure I.5). Quand les directions du champ et des stratifications coïncident (combinaison parallèle, Figure I.5a), la permittivité effective est donnée par la relation:

$$e_{eff} = q e_1 + (1 - q) e_2 \quad (I.40)$$

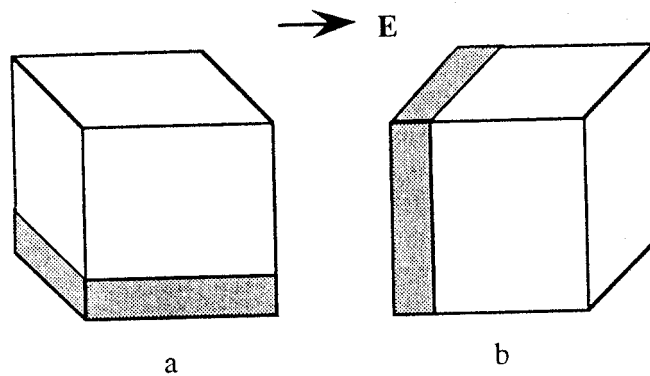


Figure I.5. Frontières de Wiener.

et quand les directions du champ et des stratifications sont perpendiculaires (combinaison série, Figure I.5b), elle est donnée par la relation:

$$e_{eff} = \frac{1}{\frac{q}{e_1} + \frac{(1-q)}{e_2}}. \quad (I.41)$$

I.4.7 Matériaux composites diélectriques avec une phase conductrice discrète

Une classe des matériaux composites diélectriques se réfère à un système à deux phases hôte - inclusion, dans lequel l'inclusion est une phase discrète conductrice, dispersée aléatoirement ou texturé comme un enfoncement ordonné dans la matrice hôte diélectrique. De tels composites sont essentiellement des mélanges diélectrique - conducteur. La prédiction de la permittivité effective et/ou de la conductivité de ces milieux composites n'est pas évidente. Néanmoins, depuis que la loi de Maxwell - Garnett a été établie, de nombreuses tentatives ont été faites pour évaluer les caractéristiques diélectriques effectives de tels systèmes [34].

En modélisation des mélanges conducteur - isolant, deux approches principales ont été poursuivies. La première implique le traitement du comportement diélectrique des mélanges entièrement indépendant des effets de la conduction des inclusions, et la deuxième utilise les expressions pour les propriétés diélectriques complexes des mélanges diélectrique - diélectrique où la phase conductrice est traitée comme un matériau diélectrique avec de très fortes pertes. Dans ce deuxième cas, les théories de mélanges concernant les composites diélectrique - diélectrique ont été étendues aux matériaux à fortes pertes, pour tenir compte des inclusions conductrices ; la permittivité complexe du mélange est calculée en supposant que la permittivité des inclusions conductrices est infinie. C'est ainsi qu'a été formalisé mathématiquement le découplage de l'aspect diélectrique du phénomène de conduction. Dans la plupart des cas, il apparaît que seuls les comportements statique ou quasi statique (à basses fréquences) de tels mélanges diélectrique - conducteur ont été étudiés pour déduire la

permittivité (sans pertes) statiques ϵ_s et/ou la conductivité en courant continu (DC) σ_{dc} du mélange.

En utilisant, par exemple, le concept de deux sphères concentriques de conductivités différentes, où l'une est enfermée dans l'autre, pour représenter un mélange à deux phases, Looyenga [32] a déduit la relation suivante:

$$q = \frac{(\hat{S}_{eff} - \hat{S}_1)(2\hat{S}_{eff} + \hat{S}_2)}{3\hat{S}_{eff}(\hat{S}_2 - \hat{S}_1)}. \quad (I.42)$$

Indépendamment, Böttcher [31] est arrivé à la même formule à partir des considérations du champ interne associé à des inclusions sphériques.

La permittivité effective dans tous les cas est calculée à partir de l'expression:

$$e_{eff} = \frac{S''_{eff}}{w}, \quad S''_{eff} = \text{Im}(S_{eff}). \quad (I.43)$$

I.5 Conclusion

Il ressort de ce chapitre, que la caractérisation d'un milieu hétérogène, et par conséquent la détermination de sa permittivité effective, nécessite la connaissance des propriétés des ses constituants (permittivités complexes, géométrie, ...). Les modèles et théories de calcul de la permittivité effective des mélanges, établis dans le cadre de l'approximation quasi-statique, nous serviront de référence pour discuter nos résultats.

D'autre part, les lois de mélanges rencontrées dans la littérature ne donnent que la permittivité effective des composites avec des constituants diélectriques alors que les hétérostructures peuvent être constituées de diélectriques et/ou de conducteurs.

Bibliographie

- [1] A. Priou, *Dielectric properties of heterogeneous materials*: A.H. Shivola and I.V. Lindell – *Polarisability modeling of heterogeneous media*, Progress in Electromagnetics Research, Elsevier, New York 1992.
- [2] C. Grosse et J.L Greffe, *Permittivité Statiques des Emulsions*, Journ. Chim. Phys., 76 (4), (1979), p. 305.
- [3] L.K.H. Van Beck, “Progress in Dielectrics”, Vol. 7, Heywood Books, London, 1967, p. 69.
- [4] S. Berthier, *Optique des milieux composites*, Polytechnica, Paris 1993.
- [5] A.H. Shivola, J.A. Kong, *Affective permittivity of dielectric mixtures*, IEEE Trans. Geoscience Remote Sensing, vol. 26 (4), (1988), pp. 420-429.
- [6] H. Looyenga, *Dielectric constants of heterogeneous mixtures*, Physica 31, (1965), pp. 401-406.
- [7] R. Landauer, “Electrical transport optical properties of homogeneous media”, (Ohio State University, 1977), Proceedings of the first Conference on the Electrical and optical Properties of Inhomogeneous Media, AIP Conf. N°40, Edited y J.C. Garland and D.B. Tanner (AIP, New York, 1978).
- [8] David S. McLachlan, Michael Blaszkiewicz, Robert E. Newnham, *Electrical resistivity of composites*, J. Am. Ceram. Soc., 73 (8), (1990), pp. 2187-2203.
- [9] D.S. McLachlan, M. Blaszkiewicz and R.E. Newnham, „Equation for conductivity of binary media”, Jap. J. Applied Physics, Vol. 26 (1987), supplement 26-3, p. 901.
- [10] A. von Hippel, *Dielectrics and waves*, (Artech House, Boston London 1995).

- [11] A. Chelkowski, *Fizyka dielektrykow*, PWN, Warszawa 1993.
- [12] B. Hilczer, *Elektrety i piezopolimery*, PWN, Warszawa, 1992.
- [13] R. Fournié, *Diélectriques: bases théoriques*, Technique de l'ingénieur (D2 I), D213.
- [14] A. Beroual, *Matériaux pour le génie électrique*, cours de DEA de génie électrique, Ecole Centrale de Lyon, France, 1996.
- [15] J.C. Mage, *Origine des pertes dans les matériaux*, RGE, N°7 (Juin 1991), p.24.
- [16] R. Coelho et B. Aladenize, „ Les diélectriques : propriétés diélectriques des matériaux isolants”, Ed. Hermès, 1993.
- [17] H.A. Lorentz, *Über die Beziehung zwischender Fortpflanzungs-geschwindigkeit des Lichtes unter Körperdichte*, Annalen der Physik und Chemie **9**, (1880), pp. 641-665.
- [18] L. Onsager, *Electric moments of molecules in liquids*, J. Am. Chem. Soc. **58**, (1936), pp. 1486-1493.
- [19] J.G. Kirkwood, *The dielectric polarisation of dielectric liquids*, J. Chem. Phys. **7**, (1939), pp. 911-919 (1939)
- [20] H. Fröhlich, *Theory of Dielectric Constant and Dielectric Loss*, Oxford: Clarendon, 1958.
- [21] O.F. Mossotti, 1850, *Discussione analitica sull'influenza che l'azione di un mezzo dielettrico ha sulla distribuzione dell'ellettrica alla superficie di più corpi elettici disseminati in esso*, Mem. Math. Fisica Modena **24**, pp. 49-74.
- [22] R. Clausius, 1879, *Die Mechanische Behandlung der Elektrizität*. Vieweg, Die Mechanische Wärmtheorie, Vol.2, Braunschweig, pp.62-97.

- [23] M.T. Prinkey, A. Lakhtakia, B. Shanker, *On the extended Maxwell-Garnett and the Extended Bruggeman approaches for dielectric-in-dielctric composites*, Optik 96 No. 1, (1994), pp. 25-30.
- [24] J.C. Maxwell Garnett, , *Colours in metal glasses and in metallic films*, Philos. Trans. R. Soc. Lond. A 203, (1904), pp. 38-420.
- [25] B. Michel, A. Lakhtakia, *On the application of the strong property fluctuation theory for homogenizing chiral-in-chiral composites*, J. Phys. D: Appl. Phys. 29 (1996) pp.1431–1440.
- [26] Robert W Boydy, Russell J Gehry, George L Fischery and J E Sipez, *Nonlinear optical properties of nanocomposite materials*, Pure Appl. Opt. **5**, (1996), pp. 505–512. Printed in the UK
- [27] D.A.G. Bruggeman, *Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von Substanzen. I. Dielektrizitätskonstanten und Leitfähigkeiten der Mischkörper aus isotropen Substanzen*, Annalen der Physik (Leipzig) **24**, (1935), pp. 636-679.
- [28] C. Pecharromàn, J.E. Iglesias, *Effictive dielectric properties of packed mixtures of insulator particles*, Physical Review B **49** (11), (1994), The American Physical Society.
- [29] H. Fricke, *A mathematical treatement of the electrical conductivity and capacity of disperse systems I*, Phys. Review **24**, (1924), pp.575-587.
- [30] H. Fricke, *A mathematical treatement of the electrical conductivity and capacity of disperse systems II*, Phys. Review, **26**, (1926), pp. 687-681.
- [31] C.J.F. Böttcher, *Theory of Electric Polarization*, Elsevier Science Publishing Co., Amsterdam, 1952.
- [32] L.D. Landau, E.M. Lifschitz, *Course of Theoretical Physics*, Pergamon Press, Oxford, 1960.

- [33] P.S. Neelakanta, *Handbook of Electromagnetic Materials. Monolithic and Composite Versions and their Applications*, Florida Atlantic University, Boca Raton, Florida, 1995.
- [34] Bergman D. J. and Stroud D., *Physical Properties of Macroscopically Inhomogeneous Media*, Solid State Physics **46**, (1992), pp. 147-269.
- [35] Milton G.W., *Bounds on the electromagnetic, elastic, and optical properties of two-component composites*, Physical Review Letters **46** (8), (1981), pp. 5294-5304.
- [36] K. Lichtenecker, Mischkörpertheori als Wahrscheinlichkeitsproblem, Phys. Zeitsch, vol. **30**, 1929, pp. 805-809.
- [37] K. Lichtenecker, K. Rother, *Die Herleitung des logarithmischen Mischungsgesetzes aus allgemeinen Prinzipien der stationären Strömung*, Phys. Zeitsch, vol. **32**, (1938), pp. 255-260.
- [38] W.F. Brown, *Dielectrics*, in Encyclopedia in Physics V-XVII, Springer-Verlag, Berlin 1956.
- [39] L.K.H. van Beek, *Dielectric behaviour of heterogeneous systems*, in Progress in Dielectrics, vol. **7** (J.B. Birks, Ed.), (CRC Press leveland) 1987.
- [40] L. Lorenz, Über die Refraktionsconstante, Ann. Phys. (Leipzig), vol. **11**, (1880), pp. 70-103.
- [41] Lord Rayleigh, *On the influence of obstacles arranged in rectangular order upon the properties of a medium*, Phil. Mag., vol. **34**, (1892), pp. 481-502.
- [42] R.E. Meredith, C.W. Tobias, *Advances Electrical and Electronic Engineering*, vol. II, (Wiley Interscience), New York 1962.
- [43] O. Wiener, Die Theori des Mischkörpers für das Feld des stationären Strömung, Abhdl. D. kgl. Akad. D. Wiss. Leipzig, vol. **32**, (1912), pp. 509-604.

- [44] R.W. Sillars, Properties of dielectric containing semi-conducting particles of various shapes, J. Inst. Elect. Engr., vol. **80**, (1937), pp. 378-392.
- [45] D. Polder, J.H. Van Santen, *The effective permeability of mixtures of solids*, Physica, vol. **12**, (1946), pp. 257-271.
- [46] L. Lewin, *The electrical constant of a material loaded with spherical particles*, J. IEEE part III, vol. **94**, (1947), pp. 65-68.
- [47] B.V. Hamon, *Maxwell-Wagner loss and absorption currents in dielectrics*, Aust. J. Phys., vol. **6**, (1953), pp. 305-315.
- [48] C. Boned, J. Peyrelasse, *Some comments on the complex permittivity of ellipsoid dispersed in continuum media*, J. Phys. D., vol. **16**, (1983), pp. 1777-1786.
- [49] S. Kisdnasamy, P.S. Neelakantaswamy, *Complex permittivity of a dielectric mixture, Modified Fricke's formula based on logarithmic law of mixing*, Electron Letts. vol. **20**, (1984), pp. 291-293.

CHAPITRE II

METHODES DE CARACTERISATION DES HETEROSTRUCTURES

II.1 Introduction

L'élaboration, la caractérisation ou la modélisation des matériaux présentent fréquemment un caractère marqué de pluridisciplinarité. Des collaborations étroites entre mécaniciens, chimistes, électriciens, physiciens du solide, métallurgistes, ... sont donc indispensables. L'objectif de telles collaborations est celui d'arriver à concevoir et à réaliser des matériaux de performances optimales pour l'élaboration de composants permettant d'assurer au mieux de grandes fonctions de mise en œuvre et d'utilisation de ces composants dans des systèmes appelés à fonctionner dans différentes conditions. Selon leur application, on peut diviser les matériaux en : conducteurs et semi-conducteurs, diélectriques (ou électro-isolants) et magnétiques. Tout matériau est en général caractérisé par plusieurs constantes. En pratique, on ne considère que les caractéristiques qui semblent les plus importantes pour une application donnée.

Dans ce chapitre, nous présentons les différentes classifications des matériaux ainsi qu'un certain nombre de méthodes servant à leur caractérisation.

II.2 Classification des matériaux

II.2.1 Classification basée sur la conductivité électrique

Cette classification est faite sur la base de la conductivité électrique σ , mesurée à 20°C (293K) :

- Pour les conducteurs : $\sigma > 10^6$ S/m ($\rho < 10^{-4}$ Ω cm)
- Pour les semi-conducteurs : $10^{-6} < \sigma$ (S/m) $< 10^4$ ($10^{-2} < \rho$ (Ω cm) $< 10^8$)
- Pour les diélectriques (isolants) : $\sigma < 10^{-10}$ S/m ($\rho > 10^{12}$ Ω cm)

II.2.2 Classification basée sur les niveaux d'énergie

Une autre façon de classer les matériaux c'est celle qui consiste à utiliser les niveaux d'énergie. Le modèle de l'état solide décrit les états énergétiques des électrons dans des domaines de la structure cristalline régulière et dont le degré de perturbation est faible. Pour l'interprétation de plusieurs phénomènes, il suffit d'utiliser trois notions liées au modèle : la bande de valence (niveau fondamental d'énergie), la bande interdite et la bande conduction. La largeur de la bande interdite ΔE_w influe de manière décisive sur la valeur de la conductivité électronique et sa dépendance de la température :

- $\Delta E_w = 0$: matériau conducteur
- $\Delta E_w = 0,5$ à $2,0$ eV : matériau semi-conducteur
- $\Delta E_w \sim$ dizaines d'eV : matériau diélectrique (nombre d'électrons dans la bande de conduction très faible : σ faible).

Ce modèle, basé sur les niveaux d'énergie, explique uniquement le phénomène de conduction électronique. Par contre, il ne décrit pas les autres phénomènes comme la conduction ionique dans les diélectriques, le phénomène de polarisation, ...

II.2.3 Classification basée sur la permittivité diélectrique

Une manière intéressante de classer les matériaux est celle basée sur la permittivité diélectrique relative complexe : $\epsilon_r = \epsilon' - j \epsilon''$. Cette représentation complexe ne prend en compte que le courant de conduction et le courant de déplacement ($\epsilon'' = \epsilon_p'' + \sigma/\omega \epsilon_0$, ϵ_p'' étant le terme lié à la polarisation et σ la conductivité électrique). Comme le montre les expériences, l'angle de pertes des métaux, dans la gamme des fréquences les plus utilisées, est égal à $\pi/2$ ($\phi=0$) et donc $\tan\delta = \epsilon'' / \epsilon'$ tend vers l'infini. Les pertes d'énergie due au passage du courant ont évidemment une valeur déterminée. De plus, ϵ'' doit avoir une valeur finie, c'est à dire que pour les métaux, on peut supposer que $\epsilon'=0$. Pour les autres types de matériaux, $\tan\delta$ a une valeur déterminée qui dépend de la fréquence. Pour les matériaux quasi-conducteurs, $\tan\delta > 1$ et pour les matériaux quasi-diélectriques, $\tan\delta < 1$. Cependant, comme $\tan\delta$ est fonction de la fréquence, cette subdivision n'est que relative. En effet, selon la fréquence, un matériau passe d'un état quasi-conducteur à un état quasi-diélectrique. Cette fréquence par exemple pour un aussi bon matériau électro-isolant comme le mica, est de l'ordre de 10^{-5} Hz, alors que dans le cas des métaux elle est de l'ordre de 10^{20} Hz.

Le fait de considérer un matériau donné comme quasi-conducteur ou encore comme quasi-diélectrique a une grande importance en particulier par rapport aux matériaux semi-conducteurs lesquels soumis à des signaux (contraintes) rapidement variables (par exemple des impulsions), peuvent être considérés comme diélectriques. Ceci peut jouer un rôle essentiel lorsqu'il s'agit de distribution de potentiel dans les systèmes complexes (composites).

Les valeurs de ϵ' pour les matériaux semi-conducteurs et diélectriques varient dans une large gamme ; elles sont toujours supérieures à 1. Les diélectriques de permittivité

relative statique $\epsilon_r > 3$ sont considérés en pratiques comme polaires alors que les diélectriques dont $\epsilon_r < 3$ sont dits non polaires ou peu polaires.

II.2.4 Classification basée sur la susceptibilité magnétique

Selon leur comportement dans un champ magnétique et plus particulièrement selon la valeur de leurs susceptibilités magnétiques η_m , les matériaux sont divisés en :

- diamagnétiques : $\eta_m \sim 10^{-6}$; $0 < \mu_r < 1$
- paramagnétiques : $\eta_m > 0$; $\mu_r > 1$ (à 20°C, $\eta_m \sim 10^{-2} \dots 10^{-5}$)
- ferromagnétiques : $\eta_m \gg 0$; $\mu_r \gg 1$ selon l'intensité du champ magnétique.

La susceptibilité magnétique est définie par la relation : $\eta_m = \mu_r - 1$.

II.3 Méthodes de caractérisation

Il existe plusieurs méthodes de caractérisation des matériaux [1, 2] : les méthodes nucléaires, les méthodes thermiques, les méthodes électriques, les méthodes diélectriques, ... Chacune de ces méthodes est adaptée à une application spécifique. Certaines s'intéressent à la détermination de la teneur en eau dans un sol, d'autres à la présence de fissures ou de cavités dans un métal, ... etc.

II.3.1 Méthodes nucléaires

Ces méthodes sont basées sur le comportement d'un rayonnement nucléaire incident sur un milieu donné. En effet, un rayonnement nucléaire émis dans un milieu est partiellement absorbé, diffusé, réfracté ou modifié suivant les propriétés physiques du milieu (sol par exemple) qu'il traverse, telles que sa masse spécifique et sa teneur en eau. Parmi ces méthodes, la méthode neutronique et la méthode gamma-métrique. La méthode neutronique utilise le ralentissement des neutrons émis par une source dans le milieu. L'hydrogène a un effet important sur le ralentissement de la diffusion des neutrons, et notamment l'hydrogène de l'eau. Le ralentissement des neutrons dépend de la teneur en eau volumique du milieu [1]. La méthode gamma-métrique utilise l'absorption du rayonnement gamma par le milieu, qui dépend de sa densité et de la quantité d'hydrogène qu'il contient.

Ces méthodes nécessitent un étalonnage au préalable vu qu'elles sont sensibles à la densité du milieu, à la présence de certains éléments-traces comme le bore ou lithium, et à l'hydrogène

lié chimiquement à la matrice milieu. D'autre part, la réglementation est très sévère quant à l'utilisation de ces méthodes ; on doit suivre une réglementation de plus en plus contraignante qui peut en limiter l'usage. Ces méthodes sont recommandées dans la caractérisation des sols.

II.3.2 Méthode thermique

Cette méthode est basée sur la relation entre la conductivité thermique d'un milieu ou sa chaleur spécifique, et sa teneur en eau [3, 4]. Il existe plusieurs techniques de mesure de la teneur en eau d'un milieu. Parmi celles-ci, la méthode de la sonde cylindrique à régime transitoire ; elle consiste à placer un élément chauffant dissipant une énergie constante dans le milieu, et à suivre l'évolution de la température à la surface de la sonde. Comme la température est fonction de la conductivité thermique, elle même dépendant de la teneur en eau, on peut déterminer la teneur en eau du milieu considéré. La teneur en eau peut être également mesurée par des méthodes calorimétriques et des sondes à choc thermiques. Ces méthodes permettent de mesurer la chaleur spécifique du milieu qui est une grandeur physique liée linéairement à la teneur en eau massique du milieu. L'avantage des méthodes thermiques c'est leur caractère peu destructif et le faible coût des capteurs et du système de mesure. Cependant, elles ne suffisent pas à compenser les difficultés à disposer de bibliothèques de courbes d'étalonnage, à éliminer les effets de la température du milieu qui complique l'interprétation et à supprimer l'interaction de la sonde sur l'état hydrique du milieu qu'elle mesure. Cette méthode est très bien adaptée au milieu sol.

II.3.3 Méthode électrique – résistivité

Cette méthode est basée sur la mesure de la résistivité r (ou la conductivité électrique $s : r = 1/s$) du milieu [3, 4]. En effet, la conductibilité électrique d'un milieu dépend de sa teneur en eau et des ions en présence. De ce fait, la conductibilité électrique globale du milieu est directement liée à sa teneur en eau. En mesurant la conductibilité du milieu, on peut déterminer indirectement sa teneur en eau. Malheureusement, cette méthode est sensible aux fluctuations thermiques et demeure imprécise pour la mesure des fortes teneurs en eau.

II.3.4 Méthodes diélectriques

Cette méthode est basée sur la détermination de la permittivité diélectrique, résultat de phénomènes de polarisation des porteurs de charge liés. En effet, les porteurs libres se déplacent sous l'effet du champ électrique donnant lieu à des phénomènes de conduction électrique. Comme nous l'avons indiqué dans le chapitre I, la permittivité diélectrique dépend

de la fréquence du signal d'excitation. On distingue trois domaines de fréquences : le domaine des fréquences inférieures à 10 MHz, celui de la polarisation ionique, celui entre 10 MHz et 10 GHz, et enfin le domaine des fréquences supérieures à 10 GHz où la permittivité de nombreux matériaux diminue fortement. La vitesse de propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu varie en fonction de sa permittivité. La constante diélectrique (ou permittivité relative) des matériaux utilisés surtout en génie civil varie sur une large gamme. Elle est de 80 pour l'eau, 2 à 5 pour la partie solide, 1 pour l'air et 4 à 5 pour la glace. Compte tenu de ces contrastes, la constante diélectrique d'un milieu varie surtout en fonction de sa teneur en eau.

Il existe deux méthodes de mesure : la méthode capacitive où on mesure la capacité d'un condensateur formé du matériau étudié et la méthode par réflectométrie dans le domaine temporel [4 - 6] qui est une méthode tout à fait nouvelle. Les électrodes de mesure capacitives peuvent être de très petite taille et concerner des volumes de quelques cm^3 à plusieurs dm^3 . La méthode TDR exige, une longueur de 10 cm donc des échantillons de matériaux d'un volume décimétrique. Ces méthodes ont la réputation d'être sensibles à la température et à la résistivité du milieu.

II.3.4.1 Méthode capacitive

Pour mesurer la teneur en eau, on utilise le fait que la fréquence varie avec la teneur en eau d'un milieu donné. Pour cela, on place les électrodes dans le circuit d'un oscillateur électronique de fréquence élevée, 38 MHz environ, bien adaptée à la mesure de teneur en eau. L'utilisation d'un système à double fréquences, isolant provisoirement les électrodes, permet d'améliorer la précision de mesure. L'étalonnage fréquence-teneur en eau, corrigé de l'effet de température permet de mesurer en continu la teneur en eau du sol. La forme des électrodes des sondes capacitives est très variée. Pour les mesures de surface, le système pointe-anneau (30 mm de longueur) est bien adapté.

Pour optimiser ce capteur et limiter les effets (capacités en particulier) parasites, l'électronique associé est placé le plus près possible des électrodes. D'autre part, ces circuits doivent résister aux différentes contraintes environnementales auxquelles elles sont exposées sur site : pluie, température voire foudre. Si cette protection est envisageable lorsque le capteur est en surface, une fois enterrée, donc inaccessible, la moindre panne de l'électronique le rend inutilisable.

II.3.4.2 Méthode T.D.R. (Time Domain Reflectometry)

La méthode par réflectométrie dans le domaine temporel (Time Domain Reflectometry) est basée sur l'analyse du comportement d'une onde électromagnétique émise dans le milieu étudié. Elle utilise le fait que : (1) la vitesse de propagation de cette onde est fonction de la permittivité du milieu ; et (2) cette onde se réfléchit en partie à chaque discontinuité d'impédance de la ligne de transmission. L'onde qui est une impulsion électrique à très haute fréquence délivrée par un générateur à impulsions, parcourt la ligne, puis la sonde, en se réfléchissant à l'entrée et à l'extrémité de la sonde. La mesure du temps aller-retour de l'onde, au niveau de la sonde, au moyen d'un oscilloscope ultra-rapide permet d'en déduire la permittivité apparente du sol.

Les sondes sont le plus souvent bifilaires, formées de deux électrodes métalliques parallèles reliées à un câble électrique d'impédance adaptée qui rejoint le générateur-oscilloscope de mesure.

Notons que les méthodes capacitives et T.D.R. permettent toutes deux de mesurer la permittivité diélectriques. Et c'est pourquoi elles sont souvent regroupées ensemble.

D'autres méthodes basées sur le principe de l'émission d'une onde électromagnétique dans l'hétérostructure et de l'analyse de son comportement (absorption, réflexion, réfraction) ont été également développées ces dernières années. Parmi celles-ci, les méthodes utilisant des radars à ultra large bandes [8 - 18] et plus particulièrement la méthode de la coupe radar verticale (Vertical Radar Profiling – VRP) qui connaît un intérêt croissant [12 - 18]. Les méthodes radars permettent d'effectuer de l'imagerie à haute résolution pour visualiser les variations de fissures et de cavités dans les hétérostructures, de déterminer la permittivité diélectrique de l'hétérostructure, sa teneur eau et sa porosité et de localiser les inclusions. Ces méthodes permettent, à travers la mesure des propriétés diélectriques, d'évaluer les performances des hétérostructures ou de nouveaux matériaux de construction.

II.3.5 Méthode acoustique (ultra sons)

Elle est basée sur les propriétés acoustiques de la matrice et des inclusions [18 - 19]. C'est une méthode connue et utilisée pour la détection des défauts dont les dimensions sont supérieures

à 200 μm . Son grand avantage est qu'elle permet d'effectuer des mesures en temps réel et d'analyser de grands volumes, permettant ainsi de diminuer les sources d'erreurs [21 - 22].

Les systèmes de mesure à ultra sons conventionnels ont des fréquences de fonctionnement inférieures à 10 MHz et, par conséquent, ne permettent pas de détecter des inclusions de petites tailles (50 – 100 μm). Le développement de systèmes ultra sons à hautes fréquences, utilisant des sondes travaillant dans la gamme 30 – 100 MHz, permettent de détecter des inclusions (trous ou autres) de diamètres inférieures à 100 μm [23]. Cependant, plus la fréquence est augmentée pour détecter des inclusions plus petites, plus les signaux ultra sons pénètrent moins dans l'hétérostructure.

II.3.6 Méthodes magnétiques

Ces méthodes sont utilisées dans l'inspection interne des matériaux métalliques et des alliages [19]. L'une des méthodes les plus communément utilisées est la méthode du flux de fuite magnétique [26 - 29]. Le principe de base de cette méthode est que lorsque une discontinuité c'est à dire un défaut ou une inclusion sont présents près de la surface d'un matériau ferromagnétique, un flux de fuite se développe. La résistance magnétique dans cette position augmente jusqu'à une valeur très élevée par rapport au reste du matériau. Si le matériau ferromagnétique est magnétisé près de la saturation, le flux magnétique est perturbé par la discontinuité et est dévié dans la région au dessus de la partie défectueuse comme le flux de fuite, qui peut être détecté par un capteur magnétique. Cette méthode est sensible surtout aux inclusions allongées.

II.3.7 Méthode des rayons X

La micro-radiographie à rayons X est une autre méthode non destructive utilisée pour la détection des inclusions dans les métaux. On peut avoir facilement une image agrandie avec un équipement standard. L'association d'un micro-objectif avec des tubes à rayons X permet d'obtenir un agrandissement de l'image de 5 à 10 [30, 31]. Pour éviter l'utilisation de films radiographiques, on peut faire appel à la fluoroscopie ; cette technique permet l'agrandissement de l'image en temps réel.

L'un des inconvénients de cette méthode, c'est sa difficulté à séparer les trous des inclusions. En effet, comme les trous ont un coefficient de transmission plus élevé que celui des

inclusions, ils apparaissent plus foncés sur les radios, que les inclusions de mêmes dimensions. Cette méthode est une option intéressante pour la détection des inclusions. L'investissement est important et les coûts opérationnels sont élevés.

II.4 Conclusion

La permittivité diélectrique et la résistivité (ou la conductivité) électrique apparaissent comme deux paramètres importants pour caractériser une hétérostructure. Les diverses méthodes actuelles dont nous avons exposé quelques unes dans ce chapitre, n'utilisent qu'un seul de ces paramètres séparément.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Baron, J.P. 1987. La mesure de la teneur en eau par les méthodes nucléaires, Journées de Physique. L.C.P.C., pp.151-156.
- [2] B. Pincent, D. Méline and J. Auriol, Measurement of the moisture content variation in non saturated, compacted clays, Geoconfine 93, Arnould, Barrès and Côme (eds), 1993.
- [3] Pincent, B., Méline, D., and Auriol, J. 1993. Measurement of the moisture content variation in non saturated, compacted clays, Geoconfine 93, Arnould, Barrès and Côme (eds).
- [4] Davis, J.L., and Chudobiak, W.J., 1975. In situ method for measuring relative permittivity of soils, Geological Survey of Canada, Ottawa, paper 75-1, A, pp.75-79.
- [5] Topp, G.C., Davis, J.L., and Annan, A.P. 1982. Electromagnetic determination of soil water content using T.D.R. Evaluation of installation and configuration of parallel transmission lines, Soil Science Society of America. Journal, Vol. 46.
- [6] Topp, G.C., and Davis, J.L., 1985. Measurement of soil water content using T.D.R. : a field evaluation, Soil Science Society of America. Journal, Vol. 49.
- [7] W. Herkelrath, S.P. Hambourg, F. Murphy, Automatic real time monitoring of T.D.R., Water Ressources Research, Vol. 27, n°5, 1991, pp. 857-864.
- [8] Buyukozturk, O., and Rhim, H.C., 1997. Radar Imaging of concrete specimens for nondestructive testing, Construction and Building Materials, Vol. 11, N° 3, pp. 195-198.
- [9] Rhim, H.C., and Buyukozturk, O., 1998. Electromagnetic properties of concrete at microwave frequency range, ACI Materials Journal, Vol. 95, N° 3, pp. 262-271.
- [10] J.L. Davis, A.P. Annan, Ground-penetrating radar for high-resolution mapping of soil and rock stratigraphy: Geophysical Prospecting, 37, 1989, pp. 531-551.
- [11] M.J. Eppstein, D.E. Dougherty, Efficient three-dimensional data insersion: Soil characterization and moisture monitoring from cross-well ground-penetrating radar at a Vermont test site, Water Ressources Research, 34, 1998, pp. 1889-1900.

- [12] K. Gerlitz, M.D. Knoll, G.M. Cross, R.D. Luzitano, and R. Knight, Processing ground penetrating radar data to improve resolution of near-surface targets, Proc. SAGEEP'93, San Diego, CA, 1993, pp. 561-572.
- [13] R.J. Greaves, D.P. Lesmes, J.M. Lee, and M.N. Toksov, Velocity variations and water content estimated from multi-offset, ground-penetrating radar, Geophysics, 61, 1996, pp. 683-695.
- [14] B.A. Hardage, Vertical Seismic Profiling: Part A: Principles, 2nd ed. London, Geophysical Press, 1985.
- [15] S.S Hubbard, Y. Rubin, E. Majer, Ground-penetrating-radar-assisted saturation and permeability estimation in bimodal systems, Water Resources Research, 33, 1997, pp. 971-990.
- [16] M.D. Knoll, A petrophysical basis for ground penetrating radar and very early time electromagnetics: Electrical properties of sand-clay mixtures, Ph.D dissertation, University of British Columbia, 1996.
- [17] O. Olsson, L. Falk, L. Forslund, L. Lundmark, and E. Sandberg, Borehole radar applied to the characterization of hydraulically conductive fracture zones in crystalline rock, Geophysical Prospecting, 40, 1992, pp. 109-142.
- [18] M.D. Knoll and W.P. Clement, Vertical radar profiling to determine dielectric constant, water content and porosity values at well locations, Processing of the Symposium on the Application of Geophysics to Engineering and Environmental Problems, SAGEEP'99, Oakland, CA, Environmental and Engineering Geophysical Society, Wheat Ridge, CO, 1999, pp. 821-830.

- [19] H.V. Atkinson and G. Shi, "Characterization of inclusions in clean steels: a review including the statistics of extremes methods", *Progress in Materials Science* 48, 2003, pp. 457-520.
- [20] M.G. Silk, *International Metal Review* 23, 1982, pp. 28-50.
- [21] J.A. Olgilvy, *Ultrasonics*, 31, 1993, pp.219-222.
- [22] H.T. Ploegaert, J.V. Steel, *Revue de métallurgie –CIT*, 93, 1996, pp. 111-7
- [23] G. Auclair, R. Meilland, F. Meyer, *Revue de Métallurgie – CIT* 93, 1996, pp. 119-29
- [24] Syam K. Mantrala, C. Vipulanandan, *Nondestructive evaluation of polyester polymer concrete*, *ACI Materials Journal*, 1995, pp. 660-668.
- [25] S.P. Shah and S. Chandra, *Mechanical Behavior of Concrete Examined by Ultrasonic Measurements*, *Journal of Materials*, Vol.5, N°3, 1970, pp. 550-563.
- [26] M. Wakoh, *Curr Adv. Mater Proc.* 1993, 6, pp. 1172-3
- [27] H. Tanabe, Y. Matsufuji, J. Yosuji, S. Ando, *J. Iron Steel Inst. Jpn*, 1991, 4, pp. 63-9
- [28] Y. Matsuoka, Y. Nakamura, Y. Naganuma, *Nippon Steel Rechnical Report* 1991, 14, pp. 63-9
- [29] P. Neu, P. Piggi, B. Sarter, *Proc. 3rd Int. Conf. 'Clean steels '*, Balatonfured, Hungary, June 1986, edited and published by the institute of Metals, London, 1987, pp.99-102
- [30] J. Diji, D. Manneveld, J.M. Rabennerg, *Ironmaking and Steelmaking*, 1993, 20, pp. 75-80
- [31] D.E. Gridero, P.K. Ausburn, *J. Non-Destruct. Test*, 1987, 1, pp. 15-17

CHAPITRE III

MODELISATION DES HETEROSTRUCTURES PAR DES CIRCUITS ELECTRIQUES : METHODE DE L'IMPEDANCE EQUIVALENTE

III.1 Introduction

Ce chapitre est dédié à la caractérisation des hétérostructures constituées d'une matrice homogène tridimensionnelle (matériau hôte) et d'inclusions diélectriques ou conductrices, en utilisant une nouvelle méthode basée sur la détermination de l'impédance équivalente. Dans une première étape, nous présentons les principes de base de la méthode de l'impédance équivalente et calculons l'impédance équivalente de diverses structures types que nous utiliserons par la suite, c'est à dire des structures « sandwich » constituées de diélectriques, de conducteurs ou des deux à la fois, et nous déduirons les lois de mélanges correspondantes (c'est à dire la permittivité et la résistivité effectives) que nous validerons sur certains types de matériaux. Dans une deuxième étape, nous calculons l'impédance équivalente de deux types d'hétérostructures pour lesquelles nous établissons également les lois de mélanges correspondantes: un matériau avec des trous et un matériau contenant de longs tubes conducteurs. Des validations expérimentales sur des échantillons contenant des inclusions, en forme de tubes carré, remplis d'air ou d'eau, insérés dans une matrice polymère, sont présentées.

III.2 Principe de base de la méthode de l'impédance équivalente

La méthode de l'impédance équivalente est souvent utilisée en génie électrique pour apprécier la qualité de l'isolation électrique d'un matériau donné ou d'un composant. Elle consiste à représenter un matériau diélectrique par une impédance constituée elle-même d'une capacité en série ou en parallèle avec une résistance (Figure III.1), la résistance représentant les pertes diélectriques.

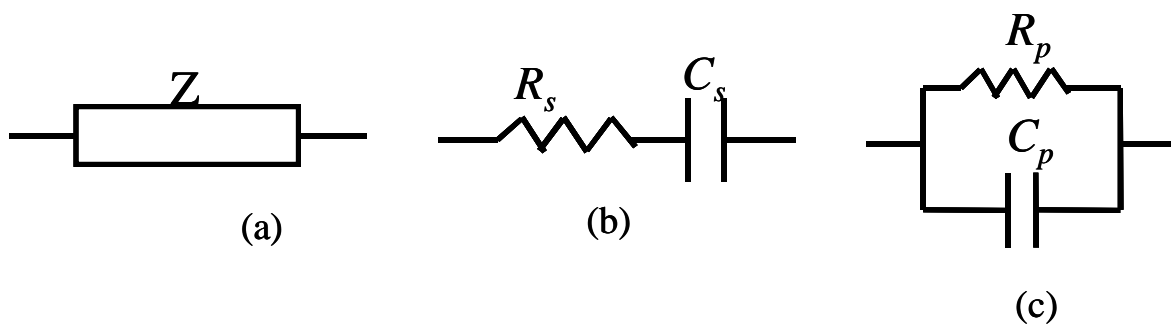


Figure III.1. Schéma de l'impédance électrique équivalente (a) et les éléments constituant: (b) représentation série et (c) représentation parallèle.

Dans la plupart des applications technologiques, les matériaux utilisés sont généralement des diélectriques (ciment, argile, sable, polymère, bois, ...) ou des conducteurs (métaux, eau, ...). A l'exception de certains matériaux pouvant posséder des propriétés magnétiques auquel cas on doit faire apparaître la perméabilité magnétique (ou une inductance), les matériaux peuvent être également représentés par une résistance (ou conductance) et une capacité en série ou en parallèle. Ainsi, l'impédance équivalente Z sera donnée par les relations suivantes :

- Représentation série:

$$Z_s = R_s - j \frac{1}{C_s \omega} = R_s + jX_s \quad (\text{III.1})$$

avec $X_s = -\frac{1}{C_s \omega}$ et $j^2 = -1$

ω est la fréquence angulaire (ou pulsation); $\omega = 2\pi f$ où f est la fréquence du signal électrique utilisé pour la caractérisation.

Pour un conducteur parfait : $Z_s = R_s$

et

Pour un isolant parfait: $Z_s = -j \frac{1}{C_s \omega}$

- Representation parallèle:

$$\frac{1}{Z_p} = \frac{1}{R_p} + jC_p \omega$$

où

$$Z_p = \left[\frac{R_p}{1 - (R_p C_p \omega)^2} \right] + j \left[\frac{-R_p^2 C_p \omega}{1 - (R_p C_p \omega)^2} \right] = R_p + jX_p \quad (\text{III.2})$$

avec

$$R_p = \left[\frac{R_p}{1 - (R_p C_p \omega)^2} \right]$$

et

$$X_p = \left[\frac{-R_p^2 C_p \omega}{1 - (R_p C_p \omega)^2} \right]$$

Il ressort des équations (III.1) et (III.2) que Z_s et Z_p dépendent également de la fréquence. X_s et X_p sont les réactances.

Pour un conducteur parfait: $Z_p = R_p$

et

Pour un isolant parfait: $Z_p = -j \frac{1}{C_p \omega}$

Toute combinaison de phases diélectriques et conductrices peut être représentée par des circuits R-C série ou parallèle.

III.3 Lois de mélanges

Avant d'étudier le cas de certaines hétérostructures que l'on peut rencontrer dans la pratique, considérons d'abord des hétérostructures élémentaires, c'est à dire des configurations sandwich. Pour cela, nous analysons le cas général où l'hétérostructure (sandwich) est constituée d'une couche d'impédance Z_i entre deux couches d'un matériau donné d'impédances Z_{1m} et Z_{2m} respectivement (Figure III.2).

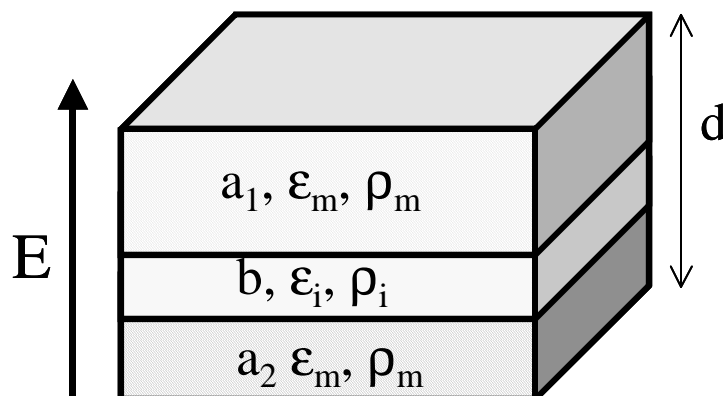


Figure III.2. Schéma d'une structure sandwich.

Nous supposons que: (1) toutes les interfaces sont planes, (2) chaque constituant est décrit par sa résistance série ou parallèle, (3) chaque constituant a des surfaces identiques, et (4) les couches sont indépendantes les unes des autres, c'est à dire qu'il n'existe aucun couplage entre les constituants. En prenant le modèle équivalent série, nous aurons

$$Z_{1m} = R_{1m} - \frac{1}{jC_{1m}W} \quad \text{où } R_{1m} = r_m \frac{a_1}{S} \quad \text{et} \quad C_{1m} = e_m \frac{S}{a_1} \quad (\text{III.3})$$

$$Z_{2m} = R_{2m} - \frac{1}{jC_{2m}W} \quad \text{où } R_{2m} = r_m \frac{a_2}{S} \quad \text{et} \quad C_{2m} = e_m \frac{S}{a_2} \quad (\text{III.4})$$

$$Z_i = R_i - \frac{1}{jC_i W} \quad \text{où } R_i = r_i \frac{b}{S} \quad \text{et} \quad C_i = e_i \frac{S}{b} \quad (\text{III.5})$$

r_m et r_i sont respectivement les résistivités du matériau et de l'inclusion ; e_m et e_i sont les permittivités électriques du matériau et de l'inclusion respectivement.

Comme les impédances Z_{1m} , Z_{2m} et Z_i sont en série , l'impédance équivalente de la structure Z_e est égale à

$$Z_e = Z_{1m} + Z_{2m} + Z_i \quad (\text{III.6})$$

Par substitution des équations (III.3), (III.4) et (III.5) dans (III.6), il vient

$$Z_e = \left(\frac{d}{S} \right) \left\{ [r_m (1-b) + r_i b] - j \frac{1}{W e_i e_m} [e_i (1-b) + e_m b] \right\} \quad (\text{III.7})$$

ou $d = a_1 + a_2 + b$ et $b = \frac{b}{d}$;

b est un paramètre sans dimension; il représente également la concentration volumique des inclusions dans la matrice hôte ($b = b/d = bS/dS = \text{Volume de l'inclusion sur le volume de la matrice} = c$).

D'autre part, dans la limite de $\lambda \gg \xi$, où λ est la longueur d'onde de l'onde électromagnétique et ξ l'échelle typique des inhomogénéités, l'onde ne peut résoudre les centres de dispersion individuels. Dans cette approximation quasi-statique, le matériau apparaît comme homogène

vis-à-vis de l'onde d'essais et il peut être caractérisé par sa permittivité effective [1]. Ainsi, en prenant le modèle équivalent série, il vient

$$Z_e = R_e - j \frac{1}{C_e \omega} = r_e \frac{d}{S} - j \frac{1}{\omega e_e} \frac{d}{S} = \left(\frac{d}{S} \right) \left(r_e - j \frac{1}{\omega e_e} \right) \quad (\text{III.8})$$

$$\text{avec } R_e = r_e \frac{d}{S} \quad \text{and} \quad C_e = e_e \frac{S}{d}$$

r_e et e_e sont la résistivité et la permittivité de l'hétérostructure homogénéisée.

Ainsi

$$Z_e = \left(\frac{d}{S} \right) \left(r_e - j \frac{1}{\omega e_e} \right) \quad (\text{III.9})$$

En identifiant les parties réelles et imaginaires dans les équations (III.7) et (III.9), nous obtenons les lois de mélanges

$$r_e = r_m (1 - b) + r_i b \quad (\text{III.10})$$

où

$$\frac{1}{s_e} = \frac{1}{s_i s_m} [s_i (1 - b) + s_m b] \quad (\text{III.11})$$

(s_e , s_m et s_i sont les conductivités de l'hétérostructure homogénéisée, le matériau hôte et l'inclusion respectivement)

et

$$\frac{1}{e_e} = \frac{1}{e_i e_m} [e_i (1 - b) + e_m b] \quad (\text{III.12})$$

où

$$e_e = \frac{e_i e_m}{e_i (1 - b) + e_m b} \quad (\text{III.13})$$

Les équations (III.10) et (III.13) représentent les lois de mélange. Ces équations générales peuvent être appliquées à différents cas particuliers comme indiqué dans le tableau 1.

Table 1. Lois de mélange pour différentes structures sandwich

| Type de structure Sandwich | Lois de mélange |
|---|---|
| diélectrique avec pertes dans un diélectrique avec pertes | $r_e = r_m(1-b) + r_i b$ $e_e = \frac{e_i e_m}{e_i(1-b) + e_m b}$ |
| conducteur - conducteur - conducteur | $r_e = r_m(1-b) + r_i b$ |
| diélectrique – diélectrique - diélectrique | $e_e = \frac{e_i e_m}{e_i(1-b) + e_m b}$ |
| diélectrique – conducteur - diélectrique | $r_e = r_i b$ $e_e = \frac{e_m}{(1-b)}$ |
| conducteur – diélectrique - conducteur | $r_e = r_m(1-b)$ $e_e = e_i$ |
| diélectrique sans pertes dans un diélectrique avec pertes | $r_e = r_m(1-b)$ $e_e = \frac{e_i e_m}{e_i(1-b) + e_m b}$ |
| diélectrique avec pertes dans un diélectrique sans pertes | $r_e = r_i b$ $e_e = \frac{e_i e_m}{e_i(1-b) + e_m b}$ |
| conducteur dans un diélectrique avec pertes | $r_e = r_m(1-b) + r_i b$ $e_e = \frac{e_m}{(1-b)}$ |
| diélectrique avec pertes dans un conducteur | $r_e = r_m(1-b) + r_i b$ $e_e = \frac{e_i}{b}$ |

Notons que de la même manière, on peut calculer l'impédance équivalente ainsi que la permittivité et la résistivité effective d'une hétérostructure donnée en utilisant le circuit équivalent parallèle pour représenter chaque constituant. Dans ce cas, nous utilisons les relations de $Z_{1m,p}$, $Z_{2m,p}$, $Z_{i,p}$ et $Z_{e,p}$

$$Z_{1m,p} = \left[\frac{R_{1m,p}}{1 - (R_{1m,p} C_{1m,p} W)^2} \right] + j \left[\frac{-R_{1m,p}^2 C_{1m,p} W}{1 - (R_{1m,p} C_{1m,p} W)^2} \right] = R_{1m,p} + jX_{1m,p} \quad (\text{III.14})$$

$$Z_{2m,p} = \left[\frac{R_{2m,p}}{1 - (R_{2m,p} C_{2m,p} W)^2} \right] + j \left[\frac{-R_{2m,p}^2 C_{2m,p} W}{1 - (R_{2m,p} C_{2m,p} W)^2} \right] = R_{2m,p} + jX_{2m,p} \quad (\text{III.15})$$

$$Z_{i,p} = \left[\frac{R_{i,p}}{1 - (R_{i,p} C_{i,p} W)^2} \right] + j \left[\frac{-R_{i,p}^2 C_{i,p} W}{1 - (R_{i,p} C_{i,p} W)^2} \right] = R_{i,p} + jX_{i,p} \quad (\text{III.16})$$

Nous calculons l'impédance équivalente Z_{ep} de $Z_{1m,p}$, $Z_{2m,p}$ et $Z_{i,p}$ tel que

$$Z_{e,p} = Z_{1m,p} + Z_{2m,p} + Z_{i,p} \quad (\text{III.17})$$

et nous identifions les parties réelles et imaginaires de $Z_{e,p}$ à celles de l'impédance de l'hétérostructure homogénéisée

$$Z_{e,p} = \left[\frac{R_{e,p}}{1 - (R_{e,p} C_{e,p} W)^2} \right] + j \left[\frac{-R_{e,p}^2 C_{e,p} W}{1 - (R_{e,p} C_{e,p} W)^2} \right] = R_{e,p} + jX_{e,p} \quad (\text{III.18})$$

En introduisant les relations de la résistance et de la capacité pour chaque impédance comme dans les équations (III.3), (III.4), (III.5) et (III.8), on calcule la résistivité et la permittivité de l'hétérostructure homogénéisée $r_{e,p}$ et $\epsilon_{e,p}$ respectivement.

III.4 Technique de mesure de l'impédance électrique

Les techniques de mesures utilisées pour la caractérisation des matériaux sont des méthodes de compensation. Ces méthodes utilisent des ponts dont la sensibilité dépend des hétérostructures à caractériser et du domaine de fréquences exploré pour une application donnée. La figure III.3 donne le schéma de principe de tels ponts.

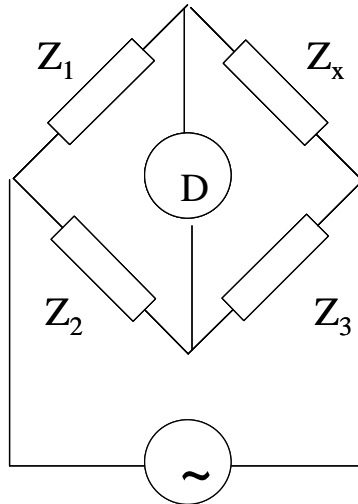


Figure III.3. Schéma de principe d'un pont

L'impédance Z_x représente la branche où est insérée l'hétérostructure. Les autres branches sont celles sur lesquelles on agit pour équilibrer le pont. Le pont sera équilibré lorsque le courant I_D traversant le détecteur D s'annule : $I_D = 0$; le détecteur (ou indicateur de zéro) peut être un galvanomètre ou un oscilloscope. A l'équilibre, on a :

$$Z_x = \frac{Z_1}{Z_2} Z_3$$

Les systèmes utilisés actuellement sont des systèmes auto-compensés (c'est à dire auto-réglables) qu'on appelle impédance-mètre. Il suffit de connecter dans la branche inconnue l'hétérostructure (ou le système) à caractériser et de choisir dans le menu les éléments désirés (R_p , C_p , R_s , C_s , $Z(j)$ où j est la phase, ...). Certains impédance-mètre fournissent les spectres de variations des différents éléments en fonction de la fréquence du

signal d'excitation. Pour des raisons de sensibilité, les impédances-mètre vendus dans le commerce sont en général destinés pour fonctionner dans une gamme de fréquences précise. Dans nos essais, nous utiliserons un impédance-mètre Hewlett Packard HP4284 A (20 Hz – 1 MHz).

Remarquons que l'impédance Z d'une hétérostructure peut être déterminée à partir de la loi d'Ohm. Z est égale au rapport de la tension appliquée U à l'hétérostructure par le courant I qui la traverse ($Z = U / I$). La tension U doit être une tension variable (alternative). Cette méthode ne permet pas de déduire les éléments série ou parallèle équivalents représentant l'hétérostructure.

III.5 Validation expérimentale des lois de mélanges

Pour valider les lois de mélange que nous avons établis dans le paragraphe III.2, nous avons considéré trois types de matériaux dont les permittivités diélectriques relatives (constantes diélectriques) sont assez différentes : la bakélite ($\epsilon = 4,3$), le plexiglas ($\epsilon = 2,1$) et l'air ($\epsilon = 1$). Ces matériaux sont de très bons diélectriques ; leurs résistivités sont très élevées. Le système de mesure est constitué de deux électrodes circulaires en cuivre de 60 mm de diamètre. Un ressort est placé sur l'électrode supérieure pour assurer un bon contact entre les électrodes et l'échantillon ; ceci permet d'éviter les capacités parasites induites par la présence d'interstices d'air aux interfaces entre l'échantillon et les électrodes. La figure III.4 donne une vue schématique du système de mesure.

La mesure de la capacité et de la résistance est effectuée avec un impédance-mètre Hewlett Packard HP4284 A (20 Hz-1 MHz) pour plusieurs fréquences. La permittivité et la résistivité effective de l'hétérostructure sont déduites par la suite. Toutes les mesures sont effectuées à température ambiante.

Les Figures III.5 et III.6 donnent les permittivités effectives mesurées et calculées pour des structures sandwich où la matrice hôte est en bakélite et l'inclusion en plexiglas ou de l'air respectivement, en fonction de la fraction volumique des inclusions. Nous remarquons un très bon accord (voire parfait) entre les valeurs expérimentales et les prédictions des lois de mélange que nous avons établies. La figure III.7 donne la variation de la permittivité effective en fonction de la fréquence pour une structure sandwich avec une matrice hôte et des inclusions en plexiglas pour une concentration $c = 0,33$. La légère différence observée à basses fréquences est due aux instabilité résultant des perturbations dans le réseau

d'alimentation de l'impédance-mètre. L'autre source d'erreurs est vraisemblablement liée au mauvais contact entre les électrodes et l'hétérostructure

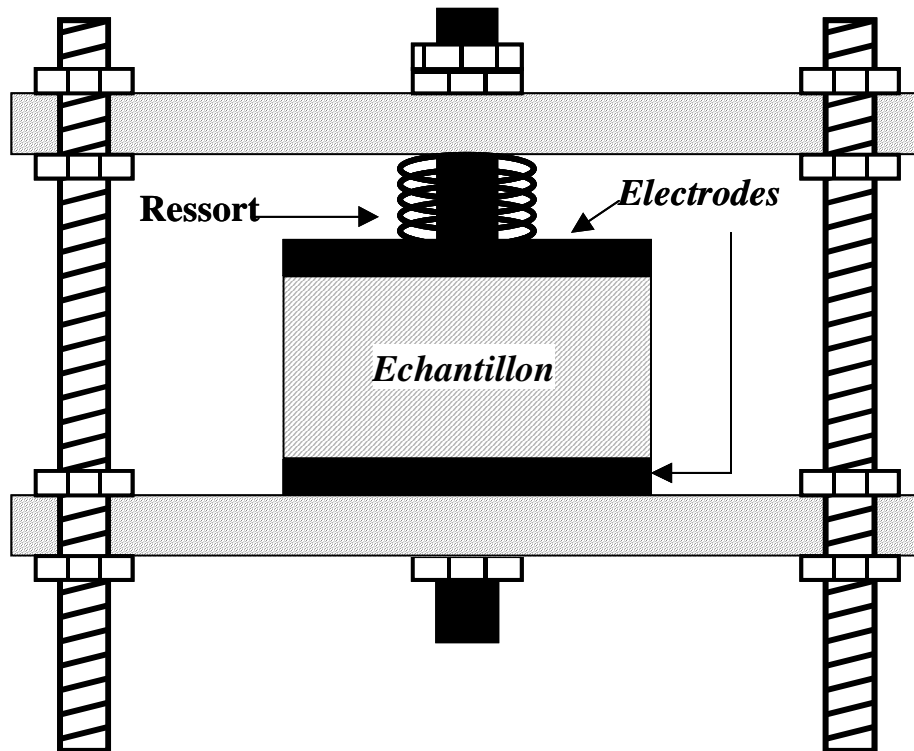


Figure III.4. Schéma du dispositif de mesure. L'échantillon est constitué d'une structure sandwich.

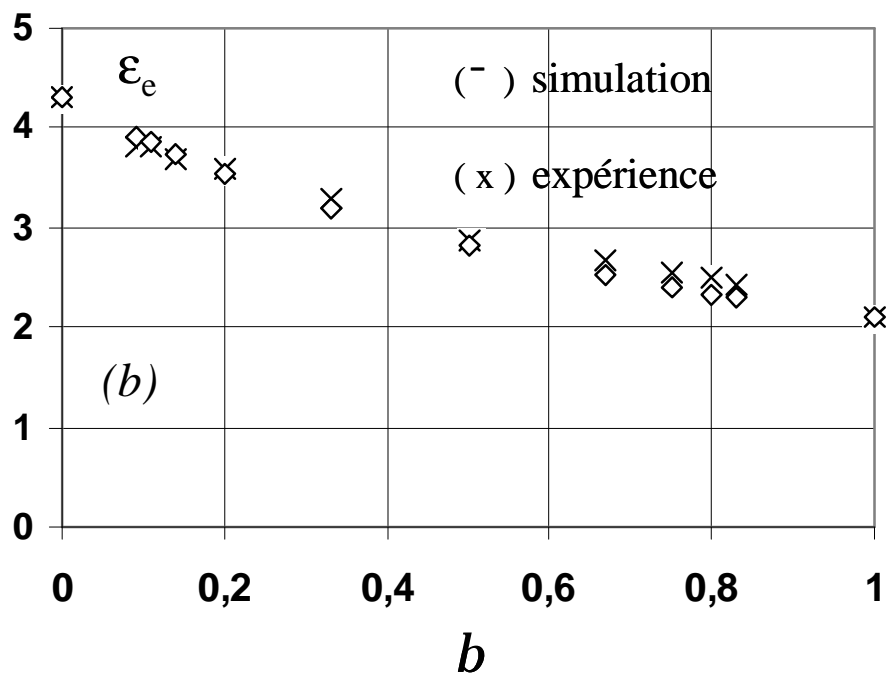
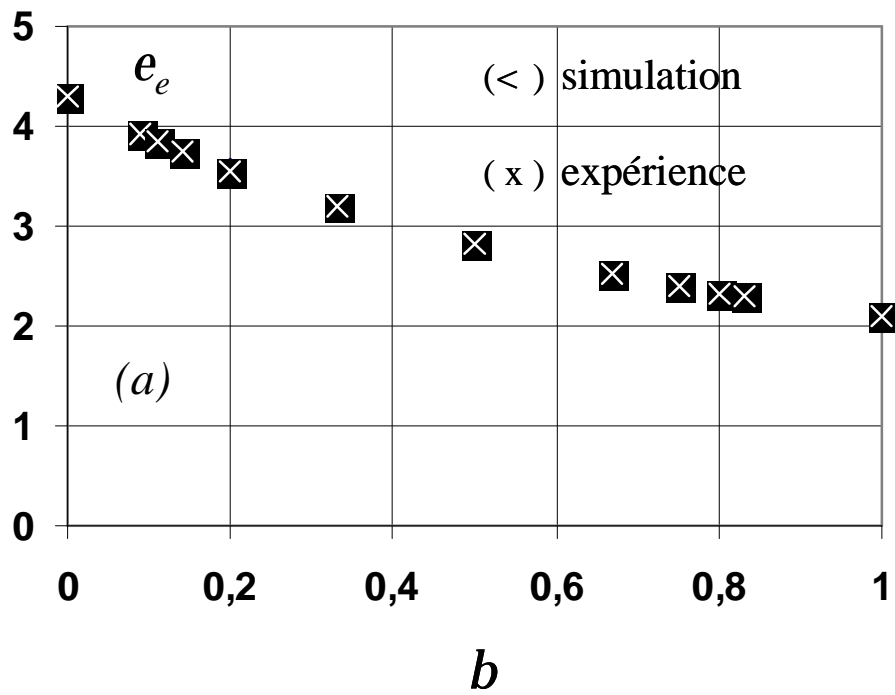


Figure III.5. Variation de la permittivité relative effective en fonction de la fraction volumique de l'inclusion dans une structure sandwich à 100 kHz (a) et à 1 MHz (b). Le matériau hôte étant de la bakélite et l'inclusion du plexiglas.

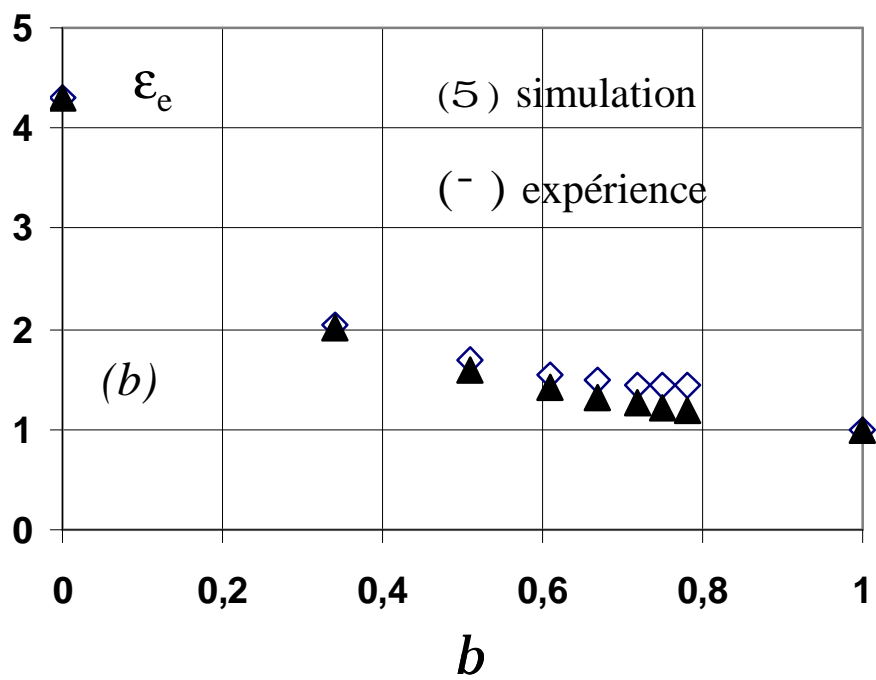
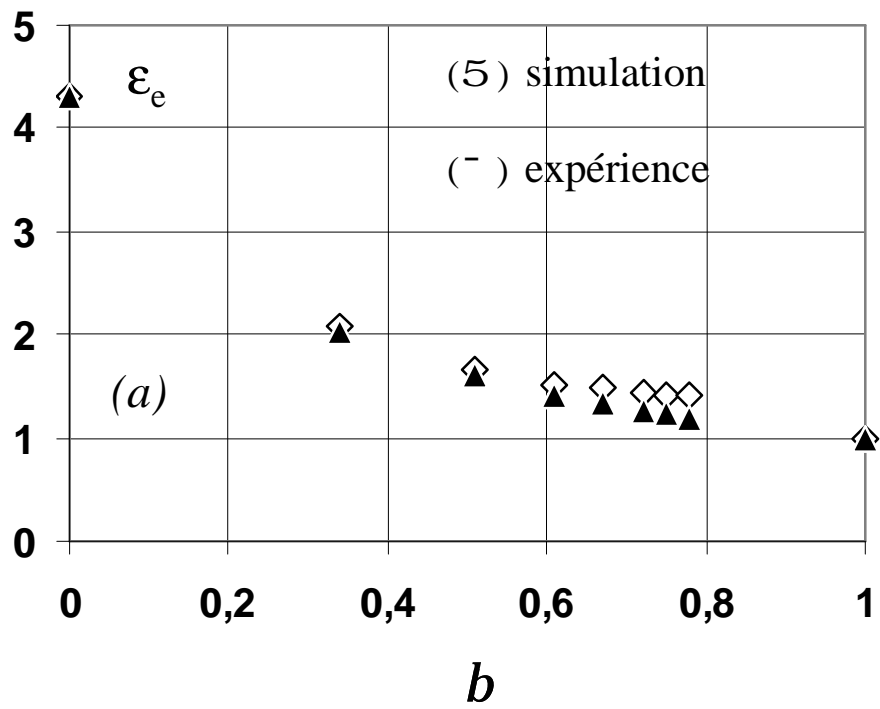


Figure III.6. Variation de la permittivité relative effective en fonction de la fraction volumique de l'inclusion dans une structure sandwich à 100 kHz (a) et à 1 MHz (b). Le matériau hôte étant de la bakélite et l'inclusion de l'air.

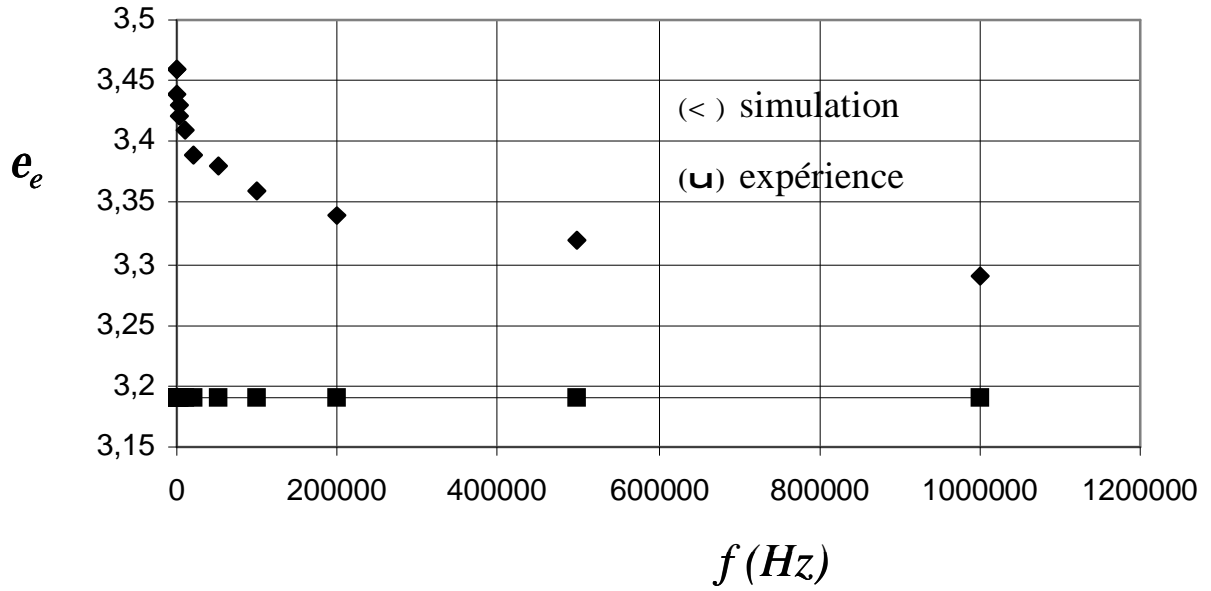


Figure III.7. Variation de la permittivité relative effective en fonction de la fréquence pour une fraction volumique de l'inclusion $b = 0,33$, dans une structure sandwich à 100 kHz. Le matériau hôte étant de la bakélite et l'inclusion du plexiglas.

III.6 Représentation d'une hétérostructure à deux phases

Différentes hétérostructures peuvent être rencontrées dans la pratique. Celles-ci sont constituées d'inclusions insérées dans une matrice hôte. L'inclusion peut être un diélectrique (trous, cavités, eau, ...) ou un conducteur (métal) et le matériau hôte peut être également un diélectrique ou un conducteur. Les inclusions peuvent être distribuées de façon aléatoire ou périodique. Dans ce travail, nous nous intéressons à des structures périodiques. Les inclusions peuvent être de différentes formes : parallélépipédique, cubique, cylindrique, sphérique, ellipsoïdale, ... La figure III.8 donne une vue schématique d'une telle configuration avec des inclusions sphériques.

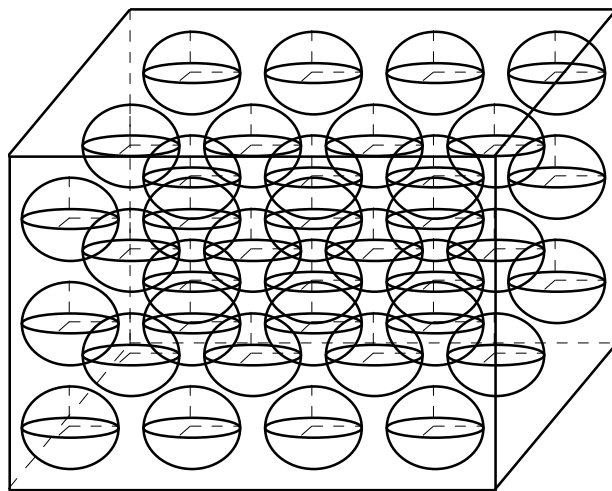


Figure III.8. Disposition périodique des inclusions sphériques dans une matrice cubique

Le composite étant périodique, l'étude de ce matériau hétérogène peut être ramenée à celle d'une cellule élémentaire constituée d'une inclusion centrée dans un cube formant la matrice hôte d'arête l (figure 9a-d).

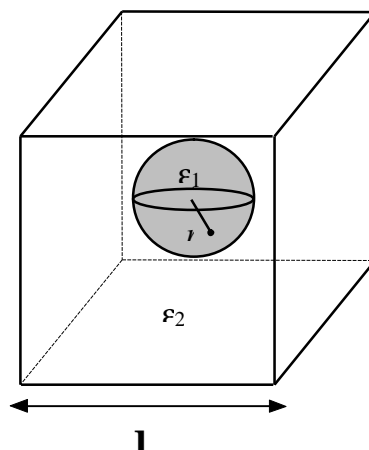


Figure III.9a. Cellule unitaire pour une inclusion sphérique et conditions aux limites

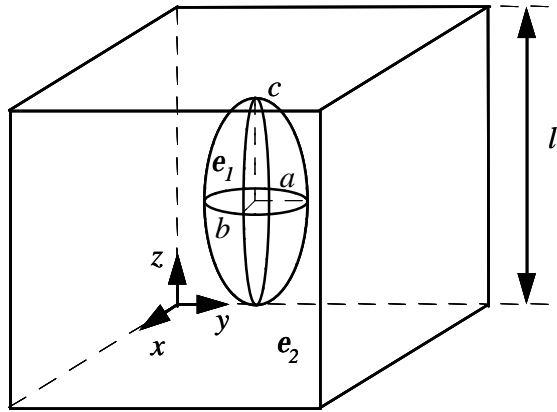


Figure III.9c. Cellule unité pour une inclusion ellipsoïdale

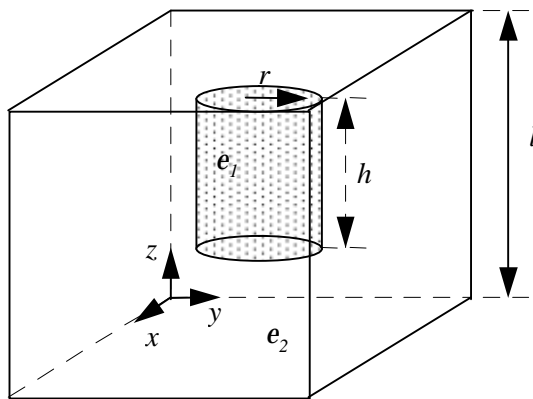


Figure III.9b. Cellule unité pour une inclusion cylindrique

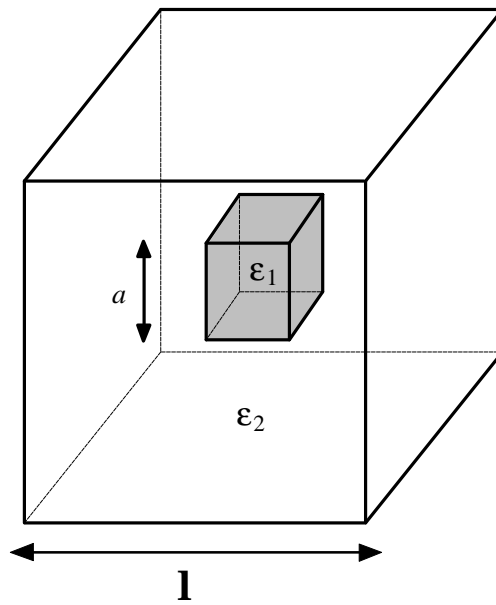
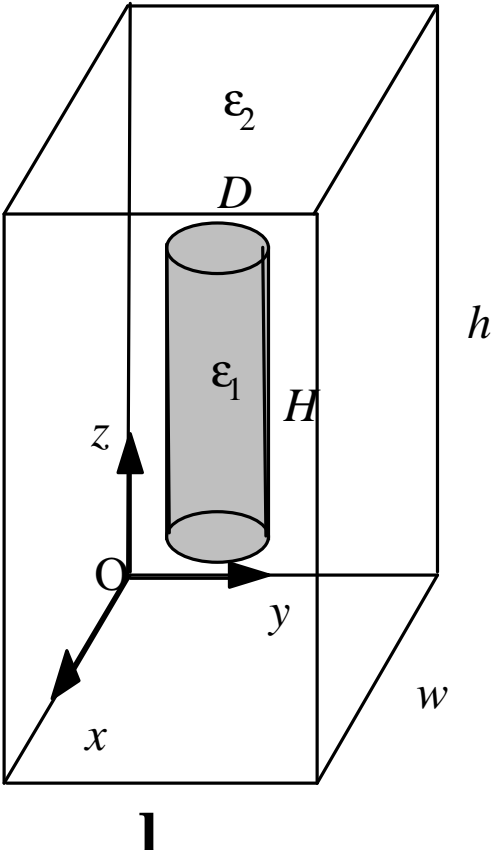
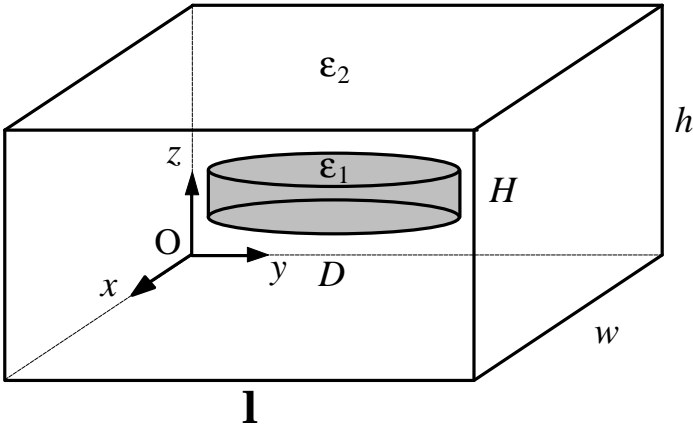


Figure III.9d. Cellule unité pour une inclusion cubique

Les inclusions cylindriques peuvent être assimilées à des disques ($r \gg h$) ou à des barreaux ($r \ll h$) (Figure III.10).



(a)



(b)

Figure III.10. Cellule unité avec inclusion en forme de barre (a) et en forme de disque (b)

La méthode de l'impédance équivalente consiste à représenter chaque constituant du matériau (matériau hôte et inclusions) par une impédance (Figure III.11), elle même constituée d'une capacité en série ou en parallèle avec une résistance (Figures III.12 et III.13). Les éléments (R_i, C_i) représente l'inclusion et les autres éléments (R_{m1}, C_{m1}) , (R_{m2}, C_{m2}) , (R_{m3}, C_{m3}) , représentent le matériau hôte.

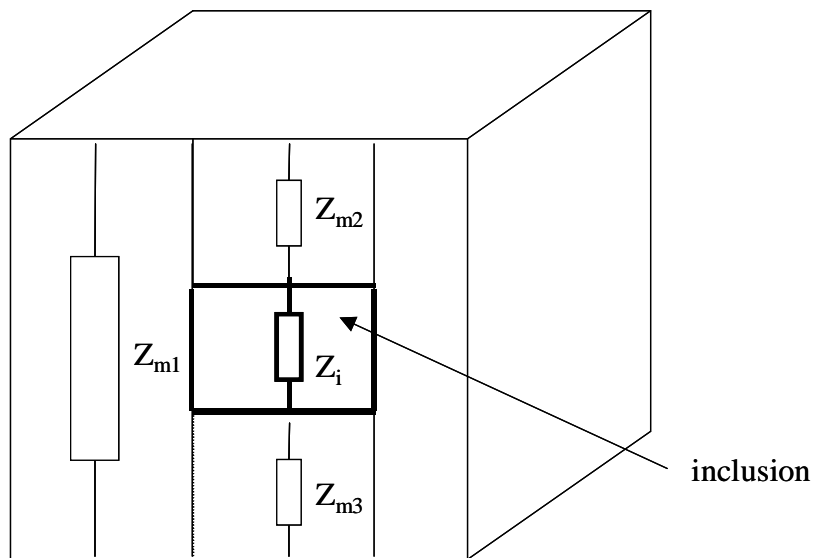


Figure III.11. Représentation par des impédances

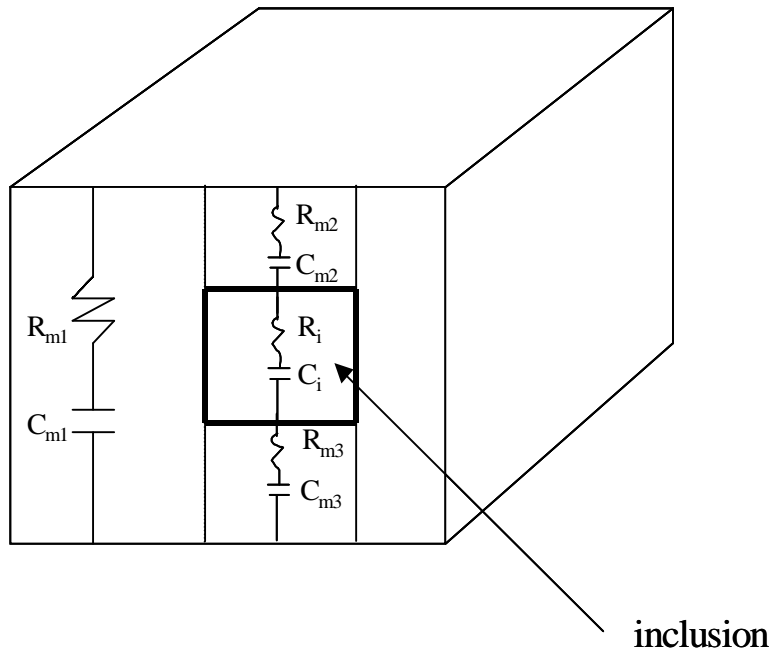


Figure III.12. Représentation série

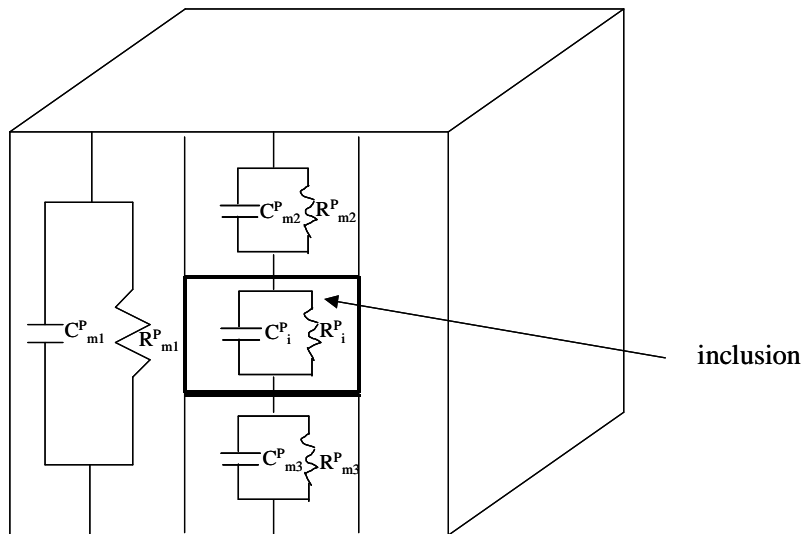


Figure III.13. Représentation parallèle

III.7 Procédure de détermination de l'impédance équivalente

Pour déterminer l'impédance équivalente de la cellule unitaire, on détermine l'impédance Z_c de la partie centrale contenant l'inclusion, elle même en parallèle avec

l'impédance Z_{m1} représentant le reste du matériau (cellule sans la partie centrale). Z_c est constituée de trois impédances en série :

$$Z_c = Z_i + Z_{m2} + Z_{m3} \quad (\text{III.19})$$

Comme l'impédance Z_c est en parallèle avec l'impédance Z_{m1} , l'impédance équivalente de la cellule Z_e (c'est à dire l'impédance totale) sera donnée par la relation :

$$\frac{1}{Z_e} = \frac{1}{Z_c} + \frac{1}{Z_{m1}} \quad (\text{III.20})$$

d'où

$$Z_e = \frac{Z_c Z_{m1}}{Z_c + Z_{m1}} \quad (\text{III.21})$$

En identifiant l'expression de Z_e ainsi calculée à l'impédance du matériau homogénéisé, on en déduit les lois de mélanges. Et selon la représentation, série ou parallèle, on remplacera les différentes impédances (Z_c et Z_{m1}) par les expressions correspondantes.

La partie centrale contenant l'inclusion constitue le canal central. Si l'inclusion occupe entièrement le canal central, on aura un composite avec des tubes (vides ou remplis d'un autre matériau). La figure III.14 illustre le cas d'une cellule unitaire avec une inclusion parallélépipédique qui sera traité plus loin (voir paragraphe Application).

La détermination de l'impédance équivalente par des calculs analytiques n'est pas évidente. En effet, lorsque les inclusions sont de formes complexes (sphères, ellipsoïdes, ...), il est difficile de déterminer leur capacité et leur résistance et donc de déduire l'impédance équivalente de la cellule unitaire et du matériau. Dans de tels cas, l'hétérostructure ne peut être caractérisé par des lois de mélanges. Pour se faire, on fait appel à des méthodes numériques que l'on développera dans le prochain chapitre. Dans ce chapitre, nous nous intéressons à des formes d'inclusions typiques : cube, cylindre, ...

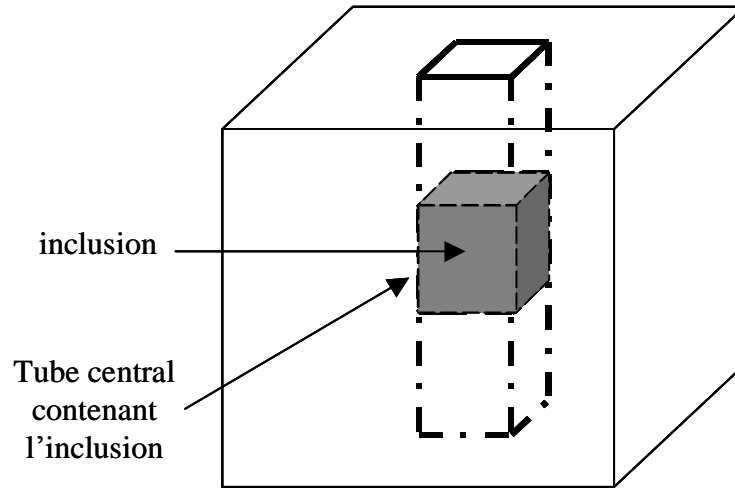


Figure III.14. Cellule unitaire avec une inclusion cubique dans le canal central

III.8 Application : Hétérostructure avec inclusions longues distribuées périodiquement

Dans ce qui suit, nous utilisons les relations établies auparavant pour déterminer l'impédance équivalente des hétérostructures dont nous en déduisons les lois de mélanges. Les hétérostructures traitées sont de forme parallélépipédique où les inclusions sont des tubes de section carré. Nous supposons que les hétérostructures sont divisées en cellules unitaires, les inclusions ayant la même longueur que le matériau hôte (Figure III.15).

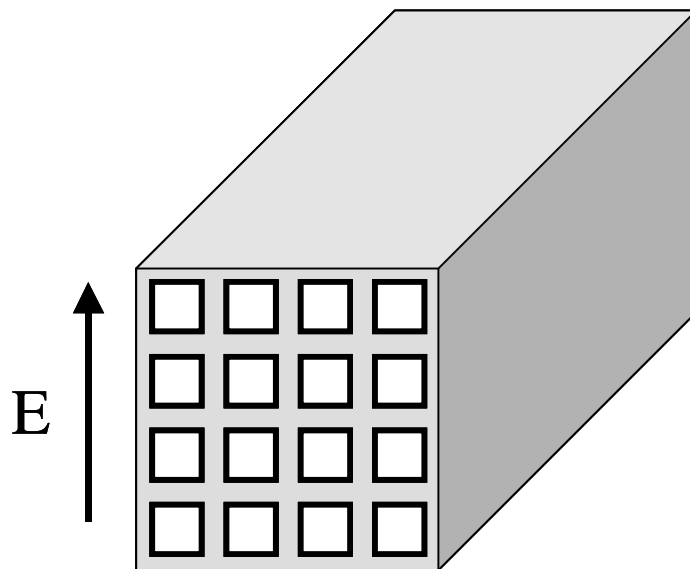


Figure III.15. Géométrie d'un échantillon de l'hétérostructure avec un champ électrique perpendiculaire à la section efficace des inclusions.

Ce problème est invariant en échelle, c'est à dire que le système peut être réduit ou dilaté uniformément, la permittivité effective ne change pas [2]. Par conséquent, l'étude peut être réduite à celle d'une cellule unitaire (Figure III.16).

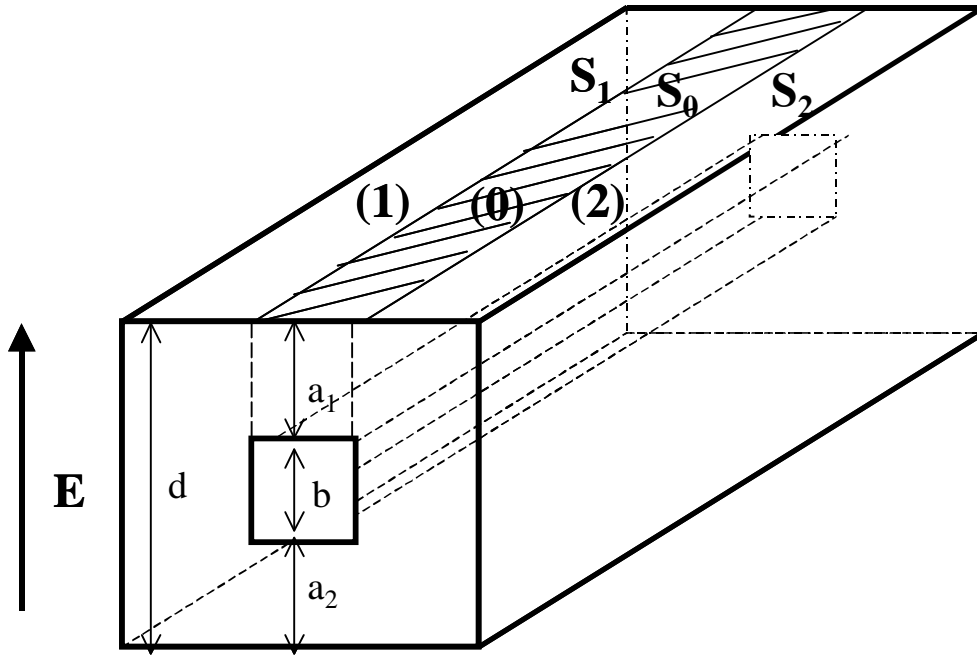


Figure III.16. Schéma d'une cellule unitaire d'une hétérostructure tridimensionnelle périodique à deux constituants étudiée dans nos calculs. L'inclusion isolée est périodiquement située dans une structure parallélépipédique.

Ainsi, d'après la Figure III.16, on peut subdiviser la cellule unitaire en trois régions : la région (0) contenant l'inclusion, et les régions (1) et (2) contenant uniquement le matériau hôte. Soient S_1 et S_2 les sections des régions (1) et (2) respectivement, et S_0 celle de la région centrale (0); et Z_{S1m} , Z_{S2m} et Z_0 les impédances des régions (1), (2) et (0) respectivement. Ces trois impédances sont en parallèle. L'impédance équivalente de la cellule unitaire $Z_{e,c}$ sera donc

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{1}{Z_{S1m}} + \frac{1}{Z_{S2m}} + \frac{1}{Z_0} \quad (\text{III.22})$$

Les valeurs de ces impédances dépendent de la nature et de la géométrie de chaque constituant de l'hétérostructure. Dans ce qui suit, considérons spécifiquement des hétérostructures dans lesquelles les inclusions sont des trous ou des conducteurs distribués périodiquement.

III.8.1 Hétérostructure avec trous

Le matériau hôte d'une telle hétérostructure peut être un diélectrique parfait ou non (c'est à dire avec ou sans pertes).

III.8.1.1 Matériau hôte diélectrique sans pertes

Le matériau hôte étant un diélectrique sans pertes, les impédances pour les deux régions (1) et (2) seront donc (voir paragraphe III.3) :

$$Z_{S1m} = \frac{1}{jC_{S1m}w} \quad \text{avec} \quad C_{S1m} = e_m \frac{S_1}{d} \quad (\text{III.23})$$

et

$$Z_{S2m} = \frac{1}{jC_{S2m}w} \quad \text{avec} \quad C_{S2m} = e_m \frac{S_1}{d} \quad (\text{III.24})$$

La région centrale (0) est un sandwich. Par conséquent, pour calculer l'impédance Z_0 de la région (0), on peut utiliser la relation établie dans le paragraphe III.3.

$$Z_0 = \left(\frac{d}{S_0} \right) \left\{ -j \frac{1}{we_i e_m} [e_i(1-b) + e_m b] \right\} \quad (\text{III.25})$$

Par substitution des équations (III.23), (III.24) et (III.25) dans l'équation (III.19), il vient

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = jw \left\{ e_m \left(\frac{S_1 + S_2}{d} \right) + \left(\frac{e_i e_m}{e_i(1-b) + e_m b} \right) \left(\frac{S_0}{d} \right) \right\} \quad (\text{III.26})$$

D'autre part, l'impédance équivalente de l'hétérostructure homogénéisé est

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = jC_{e,c}w = jwe_{e,c} \frac{S}{d} \quad (\text{III.27})$$

où $S = S_0 + S_1 + S_2$

$e_{e,c}$ est la constante diélectrique de l'hétérostructure homogénéisé.

Ainsi, les équations (III.26) et (III.27) donnent les lois de mélanges suivantes :

$$e_{e,c} = e_m \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) + \left(\frac{e_i e_m}{e_i(1-b) + e_m b} \right) \left(\frac{S_0}{S} \right) \quad (\text{III.28})$$

or

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) + \left(\frac{e_i}{e_i(1-b) + e_m b} \right) \left(\frac{c}{b} \right) \right\} \quad (\text{III.29})$$

où c est la concentration volumique des inclusions

$$c = b \frac{S_0}{S} \quad (\text{III.30})$$

La constante diélectrique des trous (cavités) est égale à l'unité. Par conséquent, l'équation (III.29) devient

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) + \left(\frac{1}{(1-b) + e_m b} \right) \left(\frac{c}{b} \right) \right\} \quad (\text{III.31})$$

III.8.1.2 Matériau hôte diélectrique avec pertes

Dans ce cas, les régions (1) et (2) seront représentées respectivement par les impédances Z_{S1m} et Z_{S2m} tel que

$$Z_{S1m} = R_{S1m} + \frac{1}{jC_{S1m}\omega} = r_m \frac{d}{S_1} + \frac{1}{j\omega e_m S_1} \quad (\text{III.32})$$

$$Z_{S2m} = R_{S2m} + \frac{1}{jC_{S2m}\omega} = r_m \frac{d}{S_2} + \frac{1}{j\omega e_m S_2} \quad (\text{III.33})$$

et d'après les relations établies dans le paragraphe III.3,

$$Z_0 = \left(\frac{d}{S_0} \right) \left\{ r_m(1-b) + \frac{1}{j\omega e_m e_i} [e_i(1-b) + e_m b] \right\} \quad (\text{III.34})$$

Ainsi, l'impédance équivalente de la cellule unitaire sera

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{S_1}{d} \left(\frac{j\omega e_m}{1 + j\omega e_m r_m} \right) + \frac{S_2}{d} \left(\frac{j\omega e_m}{1 + j\omega e_m r_m} \right) + \frac{S_0}{d} \left\{ \frac{j\omega e_m e_i}{[e_i(1-b) + e_m b] + j\omega e_m e_i r_m (1-b)} \right\}$$

(III.35)

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{S}{d} \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{jwe_m}{1 + jwe_m r_m} \right) + \frac{S_0}{S} \left[\frac{jwe_m e_i}{[e_i(1-b) + e_m b] + jwe_m e_i r_m (1-b)} \right] \right\} \quad (\text{III.36})$$

En prenant le circuit équivalent parallèle pour représenter la cellule unitaire homogénéisée, il vient

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{1}{R_{e,c}} + jwC_{e,c} \quad (\text{III.37})$$

$$\text{où } R_{e,c} = r_{e,c} \frac{d}{S} \quad \text{et} \quad C_{e,c} = e_{e,c} \frac{S}{d}$$

et par identification des équations (III.36) et (III.37), nous déduisons les lois de mélanges

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{(we_m r_m)^2}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{S_0}{S} \left[\frac{(we_m e_i r_m)^2 (1-b)}{[e_i(1-b) + e_m b]^2 + (we_m e_i r_m)^2 (1-b)^2} \right] \right\} \quad (\text{III.38})$$

et

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{1}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{S_0}{S} \left[\frac{e_i [e_i(1-b) + e_m b]}{[e_i(1-b) + e_m b]^2 + (we_m e_i r_m)^2 (1-b)^2} \right] \right\} \quad (\text{III.39})$$

ou en introduisant la concentration volumique

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) \left(\frac{(we_m r_m)^2}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{c}{b} \left[\frac{(we_m e_i r_m)^2 (1-b)}{[e_i(1-b) + e_m b]^2 + (we_m e_i r_m)^2 (1-b)^2} \right] \right\} \quad (\text{III.40})$$

et

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) \left(\frac{1}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{c}{b} \left[\frac{e_i [e_i(1-b) + e_m b]}{[e_i(1-b) + e_m b]^2 + (we_m e_i r_m)^2 (1-b)^2} \right] \right\} \quad (\text{III.41})$$

Le terme ($w e_m r_m$) représente le facteur de pertes diélectriques $\tan \delta$ ($\tan \delta = w e_i r$) du matériau. Si ce terme est beaucoup plus petit que 1 ($w e_m r_m \ll 1$), l'équation (III.41) sera réduite à l'équation (III.29). D'autre part, si les sections efficaces du matériau hôte et des inclusions sont carrées le rapport (c/b) sera égal à b . Par suite, l'équation (III.29) devient

$$e_{e,c} = e_m \left\{ (1 - b) + \left(\frac{e_i b}{e_i (1 - b) + e_m b} \right) \right\} \quad (\text{III.42})$$

Cette relation peut être utilisée pour déterminer la permittivité effective $e_{e,c}$ d'une hétérostructure donnée en fonction de la concentration volumique des inclusions, connaissant les constantes diélectriques des deux constituants. En général les constantes diélectriques des matériaux varient entre 3 et 9. La constante diélectrique de l'air (trous) est égale à 1. La figure III.17 donne la variation de $e_{e,c}$ pour trois valeurs de la permittivité relative (ou constante diélectrique) pour des matériaux hôtes ($e_m = 4, 6$ et 8), les inclusions étant des cavités d'air. De telles caractéristiques peuvent être également utilisées pour calculer la concentration globale des inclusions connaissant le permittivité effective de l'hétérostructure et des constantes diélectriques des deux constituants.

La Figure III.18 donne la variation de la permittivité effective d'hétérostructures dans lesquelles les cavités sont remplies d'eau. On peut faire les mêmes remarques qu'avec les cavités d'air.

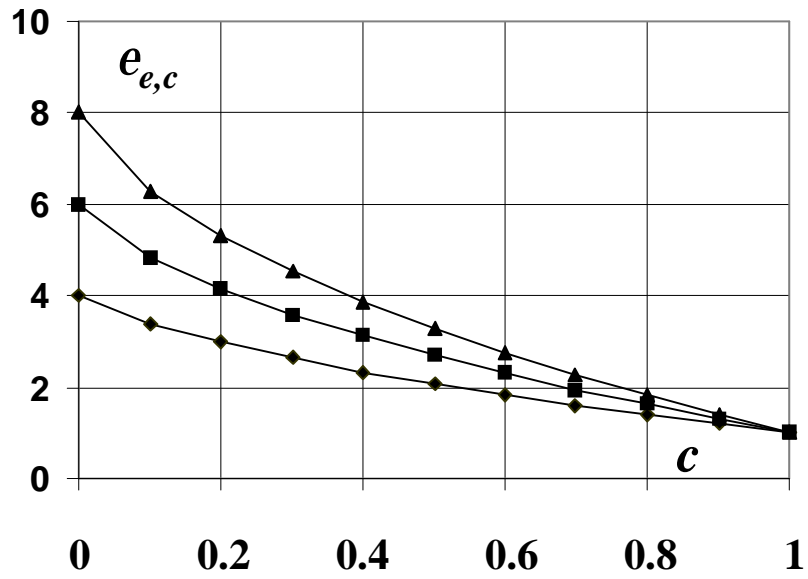


Figure III.17. Permittivité relative effective calculée en fonction de la fraction volumique des trous pour différentes valeurs de la constante diélectrique du matériau hôte : (□) $\epsilon_m=4$, (△) $\epsilon_m=6$ and (◇) $\epsilon_m=8$.

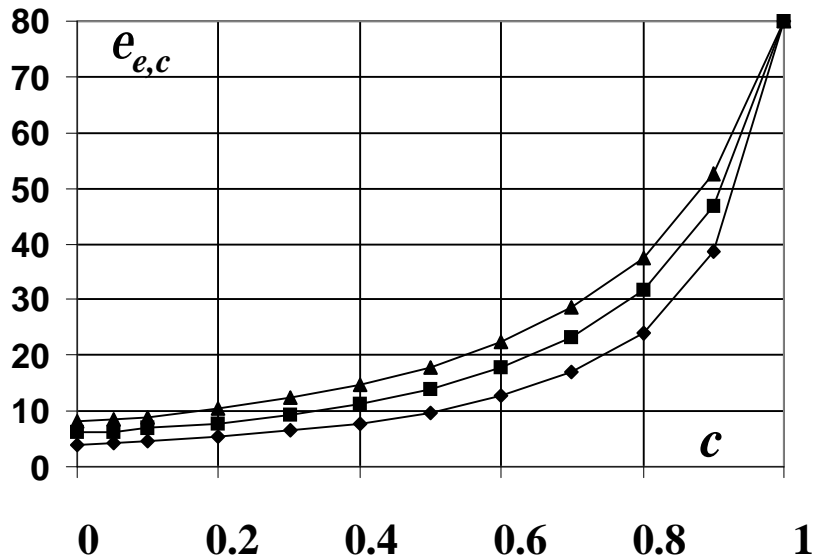


Figure III.18. Permittivité relative effective calculée en fonction de la fraction volumique de l'eau dé-ionisée pour différentes valeurs de la constante diélectrique du matériau hôte : (◇) $\epsilon_m=4$, (△) $\epsilon_m=6$ and (□) $\epsilon_m=8$.

III.8.1.3 Matériau hôte conducteur

Dans ce cas, les régions (1) et (2) seront représentées par deux résistances

$$Z_{S1m} = R_{S1m} = r_m \frac{d}{S_1} \quad (\text{III.43})$$

$$Z_{S2m} = R_{S2m} = r_m \frac{d}{S_2} \quad (\text{III.44})$$

et d'après les relations établies dans le paragraphe III.3,

$$Z_0 = r_m \left(\frac{d-b}{S_0} \right) + \frac{1}{j\omega \epsilon_i} \frac{b}{S_0} \quad (\text{III.45})$$

L'impédance équivalente de la cellule unitaire sera donc

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \frac{S_1}{d} + \frac{1}{r_m} \frac{S_2}{d} + \left\{ \frac{j\omega \epsilon_i}{[j\omega \epsilon_i r_m (1-b) + b]} \right\} \frac{S_0}{d} \quad (\text{III.46})$$

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left(\frac{S}{d} \right) \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) + \left[\frac{(1-b)(\omega \epsilon_i r_m)^2 + j\omega \epsilon_i r_m b}{b^2 + (1-b)^2 (\omega \epsilon_i r_m)^2} \right] \left(\frac{S_0}{S} \right) \right\} \quad (\text{III.47})$$

En prenant le circuit équivalent série pour représenter la cellule unitaire homogénéisé, il vient

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{1}{R_{e,c}} + j\omega C_{e,c} \quad (\text{III.48})$$

$$\text{où } R_{e,c} = r_{e,c} \frac{d}{S} \quad \text{et} \quad C_{e,c} = e_{e,c} \frac{S}{d}$$

En identifiant les équations (III.47) et (III.48), on obtient les lois de mélanges correspondantes

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) + \left[\frac{(1-b)(\omega \epsilon_i r_m)^2}{b^2 + (1-b)^2 (\omega \epsilon_i r_m)^2} \right] \left(\frac{S_0}{S} \right) \right\} \quad (\text{III.49})$$

et

$$e_{e,c} = e_i \left[\frac{b}{b^2 + (1-b)^2 (\omega \epsilon_i r_m)^2} \right] \left(\frac{S_0}{S} \right) \quad (\text{III.50})$$

ou encore en introduisant la concentration volumique c

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) + \left[\frac{(1-b)(we_i r_m)^2}{b^2 + (1-b)^2 (we_i r_m)^2} \right] \left(\frac{c}{b} \right) \right\} \quad (\text{III.51})$$

et

$$e_{e,c} = e_i \left[\frac{b}{b^2 + (1-b)^2 (we_i r_m)^2} \right] \left(\frac{c}{b} \right) \quad (\text{III.52})$$

De la même manière, on peut tracer la variation des permittivités et conductivités effectives des hétérostructures. Les valeurs de ces paramètres sont également fonction de la fréquence du champ électrique équivalent. Ceci rappelle une autre méthode non destructive : la méthode T.D.R. [3 - 5].

III.8.1.4 Matériau hôte et inclusions diélectriques avec pertes

Comme dans le paragraphe III.8.1.2, les régions (1) et (2) seront représentées respectivement par les impédances Z_{S1m} et Z_{S2m} tels que

$$Z_{S1m} = R_{S1m} + \frac{1}{jC_{S1m}w} = r_m \frac{d}{S_1} + \frac{1}{jwe_m} \frac{d}{S_1} \quad (\text{III.53})$$

$$Z_{S2m} = R_{S2m} + \frac{1}{jC_{S2m}w} = r_m \frac{d}{S_2} + \frac{1}{jwe_m} \frac{d}{S_2} \quad (\text{III.54})$$

et d'après les relations établies dans le paragraphe 2,

$$Z_0 = \left(\frac{d}{S_0} \right) \left\{ [r_m (1-b + r_i b)] + \frac{1}{jwe_m e_i} [e_i (1-b) + e_m b] \right\} \quad (\text{III.55})$$

d'où l'impédance équivalente de la cellule unitaire

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{S_1}{d} \left(\frac{jwe_m}{1 + jwe_m r_m} \right) + \frac{S_2}{d} \left(\frac{jwe_m}{1 + jwe_m r_m} \right) + \frac{S_0}{d} \left\{ \frac{jwe_m e_i}{[e_i (1-b) + e_m b] + jwe_m e_i [r_m (1-b) + r_i b]} \right\} \quad (\text{III.56})$$

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{S}{d} \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{jwe_m}{1 + jwe_m r_m} \right) + \frac{S_0}{S} \left[\frac{jwe_m e_i}{[e_i(1-b) + e_m b] + jwe_m e_i [r_m(1-b) + r_i b]} \right] \right\} \quad (\text{III.57})$$

En prenant le circuit équivalent parallèle pour représenter la cellule unitaire homogénéisée, il vient

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{1}{R_{e,c}} + jwC_{e,c} \quad (\text{III.58})$$

$$\text{où } R_{e,c} = r_{e,c} \frac{d}{S} \quad \text{et} \quad C_{e,c} = e_{e,c} \frac{S}{d}$$

et en identifiant les équations (III.57) et (III.58), on déduit les lois de mélange

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{(we_m r_m)^2}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{S_0}{S} \left[\frac{(we_m e_i)^2 [r_m(1-b) + r_i b]}{[e_i(1-b) + e_m b]^2 + (we_m e_i)^2 [r_m(1-b) + r_i b]^2} \right] \right\} \quad (\text{III.59})$$

et

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{1}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{S_0}{S} \left[\frac{e_i [e_i(1-b) + e_m b]}{[e_i(1-b) + e_m b]^2 + (we_m e_i)^2 [r_m(1-b) + r_i b]^2} \right] \right\} \quad (\text{III.60})$$

ou encore en introduisant la concentration volumique

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) \left(\frac{(we_m r_m)^2}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{c}{b} \left[\frac{(we_m e_i)^2 [r_m(1-b) + r_i b]}{[e_i(1-b) + e_m b]^2 + (we_m e_i)^2 [r_m(1-b) + r_i b]^2} \right] \right\} \quad (\text{III.61})$$

et

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) \left(\frac{1}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{c}{b} \left[\frac{e_i [e_i (1-b) + e_m b]}{[e_i (1-b) + e_m b]^2 + (we_m e_i)^2 [r_m (1-b) + r_i b]^2} \right] \right\} \quad (\text{III.62})$$

III.8.2 Hétérostructure avec des conducteurs comme inclusions

Une telle hétérostructure peut représenter un pylône par exemple. Le matériau hôte peut être un diélectrique parfait ou non (c'est à dire avec ou sans pertes).

III.8.2.1 Matériau hôte diélectrique sans pertes

Le matériau hôte étant un diélectrique sans pertes, les impédances pour les deux régions (1) et (2) (voir Figure III.16) seront, d'après le paragraphe 2 :

$$Z_{S1m} = \frac{1}{jC_{S1m} \omega} \quad \text{avec} \quad C_{S1m} = e_m \frac{S_1}{d} \quad (\text{III.63})$$

et

$$Z_{S2m} = \frac{1}{jC_{S2m} \omega} \quad \text{avec} \quad C_{S2m} = e_m \frac{S_1}{d} \quad (\text{III.64})$$

De la même façon que dans le paragraphe 2, l'impédance de la région (0) qui est une structure sandwich est

$$Z_0 = \frac{d}{S_0} \left[r_i b + \frac{1}{jwe_m} (1-b) \right] \quad (\text{III.65})$$

L'impédance équivalente de la cellule unitaire sera donc

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = jwe_m \frac{S_1}{d} + jwe_m \frac{S_2}{d} + \left[\frac{jwe_m}{(1-b) + jwe_m r_i b} \right] \frac{S_0}{d} \quad (\text{III.66})$$

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = jwe_m \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \frac{S}{d} + \left[\frac{jwe_m}{(1-b) + jwe_m r_i b} \right] \frac{S_0}{S} \left(\frac{S}{d} \right) \quad (\text{III.67})$$

En prenant le circuit équivalent parallèle pour représenter la cellule unitaire homogénéisée, il vient

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{1}{R_{e,c}} + j\omega C_{e,c} \quad (\text{III.68})$$

$$\text{où } R_{e,c} = r_{e,c} \frac{d}{S} \quad \text{et} \quad C_{e,c} = e_{e,c} \frac{S}{d}$$

et en identifiant les équations (III.67) et (III.68), on obtient les lois de mélanges correspondantes

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_i} \left[\frac{(we_m r_i)^2 b}{(1-b)^2 + (we_m r_i b)^2} \right] \frac{S_0}{S} \quad (\text{III.69})$$

et

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) + \left[\frac{(1-b)}{(1-b)^2 + (we_m r_i b)^2} \right] \frac{S_0}{S} \right\} \quad (\text{III.70})$$

ou encore en introduisant la concentration volumique

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_i} \left[\frac{(we_m r_i)^2 b}{(1-b)^2 + (we_m r_i b)^2} \right] \frac{c}{b} \quad (\text{III.71})$$

et

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) + \left[\frac{(1-b)}{(1-b)^2 + (we_m r_i b)^2} \right] \frac{c}{b} \right\} \quad (\text{III.72})$$

III.8.2.2 Matériau hôte diélectrique avec pertes

Dans ce cas, les régions (1) et (2) seront représentées respectivement par les impédances Z_{S1m} et Z_{S2m} , chacune constituée d'une résistance en série (ou en parallèle) avec une capacité

$$Z_{S1m} = R_{S1m} + \frac{1}{jC_{S1m}\omega} = r_m \frac{d}{S_1} + \frac{1}{jwe_m S_1} \frac{d}{S_1} \quad (\text{III.73})$$

$$Z_{S2m} = R_{S2m} + \frac{1}{jC_{S2m}\omega} = r_m \frac{d}{S_2} + \frac{1}{j\omega e_m S_2} \quad (\text{III.74})$$

et d'après les relations établies dans le paragraphe III.3, l'impédance de la région (0) est

$$Z_0 = \frac{d}{S_0} \left\{ [r_m(1-b) + r_i b] + \frac{1}{j\omega e_m} (1-b) \right\} \quad (\text{III.75})$$

et comme Z_{S1m} , Z_{S2m} et Z_0 sont en parallèle, l'impédance équivalente sera

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{S_1}{d} \left(\frac{j\omega e_m}{1 + j\omega e_m r_m} \right) + \frac{S_2}{d} \left(\frac{j\omega e_m}{1 + j\omega e_m r_m} \right) + \frac{S_0}{d} \left\{ \frac{j\omega e_m}{(1-b) + j\omega e_m [r_m(1-b) + r_i b]} \right\} \quad (\text{III.76})$$

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{S}{d} \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{j\omega e_m}{1 + j\omega e_m r_m} \right) + \frac{S_0}{S} \left\{ \frac{j\omega e_m}{(1-b) + j\omega e_m [r_m(1-b) + r_i b]} \right\} \right\} \quad (\text{III.77})$$

En prenant le circuit équivalent parallèle pour représenter la cellule unitaire homogénéisée, il vient

$$\frac{1}{Z_{e,c}} = \frac{1}{R_{e,c}} + j\omega C_{e,c} \quad (\text{III.78})$$

$$\text{où } R_{e,c} = r_{e,c} \frac{d}{S} \quad \text{et} \quad C_{e,c} = e_{e,c} \frac{S}{d}$$

et en identifiant les équations (III.77) et (III.78), on déduit les lois de mélanges

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{(\omega e_m r_m)^2}{1 + (\omega e_m r_m)^2} \right) + \frac{S_0}{S} \left\{ \frac{(\omega e_m)^2 [r_m(1-b) + r_i b]}{(1-b)^2 + (\omega e_m)^2 [r_m(1-b) + r_i b]^2} \right\} \right\} \quad (\text{III.79})$$

et

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{S_0}{S} \right) \left(\frac{1}{1 + (\omega e_m r_m)^2} \right) + \frac{S_0}{S} \left\{ \frac{(1-b)}{(1-b)^2 + (\omega e_m)^2 [r_m(1-b) + r_i b]^2} \right\} \right\} \quad (\text{III.80})$$

Ou encore en introduisant la concentration volumique

$$\frac{1}{r_{e,c}} = \frac{1}{r_m} \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) \left(\frac{(we_m r_m)^2}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{c}{b} \left\{ \frac{(we_m)^2 [r_m(1-b) + r_i b]}{(1-b)^2 + (we_m)^2 [r_m(1-b) + r_i b]^2} \right\} \right\} \quad (\text{III.81})$$

et

$$e_{e,c} = e_m \left\{ \left(1 - \frac{c}{b} \right) \left(\frac{1}{1 + (we_m r_m)^2} \right) + \frac{c}{b} \left\{ \frac{(1-b)}{(1-b)^2 + (we_m)^2 [r_m(1-b) + r_i b]^2} \right\} \right\} \quad (\text{III.82})$$

Ces relations peuvent être très utiles pour apprécier la qualité d'un poteau lorsque le métal perd ses propriétés suite à une agression environnementale (pénétration de l'eau et corrosion par exemple).

III.9 Validation expérimentale

Pour valider notre modèle, nous considérons un modèle expérimental similaire à celui proposé par ailleurs [2]. L'hétérostructure que nous considérons est un matériau à deux constituants, homogène et périodique. Pour valider notre modélisation, nous avons réalisé des échantillons de matériau constitués de parallélépipèdes de 40 mm x 40 mm x 80 mm de dimensions dans lesquels 16 cavités identiques parallèles sans recouvrement, en forme de tubes de section carrée, ont été réalisées et espacées périodiquement dans le plan transverse aux tubes. L'axe des tubes est perpendiculaire à la direction du champ électrique appliqué comme indiqué dans la Figure III.15. Le matériau hôte est issu du polychlorovinyle (PVC) dont la constante diélectrique est $\epsilon=6.5$ dans la gamme des fréquences étudiées (i.e., 20 Hz – 1 MHz) et la résistivité est $r=2.6 \cdot 10^6 \Omega.m$. Les inclusions (tubes) contiennent de l'air ($\epsilon_i=1$) ou de l'eau ($\epsilon_i=80$ et $r=1.3 \cdot 10^6 \Omega.m$). Pour varier la fraction volumique de l'inclusion, c , nous modifions la section carrée des tubes.

Le système de mesure est similaire à celui utilisé précédemment (voir paragraphe III.5) à la différence des électrodes qui sont dans ce cas des électrodes parallélépipédique en cuivre avec une section active rectangulaire de dimensions 80 mm x 40 mm. Un ressort est placé sur l'électrode supérieure pour assurer un bon contact entre les électrodes et l'échantillon ; ceci permet d'éviter les capacités parasites induites par la présence d'interstices d'air aux interfaces entre l'échantillon et les électrodes.

La mesure de la capacité et de la résistance est effectuée avec un impédance-mètre Hewlett Packard HP4284 A (20 Hz-1 MHz) à une fréquence de 100 kHz et une amplitude de 4V/cm.

La permittivité et la résistivité effective de l'hétérostructure sont déduites par la suite. Toutes les mesures sont effectuées à température ambiante.

Les Figures III.19 et III.20 donnent les permittivités effectives mesurées et calculées en fonction de la fraction volumique des inclusions contenant de l'eau ou vides (inclusions d'air). Nous remarquons un accord raisonnable entre les valeurs expérimentales et les prédictions de la méthode de l'impédance équivalente.

Les différences quantitatives proviennent vraisemblablement de certaines limitations du modèle expérimental telles que la mauvais contact entre les électrodes et l'hétérostructure et le fait que ce modèle expérimental n'est pas rigoureusement périodique vu qu'il est de dimensions finies. Il est donc important que le nombre d'inclusions soit suffisamment important. C'est uniquement dans ce cas que l'on peut considérer que ce modèle expérimental est quasi-périodique [2]. Malgré ces limitations, ce travail montre que la connaissance de la permittivité effective, permet de déduire une concentration globale des cavités ou d'eau dans un milieu donné. Une telle information est d'un intérêt majeur pour de nombreuses applications.

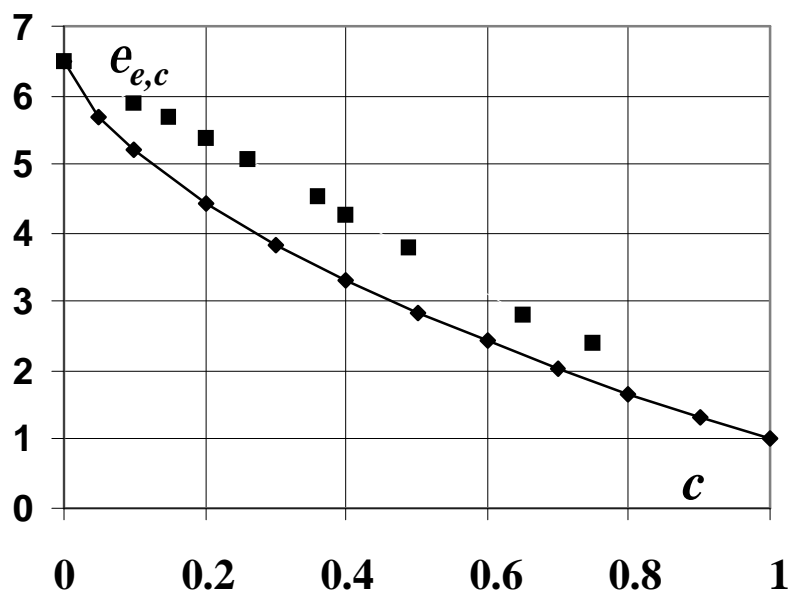


Figure III.19. Permittivité relative effective en fonction de la fraction volumique des trous : valeurs calculées (\blacklozenge) et valeurs expérimentales (\blacksquare).

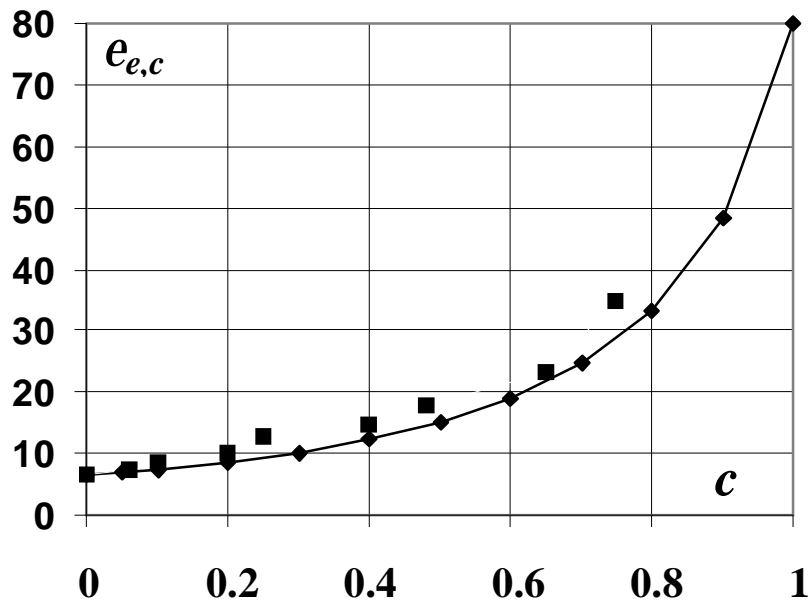


Figure III.20. Permittivité relative effective en fonction de la fraction volumique de l'eau : valeurs calculées (\blacklozenge) et valeurs expérimentales (\blacksquare).

Remarquons que dans la gamme des fréquences exploitées nous n'avons pas observé une différence dans les mesures de la conductivité des hétérostructures.

III.10 Remarque

Notons que la permittivité effective du composite ϵ déterminée dans ce chapitre est réelle. Elle correspond à la capacité d'emmagasiner l'énergie électrostatique. En réalité, on devrait la noter ϵ' . Cependant, nous avons utilisé ϵ pour faciliter l'écriture.

La résistivité r représente les pertes d'énergie dans le matériau. Elle est liée à la partie complexe de la permittivité effective par la relation :

$$\epsilon'' = r\omega \quad \text{avec} \quad \omega = 2\pi f ; f \text{ étant la fréquence}$$

III.11 Conclusion

Le bon accord observé entre les résultats expérimentaux et les résultats simulés montre que la méthode de l'impédance électrique équivalente que nous proposons, est un outil descriptif valide pour caractériser différents milieux de géométries simples et de prédire les propriétés d'une hétérostructure constituées d'un matériau diélectrique hôte (matrice homogène à trois dimensions) et des inclusions diélectriques ou conductrices. Elle permet d'établir des lois de mélanges, c'est-à-dire la permittivité effective et la résistivité, en fonction de la concentration des inclusions et de la permittivité et la résistivité de chacun des constituants de l'hétérostructure.

Bibliographie

[1] B. Saréni, L. Krähenbühl, A. Beroual, and C. Brosseau, "Effective dielectric constant of periodic composite materials", *J.Appl.Phys.*, vol.80, pp.1688-1696, 1996; ibidem, "Complex effective permittivity of a lossy composite material", vol.80, pp. 4560-4565, 1996, and ibidem, "Effective dielectric constant of random composite materials", vol.81, 1997, pp. 2375-2383.

[2] A. Beroual and C. Brosseau, Comparison of dielectric properties determined from a computational approach and experiment for anisotropic and periodic heterostructures, *IEEE Trans. Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 8, 2001, pp. 921-929.

[3] Davis J.L., Chudobiak W.J., In situ method for measuring relative permittivity of soils, Geological Survey of Canada, Ottawa, 1975, paper 75-1, A, pp.75-79.

[4] G.C. Topp, J.L. Davis, A.P. Annan, Electromagnetic determination of soil water content using T.D.R. Evaluation of installation and configuration of parallel transmission lines, *Soil Science Society of America. Journal*, Vol. 46, 1982.

[5] G.C. Topp, J.L. Davis, Measurement of soil water content using T.D.R. : a field evaluation, *Soil Science Society of America. Journal*, Vol. 49, 1985.

CHAPITRE IV

METHODES NUMERIQUES POUR LA DETERMINATION DE LA PERMITTIVITE DIELECTRIQUE EFFECTIVE COMPLEXE

IV.1 Introduction

Dans le chapitre I, nous avons exposé les diverses approches analytiques permettant de décrire les phénomènes physiques présents dans les hétérostructures, en utilisant la théorie des diélectriques. Cependant, l'utilisation de ces méthodes analytiques est souvent limitée à des géométries simples et à de faibles concentrations d'inclusions. De plus, la résolution analytique des problèmes physiques réels nécessitent souvent des hypothèses et simplifications, injustifiables dans la plupart des problèmes réels. C'est pourquoi, on a de plus en plus recours à des outils numériques pour l'étude des systèmes complexes. Le développement des méthodes numériques a ouvert des champs d'applications très divers et plus particulièrement celui de la détermination des caractéristiques des matériaux hétérogènes. La performance de ces méthodes numériques a été démontrée par plusieurs chercheurs [01-10]. Les simulations numériques offrent plus d'avantages que les expériences sur les matériaux réels. Elles permettent en effet non seulement de concevoir à la « carte » de nouveaux matériaux mais également de prédire leur évolution dans le temps selon les contraintes auxquelles elles seront exposées (vieillessement) ainsi que les défauts pouvant apparaître en exploitation.

La détermination de la constante diélectrique effective (permittivité effective) d'un matériau composite à partir des propriétés des constituants homogènes purs, est un problème électrostatique qui nécessite la résolution de l'équation de Poisson ou de Laplace décrivant l'hétérostructure, en tenant compte des conditions aux limites définies sur des domaines avec des géométries données. Cette résolution passe par le calcul de la distribution du potentiel ou du champ électrique dans le milieu. Il s'agit donc de déterminer la répartition spatiale du champ électrostatique (E) (ou du vecteur déplacement (D)) et du potentiel (V) en fonction de la répartition connue des charges et des conditions aux limites, c'est à dire la répartition donnée du potentiel sur les surfaces limitant le volume pour lequel le champ est calculé. Le calcul du champ (ou du potentiel) peut être effectué par plusieurs méthodes: analytiques, graphiques, expérimentales et numériques. Le choix de la méthode pour résoudre les équations de Maxwell (équation de Laplace) dépend de la complexité du problème et des conditions aux limites, le but étant d'obtenir les résultats les plus précis en un minimum de temps de calcul.

Parmi les méthodes numériques les plus connues et les plus répandues pour la résolution des équations différentielles, on peut citer la méthode des éléments finis (MEF), la

méthode des différences finis (MDF), la méthode des équations intégrales de frontière (MEIF), la méthode des différences finies dans le domaine des temps (FDTD), la méthode des moments (MM), la méthode de Monté Carlo. Toutes ces méthodes numériques sont décrites et discutées dans de nombreux manuels; nous en présenterons brièvement les principes de celles qui sont les plus adaptées pour le calcul de la permittivité des matériaux composites. C'est la méthode des équations intégrales de frontière que nous utiliserons dans notre travail pour décrire les comportements de la conductivité (résistivité) électrique et la permittivité diélectrique des matériaux composites (chapitre V).

IV.2 Méthodes numériques

IV.1.2. Méthode des différences finies

La méthode des différences finies (MDF) a été historiquement, la première méthode utilisée pour calculer par ordinateur, la solution des équations différentielles. Elle consiste à résoudre localement les équations de Maxwell par discrétisation du domaine (domaine surfacique en 2D) considéré en utilisant une grille de points dont la finesse permet une bonne approximation du domaine (Figure IV.1). Dans le cas d'un espace à 3 dimensions, la grille sera un volume. A chaque point de la grille, on fait une approximation des dérivées en utilisant des différences finies (approximation dans le développement de Taylor, jusqu'au second ordre). Ainsi, La MDF consiste donc à remplacer dans les équations aux dérivées partielles et les conditions aux limites, les dérivées par des différences finies calculées à chaque nœud d'un maillage donné. L'utilisation d'un maillage régulier permet d'obtenir pour chaque point, la même forme d'équations. L'un des maillages les plus simples est le maillage carré (Figure IV.2a).

Chaque point est situé sur l'un des sommets du carré. D'autres maillage réguliers peuvent être également utilisés.

Dans le cas d'un maillage carré, on peut prendre un point numéroté 0 et ses quatre voisins numérotés de 1 à 4 (Figure IV.2b), la longueur de chaque branche de l'étoile étant égale à h .

A chaque point du segment P_1 - P_3 , le potentiel V peut être exprimé en fonction du potentiel au point 0 et ses dérivées successives. Ceci nécessite le développement du potentiel en séries de Taylor au voisinage du point 0 ($x=x_0$).

$$V = V_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{(x-x_0)^n}{n!} \frac{\partial^n V}{\partial x^n} \right\}_{x_0} \quad (\text{IV.1})$$

Pour le point P₁ (x = x₀ - h) nous avons

$$V_1 = V_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ (-1)^n \frac{h^n}{n!} \frac{\partial^n V}{\partial x^n} \right\}_{x_0} \quad (\text{IV.2})$$

De la même manière, pour le point P₃ (x = x₀ + h) nous obtenons

$$V_3 = V_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{h^n}{n!} \frac{\partial^n V}{\partial x^n} \right\}_{x_0} \quad (\text{IV.3})$$

En prenant des valeurs suffisamment faibles pour h, on peut négliger les termes d'ordre supérieur à 2:

$$V_1 = V_0 - h \frac{\partial V}{\partial x} + \frac{h^2}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \quad (\text{IV.4})$$

$$V_3 = V_0 + h \frac{\partial V}{\partial x} + \frac{h^2}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} \quad (\text{IV.5})$$

En additionnant ces deux équations on aura:

$$\frac{h^2}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} = V_1 + V_3 - 2V_0 \quad (\text{IV.6})$$

De façon similaire, en considérant le segment [P₂P₄], il vient

$$\frac{h^2}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} = V_2 + V_4 - 2V_0 \quad (\text{IV.7})$$

Pour résoudre l'équation de Laplace en coordonnées cartésiennes, dans l'espace à deux dimensions:

$$\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial y^2} = 0 \quad (\text{IV.8})$$

nous remplaçons les différentes dérivées par les équations (IV.6) et (IV.7). Ceci conduit à

$$V_1 + V_2 + V_3 + V_4 - 4V_0 = 0 \quad (\text{IV.9})$$

Si l'on écrit l'équation ci-dessus en considérant successivement chaque point comme le centre d'une étoile, on obtient un système algébrique qui peut s'écrire sous forme matricielle:

$$[A]\{X\} = \{B\} \quad (\text{IV.10})$$

où $\{X\}$ est le vecteur des inconnus, c'est à dire les potentiels de tous les points à l'intérieur du domaine.

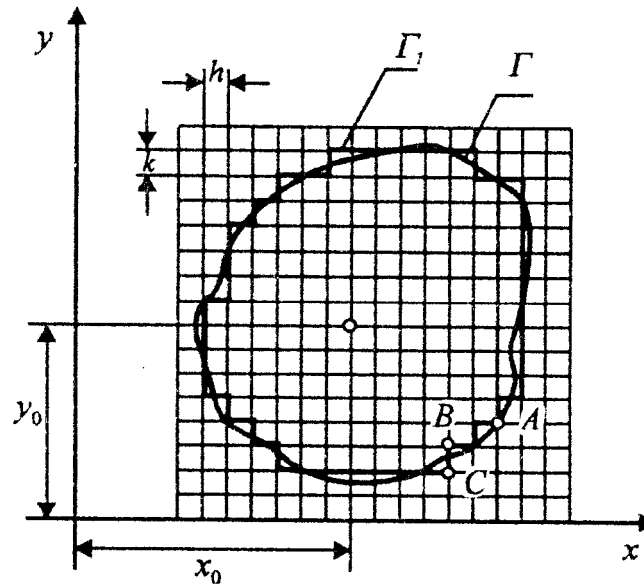


Figure IV.1. Méthode des différences finies. Grille pour les calculs.

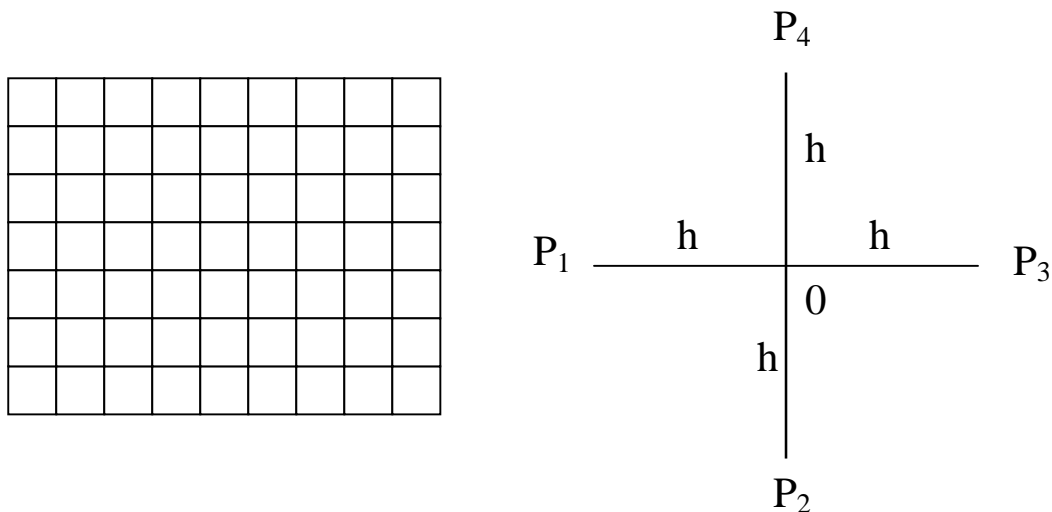


Figure IV.2. Maillage carré (a) et point central et ses voisins (b).

Cependant, cette méthode présente certains inconvénients, liés au maillage du domaine G dans le cas d'une frontière curviligne, ce dernier nécessitant la détermination des points d'intersection du maillage avec la frontière et donc l'écriture d'un algorithme assez laborieux. Cette méthode ne permet pas de prendre en compte les matériaux à structures aléatoires et les matériaux à géométries complexes [11 - 16].

C'est pourquoi, cette méthode a été délaissée pour une autre méthode comme la méthode des éléments finis (MEF). Alors que la MDF fait une approximation des opérateurs d'une équation différentielle par différences finies calculées aux nœuds du maillage, la MEF permet de faire une approximation de la fonction inconnue.

IV.2.1. Méthode des éléments finis

La méthode des éléments finis (MEF) est l'une des méthodes les plus employées aujourd'hui pour résoudre des équations aux dérivées partielles, notamment les équations de Maxwell qui régissent les phénomènes électromagnétiques. Elle a d'abord été utilisée pour résoudre des équations d'élasticité et de mécanique des structures et adaptée plus tard à l'électromagnétisme [15]. Elle a fait son apparition dans les années 70, après la MDF. Néanmoins, son histoire remonte à l'année 1943 [16,17]. La MEF est une méthode générale qui s'applique à la majorité des problèmes rencontrés dans la pratique: problèmes stationnaires ou non stationnaires, linéaires ou non linéaires, définis dans un domaine géométrique quelconque à une, deux ou trois dimensions. En plus, elle s'adapte bien aux milieux hétérogènes. Elle consiste à approcher les variables inconnues par un polynôme de degré fini aux nœuds du maillage. Les parties élémentaires sont des polygones. Les géométries conventionnelles sont mieux décrites par ce maillage aux éléments finis qu'aux différences finies. En effet, la variété des formes d'éléments finis (tétraèdres, hexaèdres, prismes, par exemple en 3D) permet de mailler les régions avec une densité variable. Les conditions aux limites sont prises en compte aisément. Enfin, la méthode est décrite par une théorie mathématique très riche, qui permet de conserver les propriétés des opérateurs mathématiques. Néanmoins, cette méthode exige un traitement particulier des équations, qui sont transformées à l'aide d'une formulation intégrale, puis discrétisées pour aboutir à un système d'équations algébriques.

Dans la MEF, contrairement à la MDF, l'attention n'est pas focalisée sur la résolution de l'équation de Laplace (ou autre), mais plutôt sur un problème de variation, concernant le principe de l'énergie minimale dans une région fermée du champ électrostatique. L'énergie

emmagasiné dans le champ prend toujours la plus faible des valeurs possibles. La région du champ électrique considéré, est divisée en éléments de formes et de tailles quelconques (Figure IV.3).

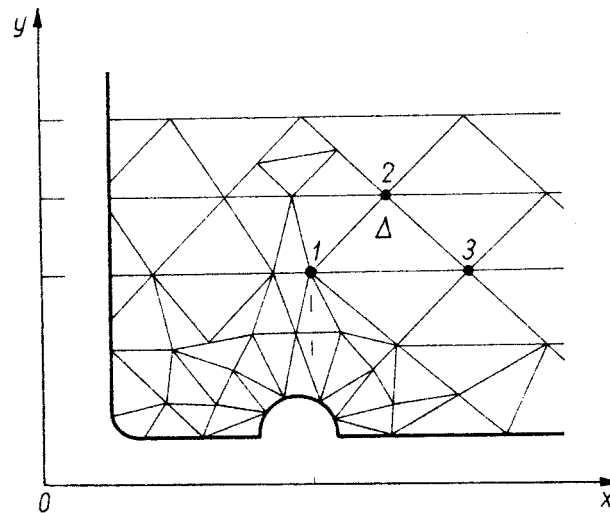


Figure IV.3. Fragment du champ avec le maillage destiné aux calculs par la méthode des éléments finis.

La MEF utilise une approximation par parties de la fonction inconnue, pour résoudre une équation différentielle. L'équivalence physique peut être utilisée pour trouver une solution de l'équation aux dérivées partielles. Cependant, la complexité des géométries des systèmes considérés, rend cela très difficile, voire impossible, pour trouver une approximation de la solution dans l'ensemble du domaine étudié. Pour contourner cette difficulté, on subdivise le domaine (de la même manière que pour la MDF) en sous-domaines appelés éléments finis, sur lesquels on effectue localement une interpolation pour approcher la fonction inconnue. Le domaine considéré est limité par une frontière où la valeur du potentiel est supposée connue. Les éléments finis qui sont utilisés pour discrétiser le domaine sont généralement regroupés en familles topologiques: segments, triangles, quadrilatères, tétraèdres, parallélépipèdes, prismes.

Chaque élément est représenté par des points appelés nœuds géométriques. A chaque élément, on associe des nœuds d'interpolation où l'inconnue sera calculée. Ainsi, à chaque élément

résultant de la subdivision, la fonction modélisant le phénomène est définie par une interpolation polynomiale.

$$V = \sum_{i=1}^n I_i V_i \quad (\text{IV.11})$$

n est le nombre de nœuds d'interpolations; λ_i sont les fonctions d'interpolation et V_i les valeurs nodales.

Le principe de base consiste à trouver la distribution des valeurs nodales λ_i qui vérifient les équations aux dérivées partielles et qui remplissent les conditions aux limites. Ceci peut être effectué soit par une méthode variationnelle qui minimise une fonction équivalente au problème différentiel posé, ou en utilisant une méthode de projection comme la projection de Galerkin qui traite directement l'équation aux dérivées partielles.

L'ordre du polynôme dépend du type d'élément; par exemple, pour élément quadratique unidimensionnel, décrit par l'abscisse curviligne μ situé dans l'intervalle $[-1, 1]$, les fonctions d'interpolation sont [18-19]:

$$\begin{aligned} I_1(m) &= \frac{1}{2} m(m-1) \\ I_2(m) &= 1 - m^2 \\ I_3(m) &= \frac{1}{2} m(m+1) \end{aligned} \quad (\text{IV.12})$$

Considérons par exemple, l'équation de Poisson. Nous cherchons une approximation V' de V qui minimise la quantité R tel que

$$R = \left(\Delta V' + \frac{r}{e} \right) \quad (\text{IV.13})$$

(r est la densité de charge volumique)

Parmi les méthodes permettant d'annuler une quantité donnée dans un domaine Ω , la méthode des résidus pondérés; cette dernière est bien connue et souvent utilisée. On choisit un système de fonctions linéaires indépendantes W_n , appelées fonctions de projection, puis on annule toutes les intégrales (IV.14) à chaque élément fini.

$$I_n = \int_{\Omega} W_n R d\Omega \quad (\text{IV.14})$$

On obtient ainsi une formulation intégrale de la méthode des éléments finis. Il existe également des sous-méthodes de la méthode des résidus pondérés (collocation point par point, collocation par sous-domaines, Galerkin, moindre carrés), selon le choix des fonctions pondérées.

La méthode de Galerkin est la plus utilisée. Elle consiste à prendre les mêmes expressions mathématiques des fonctions de projection et d'interpolation:

$$I_i(\mathbf{m}) = W(\mathbf{m}) \quad (\text{IV.15})$$

Pour chaque élément, on annule les n intégrales (IV.14) correspondant aux n fonctions de projection. Ce système d'équations peut s'écrire sous une forme matricielle:

$$[A_e] \{V_e\} = \{b_e\} \quad (\text{IV.16})$$

$[A_e]$ est la matrice associée à l'élément considéré. Les coefficients dépendent des coordonnées des nœuds de l'élément. Les composantes de $\{V_e\}$ sont les inconnues aux nœuds du même élément. Les vecteurs $\{b_e\}$ prennent en compte les conditions aux limites éventuelles en certains nœuds de l'élément considéré. En écrivant l'équation (IV.16) pour tous les éléments, on obtient une série d'équations algébriques parmi lesquelles la solution de potentiel dans le domaine étudié.

IV.2.3 Méthode des Différences Finies dans le Domaine des Temps (MDFDT)

La méthode des différences finies dans le domaine des temps (MDFDT) a connu récemment un regain d'attention pour la modélisation des matériaux anisotropes et non linéaires. Cette méthode, introduite pour la première fois par Yee en 1966 [20], est une technique numérique pour la résolution de l'équation de Maxwell dans le domaine des temps. A la différence de l'équation intégrale basée sur la résolution des équations de Maxwell, l'algorithme de la MDFDT de Yee présente plusieurs avantages: (1) il ne nécessite la connaissance d'aucune des fonctions de Green, (2) il n'y a pas d'intégrales multidimensionnelles singulières à déterminer, (3) il ne nécessite pas la sommation de séries infinies multidimensionnelles convergent très lentement, et (4) il est facile à programmer. Cependant, ces avantages ont un prix. Cette méthode nécessite de grands espaces mémoire pour le calcul pour discrétiser convenablement les zones dont les dimensions sont petites par rapport à la longueur d'onde du mode de guide d'onde dominant, et le temps CPU peut être

important lorsqu'on utilise des méthodes d'intégration dans le temps explicites et des maillages de simulation uniformes.

L'algorithme de la MDFDT est dérivé directement des équations de Maxwell dans le domaine temporelle. Il consiste à remplacer les équations de Maxwell par des équations de différences qui peuvent être intégrées numériquement. Pour cela, on introduit un maillage espace-temps et on définit les champs sur ce maillage. Le maillage définit l'espace de calcul.

IV.2.5. Méthode des équations intégrales de frontière

La méthode des équations intégrales de frontière (MEIF) a connu un grand développement dans les années 80 [19, 21,22], et elle fait toujours l'objet des recherches intenses menées en vue d'éliminer les barrières limitant son emploi; en effet, elle ne permet pas d'analyser les problèmes non linéaires. Ce qui diffère cette méthode des autres méthodes, c'est que seules les informations concernant les frontières des milieux voisins sont nécessaires. Ainsi, l'avantage principal de la MEIF est telle que la dimension du problème est réduite à 1. Grâce à cette propriété, la taille du système de solutions est réduite, ce qui conduit à une efficacité améliorée des calculs numériques. La solution (le potentiel et le champ normal) sur les surfaces est utilisée pour calculer les quantités globales utiles (tels que le flux, forces, ou capacités) ainsi que des quantités locales à travers tout le volume du domaine. Les valeurs locales peuvent être étudiées sur les coupes transversales ainsi que sur les surfaces. Wu [23] argumentait que la MEIF a plusieurs avantages par rapport aux autres méthodes et qui justifient son application pour de nombreux problèmes pratiques – même dans les cas où l'intégration du domaine est nécessaire.

La réduction de la dimension du problème s'effectue par la présentation de l'équation décrivant les phénomènes régnants dans le domaine étudié, sous forme d'une équation intégrale de frontière, ce qui est le principe de la méthode. Pour obtenir la formulation intégrale de frontière, il est nécessaire de trouver une relation de réciprocité appropriée pour le problème et de déterminer une solution fondamentale appropriée [19]. Le point de départ pour la MEIF est le deuxième théorème de Green avec la fonction de Green G :

Les méthodes des équations intégrales des frontière (MEIF) consistent à résoudre les problèmes aux frontières entre deux milieux. Ces méthodes peuvent être classées en deux groupes: les méthodes directes et les méthodes indirectes. Avec les méthodes directes, on manipule directement les potentiels et les champs, alors qu'avec les méthodes indirectes on

travaille avec les charges électriques pour calculer ensuite les valeurs de potentiel et de champ. La MEIF s'applique principalement aux problèmes à trois dimensions. L'un des avantages de la MEIF est qu'elle nécessite un maillage de surface au lieu d'un maillage de volume comme dans le cas de la méthode des éléments finis, par exemple. Ainsi, la MEIF permet de faire une économie sur le nombre d'inconnues ou d'avoir une meilleure précision pour le même nombre d'inconnues. Contrairement à la MEF qui est bien adaptée aux problèmes linéaires et non linéaires, la MEIF est efficace pour la résolution des problèmes linéaires ou linéarisés. Cette méthode est bien adaptée pour décrire le comportement de diélectriques avec des inclusions distribuées périodiquement dans la matrice.

La MEIF permet d'exprimer la solution d'une équation aux dérivées partielles sous forme d'une intégrale aux contours (frontières) du domaine étudié [21,22]. Cette méthode a fait l'objet de plusieurs développements. Il existe deux formulations de cette méthode, basées sur l'inversion des opérateurs mathématiques gouvernant les équations locales: la méthode de distribution et la méthode de Green. Ces deux méthodes utilisent les fonctions de Green [21, 22].

IV.3. Application aux matériaux composites

La méthode des différences finies (MDF) nécessite la détermination des points d'intersection du maillage avec la frontière, dans le cas d'une frontière curviligne, et donc l'écriture d'un algorithme assez lourd. Elle n'est pas applicable aux matériaux à structures aléatoires et/ou à des géométries complexes [11-16]. Contrairement à la MDF qui fait une approximation des opérateurs d'une équation différentielle par différences finies, la MEF se focalise sur un problème de variation. Elle permet de faire une approximation de la fonction inconnue et est applicable aux matériaux composites périodiques, avec et sans pertes, linéaires et non linéaires. Cependant, cette méthode ne permet pas de résoudre un problème avec une géométrie mal définie ou très compliquée à cause du nombre élevé de cellules élémentaires dans le cas d'inclusions dispersées dans la matrice.

La modélisation des structures tridimensionnelles par la méthode des équations intégrales de frontière (MEIF) nécessite la description et la discrétisation de toutes leurs surfaces en éléments de maillage surfaciques. Contrairement à la méthode des éléments finis, dans laquelle le volume étudié - obligatoirement limité - doit être entièrement maillé, le maillage dans la MEIF ne porte que sur les surfaces des objets représentant les frontières du

domaine. L'avantage de la MEIF dans la formulation directe est le fait que les variables calculées lors de la résolution des équations, sont le potentiel V et le champ électrique normal $\partial V / \partial n$. C'est pourquoi, nous utiliserons dans notre travail la méthode des équations intégrales de frontière pour déterminer la permittivité diélectrique effective complexe des matériaux composites diélectriques à deux phases. Comme nous l'avons déjà indiqué, cela passe par la résolution de l'équation différentielle du second ordre, c'est à dire de l'équation de Laplace ($\Delta V = 0$ où V est la distribution de potentiel à l'intérieur du domaine spatial Ω avec une densité de charge égale à zéro partout) [21,22]. En utilisant le théorème de Green, on peut écrire le potentiel local V en fonction des potentiels $V(M)$ et la dérivée normale $\frac{\partial V}{\partial n}(M)$, en tout point M de la frontière S de Ω :

$$V(M) = -\frac{4p}{A} \int_S \left(V \frac{\partial G}{\partial n} - G \frac{\partial V}{\partial n} \right) \cdot ds \quad (\text{IV.27})$$

où A est l'angle solide sous lequel le point M voit le volume orienté Ω , n est le vecteur unitaire normal orienté, sortant de la surface S , ds est un élément de surface de S et G est la fonction de Green.

$$G = G_M(Q) = -\frac{1}{4pr_{MQ}} \quad (\text{IV.28})$$

Le potentiel V et sa dérivée normale sont calculés en chaque nœud du maillage à partir des propriétés physiques des milieux et des conditions aux frontières des différentes surfaces.

Pour commencer, soit la représentation schématique des configurations données dans la figure IV.5. Considérons un composite périodique à deux constituants que l'on peut subdiviser en cellules élémentaires. Le constituant de permittivité ϵ_1 occupant un volume Ω_1 est inséré dans le volume Ω_2 de permittivité ϵ_2 . En l'absence de densité de charge, l'équation (IV.27) conduit à:

$$V = -\frac{4p}{A} \int_{\Sigma_1} \left(V \frac{\partial G}{\partial n} - G \frac{\partial V}{\partial n} \Big|_1 \right) \cdot ds \quad (\text{IV.29})$$

pour le domaine 1, et

$$V = -\frac{4p}{A} \int_{\Sigma_2} \left(V \frac{\partial G}{\partial n} - G \frac{\partial V}{\partial n} \Big|_2 \right) \cdot ds \quad (\text{IV.30})$$

pour le domaine 2.

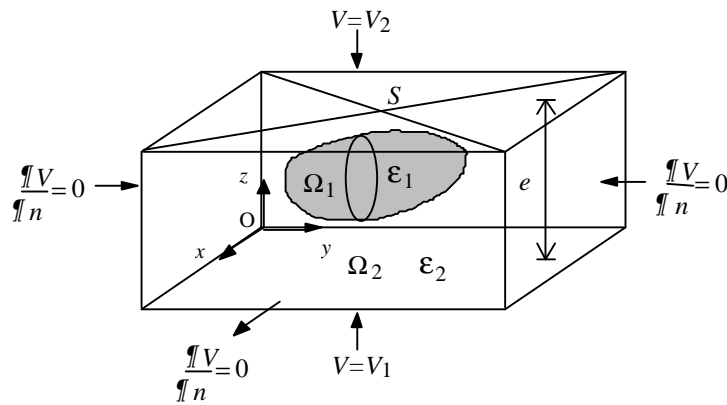
De plus, en vertu de la conservation de la composante normale du déplacement électrique sur l'interface, on a

$$e_1 \frac{\nabla V}{\nabla n} \Big|_1 = e_2 \frac{\nabla V}{\nabla n} \Big|_2 \quad (\text{IV.31})$$

Par conséquent, nous aurons à résoudre les deux équations intégrales ci-dessus (IV.28) et (IV.29) pour déterminer numériquement la distribution du potentiel électrique. Pour cela, l'implémentation de la MEIF consiste à diviser les frontières en éléments finis et pour chaque élément fini, à calculer par interpolation V et $\frac{\nabla V}{\nabla n}$ avec les valeurs nodales correspondantes:

$$\left\{ \begin{array}{l} V = \sum_j I_j V_j \\ \frac{\nabla V}{\nabla n} = \sum_j I_j \left(\frac{\nabla V}{\nabla n} \right)_j \end{array} \right. \quad (\text{IV.32})$$

où I_j sont les fonctions d'interpolation. La génération de ces fonctions nécessaires à notre méthode de calcul ainsi que les détails de la méthode employée dans notre travail sont similaires à ceux rapportés par ailleurs [22]. Les équations intégrales sont ainsi transformées en une équation matricielle que l'on résout numériquement en tenant compte des conditions aux limites sur chaque côté de la cellule élémentaire comme indiqué sur les figures IV.5a et IV.5b. Ainsi, la permittivité est calculée à partir de la connaissance de la distribution du potentiel et de sa dérivée normale. On distingue deux types de configurations pour spécifier la structure du matériau composite.



(a)

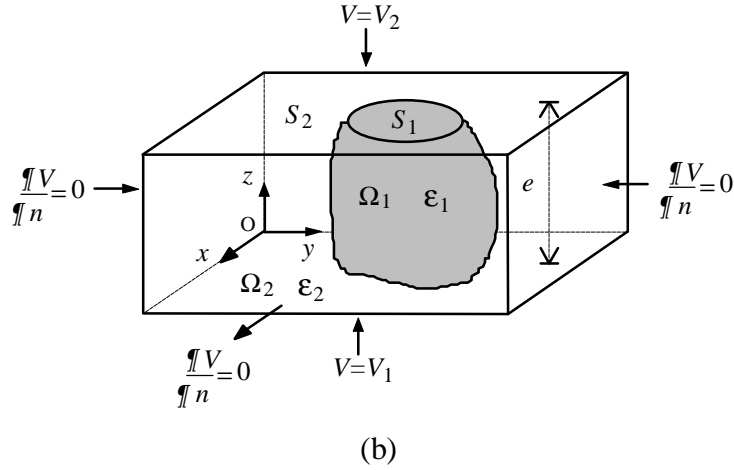


Figure IV.5. Conditions aux limites relatives aux configurations considérées dans nos simulations numériques : (a) particule isolée de permittivité ϵ_1 , (b) particule fusionnant de permittivité ϵ_1 .

Dans la Figure IV.5a, nous avons une inclusion singulière où le milieu de permittivité ϵ_1 ne peut pas intercepter les côtés de la cellule parallélépipédique. Dans ce cas, le flux électrique entrant est égal au flux sortant; la permittivité effective, dans la direction du champ appliqué, est calculée en utilisant le flux de déplacement électrique à travers la surface S :

$$f_z = \int_S \epsilon_2 \frac{\nabla V}{\nabla n} \Big|_2 = \int_S D_z n ds = \epsilon_z \cdot ES \quad (\text{IV.33})$$

$$f_z = \epsilon_z \cdot \frac{V_2 - V_1}{e} S \quad (\text{IV.34})$$

$$f_z = f'_z + j f''_z \quad \text{et} \quad \epsilon_z = \epsilon'_z + j \epsilon''_z \quad (\text{IV.35})$$

où $V_2 - V_1$ est la différence de potentiel imposée dans la direction z , e est l'épaisseur du composite dans la même direction et S représente la surface de la cellule unitaire, perpendiculaire aux champ appliqué. Ainsi

$$\epsilon'_z = \frac{f'_z e}{(V_2 - V_1) S} \quad (\text{IV.36})$$

$$\epsilon''_z = \frac{f''_z e}{(V_2 - V_1) S} \quad (\text{IV.37})$$

Dans le cas où les inclusions fusionnent entre elles (Figure IV.5b), la permittivité effective est calculée à partir de la somme des flux à travers la face de la cellule élémentaire, perpendiculaire au champ électrique:

$$f_z = \int_{S_1+S_2} D_z n ds = \int_{S_2} e_2 \frac{\nabla V}{\nabla n} \Big|_2 \cdot ds + \int_{S_1} e_1 \frac{\nabla V}{\nabla n} \Big|_1 \cdot ds = e_z \cdot \frac{V_2 - V_1}{e} (S_1 + S_2) \quad (\text{IV.38})$$

où S_1 et S_2 sont les surfaces résultant de l'intersection des volumes de permittivité e_1 et e_2 respectivement avec le côté haut de la cellule unitaire, perpendiculaire au champ appliqué. Ainsi, les parties réelle et imaginaire de la permittivité effective peuvent s'écrire sous la forme:

$$e_z' = \frac{f_z' e}{(V_2 - V_1)(S_1 + S_2)} \quad (\text{IV.39})$$

$$e_z'' = \frac{f_z'' e}{(V_2 - V_1)(S_1 + S_2)} \quad (\text{IV.40})$$

IV.4 Description géométrique des matériaux modèles

Le calcul des permittivités effectives complexes est réalisé pour une configuration cylindrique. La cellule élémentaire est constituée par une inclusion cylindrique disposée verticalement au centre d'une matrice cubique suivant une configuration cubique simple ; ce matériau est anisotrope (Figure IV.6). La fraction volumique de l'inclusion est égale à:

$$f = \frac{p r^2 h}{l^3}$$

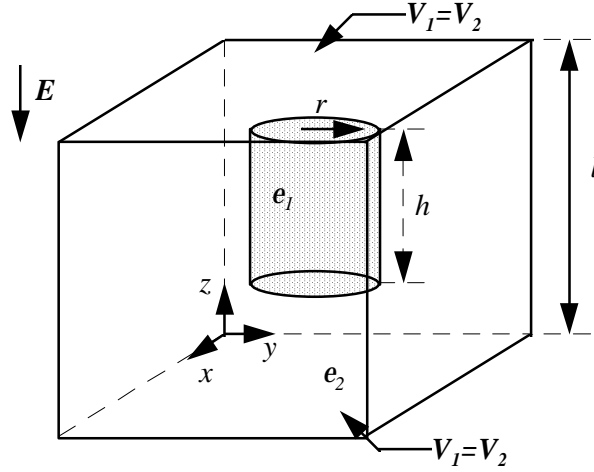


Figure IV.6. Cellule unité pour une inclusion cylindrique

Remarquons que la permittivité effective complexe suivant la direction du champ électrique appliqué, c'est à dire l'axe (oz), est différente de celles suivant l'axe (ox) et (oy).

Dans le cas des inclusions sous forme de barreaux ($r \ll h$), la permittivité effective suivant la direction perpendiculaire au champ électrique est donnée par la formule de Rayleigh en 2D [24, 25,26], pour un cylindre infiniment long :

$$\epsilon_x = \epsilon_y = \epsilon_2 \frac{\epsilon_1 + \epsilon_2 + f(\epsilon_1 - \epsilon_2)}{\epsilon_2 + \epsilon_1 - f(\epsilon_1 - \epsilon_2)}$$

Quant à la permittivité effective suivant la direction du champ électrique appliqué, c'est à dire parallèle à l'axe du cylindre, elle est donnée par la formule de Van Beek [24]:

$$\epsilon_z = \epsilon_2 + \frac{1}{3} \frac{(\epsilon_1 - \epsilon_2)(5\epsilon_a + \epsilon_1)}{\epsilon_a + \epsilon_2} f$$

ϵ_a représente la permittivité apparente du milieu continu; sa valeur est comprise dans l'intervalle $\epsilon_2 \leq \epsilon_a \leq \epsilon_{eff}$, avec $L_x = L_y = \left(\frac{l}{2} - d\right)$ et $L_z = 2d$ sachant que $d \lll l$.

Et dans le cas des inclusions sous forme de disques ($r \gg h$), les permittivités effectives sont calculées à partir des formules de Wiener [27]. Le champ est appliqué suivant la

direction perpendiculaire aux lamelles (disques). En supposant que les différents constituants sont groupés en série, la permittivité est donnée par la relation :

$$\frac{1}{\epsilon_z} = \frac{f}{\epsilon_1} + \frac{1-f}{\epsilon_2}$$

Dans le cas où le champ électrique est parallèle aux lamelles (inclusions sous forme de disques), la permittivité sera donnée par la relation (en supposant que les constituants sont groupés en parallèles):

$$\epsilon_x = \epsilon_y = f\epsilon_1 + (1-f)\epsilon_2$$

IV.5 Modélisation de l'hétérostructure

La fraction volumique des inclusions dans une configuration cylindrique, ainsi que leurs dispositions les unes par rapport aux autres dans la matrice hôte sont deux paramètres importants dans le calcul des permittivités effectives complexes des matériaux hétérogènes. L'analyse de l'anisotropie d'orientation ne fait pas l'objet de ce travail

La cellule élémentaire utilisée pour la modélisation en 3D est une cellule cubique d'arête a , au centre de laquelle est placée une inclusion cylindrique.

En tenant compte des propriétés de symétrie et de périodicité suivant les trois axes dans l'espace, la géométrie du matériau dans le cas d'une inclusion cylindrique, sera réduite à $1/8$ de sa configuration initiale. Deux symétries suivant les plans (xz) et (yz) et une antisymétrie suivant le plan (xy) sont à distinguer. Une telle réduction est utilisée dans le calcul numérique pour réduire le temps de calcul et l'espace mémoire occupé par la matrice du système ; cette économie permet de mieux affiner le maillage et obtenir des résultats beaucoup plus proches encore de la valeur exacte.

Une des étapes essentielles dans la modélisation, c'est le maillage des surfaces. Cette étape fait passer les surfaces de l'état de contour à l'état de surfaces élémentaires. Dans notre étude, nous utilisons un mailleur automatique qui génère des éléments quadrilatères. Ce maillage est ensuite affiné en propageant une ou plusieurs lignes de maillage et/ou en divisant les éléments du maillage (éléments par éléments). La Figure IV.7 représente le maillage des cellules unités avec des inclusions cylindriques. Les trois symétries et anti-symétrie utilisées

(symétries suivant les plans (xz) et (yz) et anti-symétrie suivant le plan (xy)) permettent de réduire ces géométrie au 1/8 de leur configuration initiale).

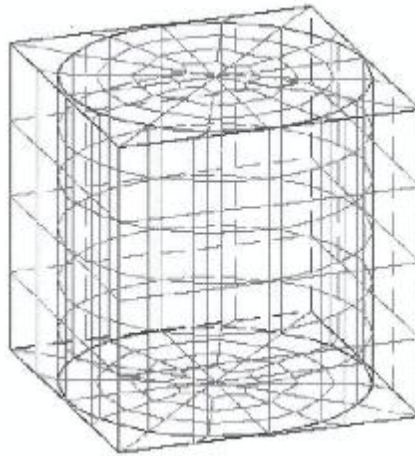


Figure IV.7. Exemples de maillage des cellules unités des matériaux modèles avec des inclusions cylindriques.

Le temps de calcul nécessaire pour une résolution dépend de la qualité du maillage et de la rapidité de la machine utilisée. Pour un maillage de 108 éléments, un temps de résolution de 45 sec est nécessaire sur une station *HP model 712/80*. Par contre pour un maillage de 448 éléments, un temps d'environ 65 min. est nécessaire pour la résolution numérique.

IV.6 Conclusion

Il ressort de notre analyse que la méthode des équations intégrales de frontière est une méthode adaptée à notre problème. Grâce aux avantages qu'elle présente, la méthode des équations intégrales de frontière sera celle que nous utiliserons dans le chapitre suivant pour caractériser des hétérostructures à géométries complexes afin de calculer la permittivité diélectrique effective des matériaux composites (ou hétérostructures) diélectriques.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] M. El Feddi, Z. Ren, A. Razek, A. Bossavit, *Homogenisation technique for Maxwell Equations in periodic structures*, IEEE Trans. Magnet. Vol. **33** (2), March (1997), pp. 1382-1385.
- [2] K.K. Kärkkäinen, A.H. Shivola, K.I. Nikoskinen, *Effective permittivity of mixtures: validation by FDTD method*, IEEE Trans. on Geoscience and Remote Sensing, vol. **38** (3) May (2000), pp. 1303-1308.
- [3] P.K. Gosh, M.E. Azimi, *Numerical Calculation of Effective Permittivity of Lossless Dielectric Mixtures using Boundary Integral Equation*, IEEE Trans. Diel. and EI, vol. **1** (6), Dec. (1994), pp. 975-981.
- [4] M. Spasojevic, P.L. Levin, *On Adaptive Refinement for Boundary Integral Methods in Electrostatics*, IEEE Trans. Diel. and EI, Vol. **1** (6), Dec. (1994), pp. 963-973.
- [5] R. Tao, Z. Chen, P. Sheng, *First-principles Fourier approach for the calculation of the effective dielectric constant of periodic composites*, Phys. Rev. B, vol. **41** (4), Feb. (1990), pp. 2417-2420.
- [6] L.C. Shen, C. Liu, J. Koringa, K.J. Dunn, *Computation of conductivity and dielectric constant of periodic porous media*, J. Appl. Phys. **67** (11), June (1990), pp. 7071-7081.
- [7] B.E. Barrowes, Chi O. AO, F.L. Teixeira, J.A. Kong, L. Tsang, *Monte Carlo Simulation of Electromagnetic Wave Propagation in Dense Random Media with Dielectric Spheroids*, IEICE Trans. Electron., vol. E83-C (12) Dec. (2000), pp.1797-1802.
- [8] A. Boudida, A. Beroual, C. Brosseau: *How Shape Anisotropy Affects the Permittivity of Lossy Heterostructures?*, CEIDP '98, Atlanta, USA, Oct. (1998), pp. 261-264.

- [9] C.C. Brosseau, A. Beroual, A. Boudida, *How do shape anisotropy and spatial orientation of the constituents affect the permittivity of dielectric heterostructures?*, Journal of Applied Physics **88** (12), pp. 7278-7288.
- [10] Sareni B., Krähenbühl L., Beroual A., Brosseau C., 1 August 1996, *Effective dielectric constant of periodic composite materials*, J. Appl. Phys. **80** (3), pp. 1688-1696
- [11] R. Sikora, Teoria pola elektromagnetycznego, WNT, Warszawa, 1997
- [12] B.M. Jaworski, A.A. Dietlaf, Poradnik Encyklopedyczny: Fizyka, PWN, Warszawa 2000
- [13] I.N. Bronsztejn, K.A. Siemiendiajew, Poradnik encyklopedyczny: Matematyka, PWN, Warszawa 1999
- [14] W. Michalski, R. Nowicki, Zbior zagadnien i zadan z teorii pola elektromagnetycznego, PWr., Wroclaw, 1995
- [15] A. Krawczyk, Podstawy elektromagnetyzmu matematycznego, INBZT, Warszawa 2001
- [16] Z. Flisowski, Technika wysokich napiec, WNT, Warszawa 1999
- [17] R. Courant, *Varational methods for solution of problems of equilibrium and vibrations*, Bull. Amer. Math. Soc. **49**, (1943), pp. 1-23.
- [18] P. Silvester, *Finite elements for electrical engineers*, Cambridge University Press, Cambridge, 1996.
- [19] P. Hunter, A. Pullan, *FEM/BEM Notes*, The University of Auckland - Department of Engineering Science, New Zealand 2001
- [20] K.S. Yee numerical solution of initial Boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic Media, IEE Trans. Antennas propagat., Vol. 14, 1966, pp.302-307.

- [21] L. Krähenbühl, *La méthode des équations intégrales de frontière pour la résolution de problèmes de potentiel en électrotechnique et sa formulation axisymétrique*, Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Lyon, France, 1983
- [22] C.A. Brebbia, *The boundary element method for engineers*, (Pentech Press, London 1980).
- [23] J. C. Wu, *Boundary element methods and inhomogeneous parabolic equations*, in C. A. Brebbia & B. J. Noye, eds, 'BETECH 85', Springer-Verlag, pp. 19–30 (1985).
- [24] D. Polder, J.H. Van Santen, *The effective permeability of mixtures of solids*, *Physica*, vol. **12**, (1946), pp. 257-271.
- [25] A.H. Shivola, J.A. Kong, *Affective permittivity of dielectric mixtures*, *IEEE Trans. Geoscience Remote Sensing*, vol. **26** (4), (1988), pp. 420-429.
- [26] R. Tao, Z. Chen, P. Sheng, First-principles Fourier approach for the calculation of the effective dielectric constant of periodic composites, *Phys. Rev. B*, vol. **41** (4), Feb. (1990), pp. 2417-2420.
- [27] O. Wiener, Die Theori des Mischkörpers für das Feld des stationären Strömung, *Abhdl. D. kgl. Akad. D. Wiss. Leipzig*, vol. **32**, (1912), pp. 509-604.

CHAPITRE V

APPLICATION DE LA METHODE DES EQUATIONS INTEGRALES DE FRONTIERE AUX HETEROSTRUCTURES

V.1 Introduction

La connaissance de la teneur en eau et la concentration des cavités (porosité et fissures) d'un milieu donné est d'un grand intérêt. Elle permet par exemple d'évaluer l'aptitude d'un milieu à absorber l'eau (ou autres liquides), ou de mettre en évidence la présence de cavités et/ou de fluides. Ainsi, selon l'application, on peut déterminer la présence d'eau dans une hétérostructure donnée ou d'apprécier le degré de pénétration de l'humidité [1 - 6] et donc la qualité et/ou le vieillissement d'une hétérostructure (application dans le diagnostic). La connaissance de la présence de fissures, de leur dimensions et de leur concentration peuvent nous informer sur la fragilité des hétérostructures (poteaux, poutres, dalles, refends, ...). Ces défauts (fissures) peuvent résulter de différentes contraintes : sur-échauffement ou séismes, environnements chimiques hostiles, mauvais dosage des matériaux de construction ... Les méthodes développées pour la caractérisation de telles hétérostructures ont été décrites dans le chapitre II.

Dans ce chapitre, nous présentons une application de la méthode des équations intégrale de frontière décrite dans le chapitre précédent, pour évaluer la présence d'inclusions et leur concentration dans une hétérostructure donnée. Cette méthode est basée sur la détermination de la permittivité diélectrique complexe ϵ d'une hétérostructure avec des inclusions distribuées périodiquement en partant du premier principe de l'électrostatique, c'est à dire l'équation de Laplace. Pour illustrer cette technique, des mesures expérimentales sont effectuées sur des échantillons composés d'inclusions identiques alignées, en forme de cylindres, insérées dans une matrice polymère ; ces inclusions sont remplies d'eau ou d'air. Nous discuterons cette méthode en comparant les résultats de simulation aux mesures expérimentales obtenus avec le même dispositif expérimental que celui utilisé dans la méthode de l'impédance équivalente (voir Chapitre III).

V.2 Application de la méthode des équations intégrales de frontière

Pour appliquer la méthode des équations intégrales de frontière, on considère une hétérostructure constituée d'un réseau périodique d'inclusions identiques (type 1) dont la dispersion est supposée nulle, dans une matrice isotropique (type 2). Soit c la concentration volumique des inclusions. L'hétérostructure est divisée en cellules. En principe, la MEIF peut être appliquée à toute cellule unitaire d'une géométrie donnée, cubique ou parallélépipédique par exemple. Rappelons que ce problème est invariant en échelle, c'est à dire que si le

système est réduit ou dilaté uniformément, la permittivité ne change pas. L'intérêt de cette approche numérique c'est la simplicité du formalisme et l'implémentation numérique. En pratique, les inclusions sont distribuées de façon aléatoire. Cependant, l'hypothèse qui consiste à considérer l'hétérostructure comme périodique fait qu'il est possible d'obtenir une information utile concernant les constantes diélectriques car le paramètre essentiel dans une telle structure c'est la fraction volumique plutôt que la morphologie interne.

La première approche qui consiste à considérer la dispersion comme nulle permet d'obtenir les propriétés moyennées des matériaux.

Notons que la méthode des équations intégrales de frontière donne une description exacte du potentiel électrique en tenant en compte des effets de bord et de proximité même pour les fortes concentrations d'inclusions. Par conséquent, le résultat numérique ne souffre pas des inconvénients de l'approche de la valeur limite traditionnelle. L'un des faits marquants de la MEIF est que seules les frontières géométriques (c'est à dire les surfaces) nécessitent une discrétisation, ce qui a pour effet de réduire l'espace mémoire nécessaire au traitement des données, mais l'équation matricielle à résoudre est asymétrique et pleine.

V.3 Technique expérimentale

Pour valider notre méthode, nous considérons un modèle expérimental similaire à celui décrit dans le chapitre III [7]. L'hétérostructure que nous considérons est un matériau composite à deux constituants, homogène et périodique. Pour notre validation, nous avons réalisé des échantillons de matériau constitués de cubes de 40 mm x 40 mm x 40 mm de dimensions dans lesquels 9 cavités identiques parallèles sans recouvrement, en forme de tubes circulaires, ont été réalisées et espacées périodiquement dans le plan transverse aux tubes. L'axe des tubes est perpendiculaire à la direction du champ électrique appliqué comme indiqué dans la Figure 3a. Le matériau hôte est issu du polychlorovinyle (PVC) dont de permittivité diélectrique $\epsilon=6.5-0.08i$ dans la gamme des fréquences étudiées (i.e., 20 Hz – 1 MHz). Les inclusions contiennent de l'air ($\epsilon=1-0i$) ou de l'eau ($\epsilon=90-15i$). Pour varier la fraction volumique de l'inclusion, c , nous modifions soit le rayon des cylindres circulaires, soit nous ajoutons des espaceurs de PVC de 2 et 4 mm d'épaisseur (Figure 3b).

Le système de mesure est identique à celui utilisé dans le chapitre III, seule la surface active S_a des électrodes change : $S_a = 40 \text{ mm} \times 40 \text{ mm}$. De même, les mesures de la capacité et de la résistance sont effectuées également avec le même impédance-mètre que dans le

chapitre III. La permittivité et la résistance effective de l'hétérostructure sont déduites par la suite. Toutes les mesures sont effectuées à température ambiante.

Comme les capacités que nous mesurons sont très faibles (dans la gamme des pF), les échantillons testés peuvent être représentés par une capacité C_p en parallèle avec une résistance R_p . Ainsi, la partie réelle e' et la partie imaginaire e'' de la permittivité effective sont données par les expressions suivantes respectivement :

$$e' = C_p / C_0$$

et

$$e'' = 1 / (C_0 R_p w)$$

avec $C_0 = \epsilon_0 S_a / l$ et $w = 2\pi f$

S_a et l sont respectivement la section active de l'échantillon et son épaisseur; f est la fréquence ; ϵ_0 est la permittivité du vide.

Le facteur de pertes est donné par

$$\tan \delta = e'' / e' = 1 / (R_p C_p w)$$

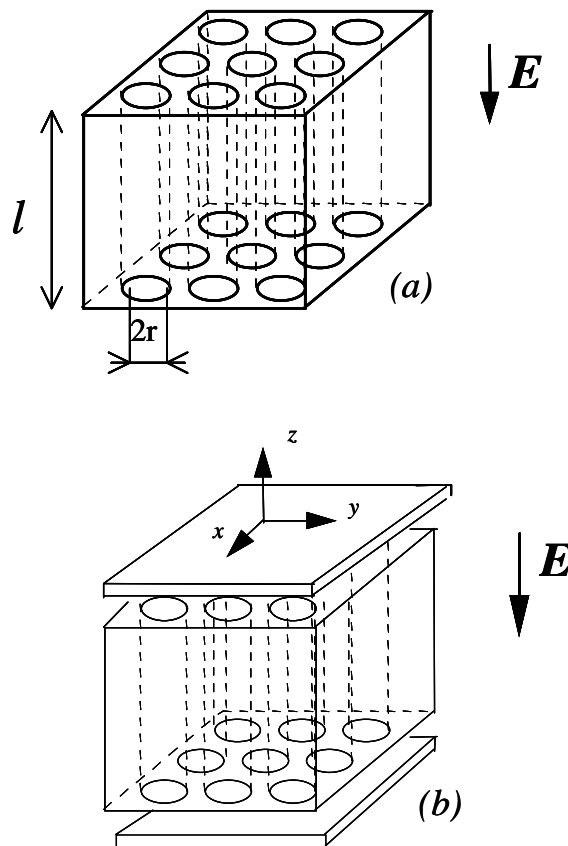


Figure 3: (a) Géométrie d'un échantillon d'hétérostructure avec le champ électrique parallèle à l'axe principal des cylindres. (b) Comme dans (a) mais avec des espaceurs permettant de varier la fraction volumique des inclusions.

Le choix de cette fréquence (100 kHz) est justifié par le fait que les mesures de R_p et de C_p à partir desquelles on calcule ϵ' et ϵ'' sont plus stables à cette fréquence. Remarquons que la conductivité et la constante diélectrique de chaque constituant de l'hétérostructure sont généralement indépendants de la fréquence au moins en dessous de 1 GHz, mais le composite montre une grande dispersion à basses fréquences (effet Maxwell-Wagner-Sillars (MWS)) (Capaccioli et al. 2000). Au delà de 10 GHz, la permittivité dépend de la fréquence; par exemple, la permittivité de l'eau décroît pour des fréquences supérieures à 10 GHz. C'est d'ailleurs ce fait qui est utilisé dans les méthodes utilisant les très hautes fréquences (méthode radar par exemple).

V.4 Résultats et discussion

Dans ce paragraphe, nous allons comparer les résultats de nos mesures expérimentales de la permittivité complexe en fonction de la fraction volumique des inclusions, avec ceux obtenus par simulation. La figure 4 montre le maillage du modèle unitaire de l'hétérostructure, qui est un cylindre unique dans une matrice en PVC, que nous modélisons avec le code de calcul PHI3D. Dans les simulations, pour un modèle donné, nous introduisons les caractéristiques diélectriques des deux constituants, le PVC et l'inclusion. Ainsi, nous pouvons obtenir par simulations, la permittivité effective complexe du modèle en fonction de la fraction volumique des inclusions que nous comparons par la suite aux résultats expérimentaux.

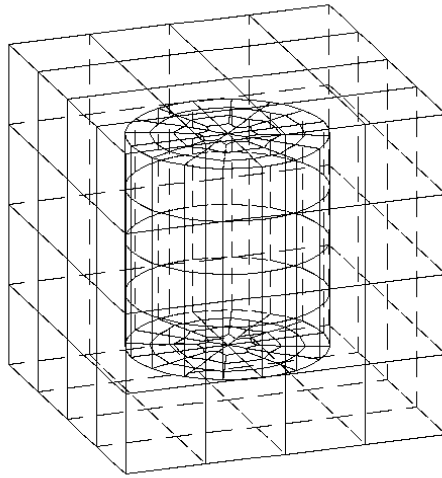


Figure 4: Maillage du modèle unitaire de l'hétérostructure, effectué avec PHI3D

Les figures 5a-b et 6a-b donnent les valeurs mesurées et simulées des parties réelle ϵ' et imaginaire ϵ'' de la permittivité effective en fonction de la fraction volumique des inclusions vides (air) ou contenant de l'eau dé-ionisée respectivement. Nous remarquons que les valeurs expérimentales et les prédictions données par les simulations numériques sont en bon accord qualitatif. Le fait remarquable est qu'il y a des différences significatives entre les résultats obtenus avec les deux types de matériaux remplissant les inclusions. En effet, pour une fraction volumique étudiée, les valeurs calculées de ϵ' et ϵ'' pour des inclusions contenant de l'eau sont toujours supérieures aux valeurs mesurées correspondantes, même si les deux variations en fonction de la fraction volumique montrent la même tendance ; la valeur calculée et la valeur mesurée sont identiques uniquement pour $c=0$. A l'inverse, ϵ' et ϵ'' décroissent graduellement au fur et à mesure que la fraction volumique de la cavité augmente avec des valeurs numériques plus faibles que les valeurs expérimentales dans la gamme des fractions volumique étudiée.

Comme nous l'avons déjà fait remarquer dans le chapitre III – paragraphe III.5.1.1, les différences quantitatives proviennent vraisemblablement des limitations du modèle expérimental : (1) le modèle expérimental n'est pas rigoureusement périodique ; et (2) le contact des électrodes avec la matrice ainsi que le remplissage des inclusions d'eau ne sont pas parfaits. Toutes les mesures expérimentales présentées ici ont été effectuées en utilisant un nombre raisonnable N d'inclusions cylindriques.

Un point important qui doit être également souligné est celui de l'anisotropie de forme et d'orientation spatiale des inclusions qui affectent énormément la permittivité effective complexe comme cela a été montré par ailleurs [7].

Malgré ces limitations, ce travail montre que connaissant les parties réelle et imaginaire de la permittivité effective complexe, on peut déduire une concentration globale de cavités ou d'air dans un milieu donné. Une telle information est d'un intérêt majeur pour de nombreuses applications.

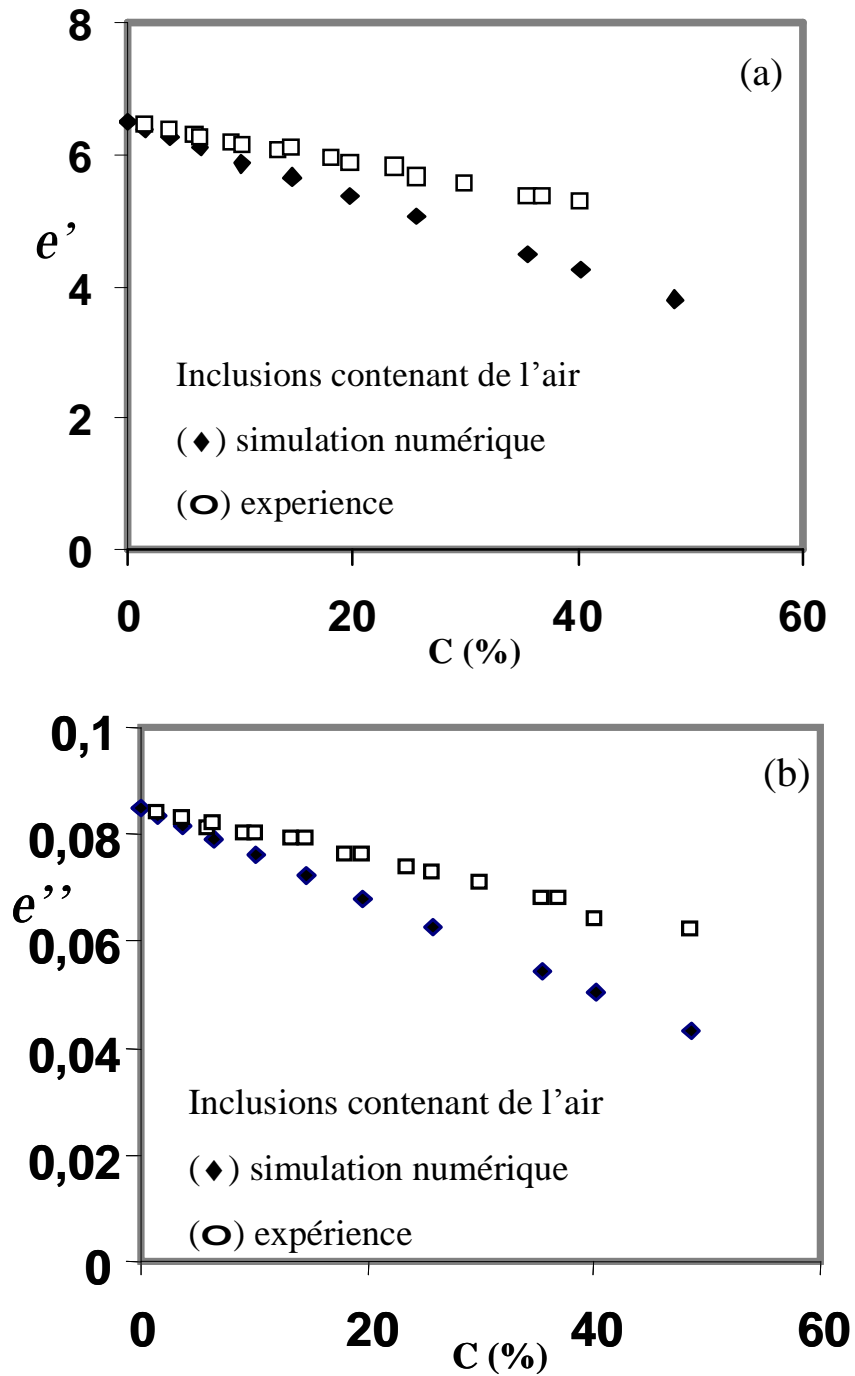


Figure 5: (a) Partie réelle e' de la permittivité effective en fonction de la fraction volumique des trous, pour des échantillons alignés selon l'axe z : simulation numérique (\blacklozenge), expérience (\circ). (b) Comme dans (a) pour la partie imaginaire e'' de la permittivité effective.

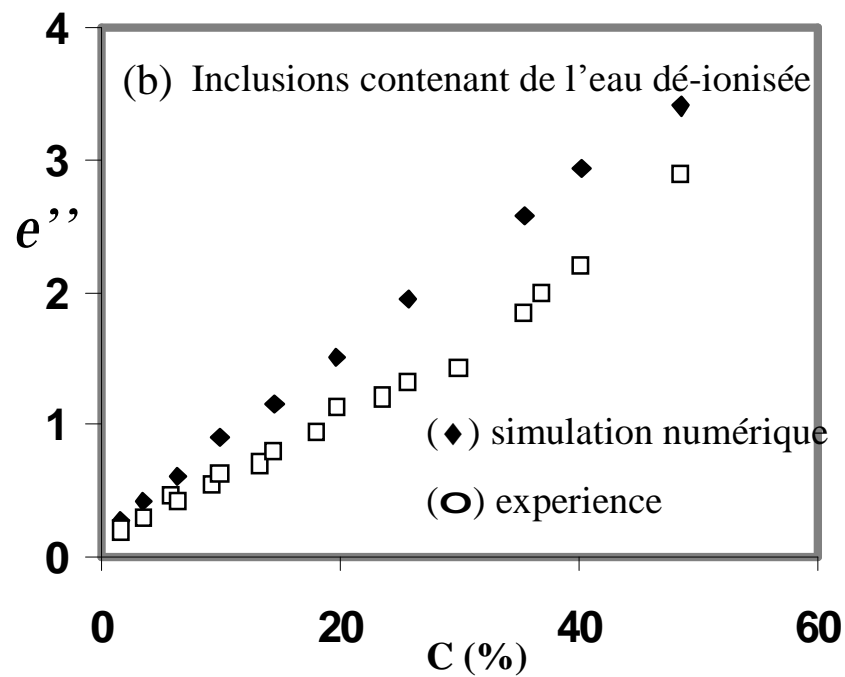
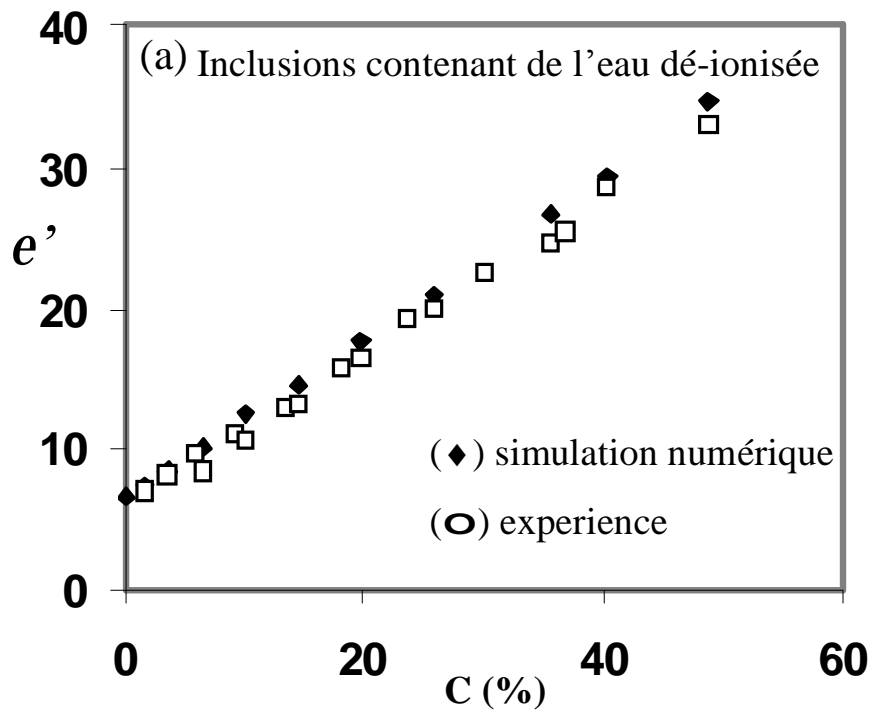


Figure 6: (a) Partie réelle e' de la permittivité effective en fonction de la fraction volumique de l'eau dé-ionisée, pour des échantillons alignés selon l'axe z : simulation numérique (♦), expérience (○). (b) Comme dans (a) pour la partie imaginaire e'' de la permittivité effective.

La méthode des équations intégrales de frontière reste applicable pour le cas des hétérostructures constituées de plus de deux phases comme c'est le cas du béton. En effet, le béton est considéré comme un composite à trois phases : ciment, agrégats et eau [8]. Le béton comporte également des pores qui constituent la quatrième phase et dont les dimensions varient d'environ $0.1 \mu\text{m}$ (cavités capillaires) à plusieurs mm (cavités d'air). La méthode des équations intégrales de frontière peut être appliquée à ce type de matériaux pour obtenir ses propriétés moyennes. Pour cela, on suppose que la dispersion est nulle et que les inclusions sont identiques. La simulation peut être exécutée en trois étapes. D'abord, on détermine la permittivité effective e_{tp} de deux phases de l'hétérostructure constituée du ciment de permittivité e_{cp} et de la région interfaciale de permittivité e_{ir} . Cette hétérostructure sera considérée comme un constituant homogène avec sa permittivité effective e_{pt} . Nous créons ensuite un autre modèle unitaire dans lequel le constituant se trouve dans le troisième constituant (c'est à dire l'agrégat) de permittivité e_{ag} , et nous calculons la permittivité effective du béton e_c . Après cela, le béton sera considéré à son tour comme un matériau homogène dont la permittivité est e_c . Enfin, nous créons une cellule unitaire dans laquelle les pores de permittivité e_p se trouvent dans le béton de permittivité e_c . Ainsi, à chaque étape, nous réduisons le problème à un composite constitué de deux phases. Pour prendre en compte la dispersion, on doit utiliser d'autres méthodes comme la méthode de Monté Carlo. De plus, si l'on veut considérer également la fait que les inclusions ne sont pas identique, la modélisation sera plus compliquée.

V.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la permittivité effective complexe de cylindres distribués périodiquement dans un parallélépipède, dans la limite quasi-statique, en fonction de la fraction volumique des différents constituants du milieu. Malgré le fait que le modèle expérimental soit un modèle simple d'un composite anisotrope et périodique, et malgré ses limitations, il nous a permis de vérifier la validité de nos simulations. En effet, les résultats expérimentaux sont en bon accord avec les résultats simulés. Par conséquent, la méthode des équations intégrales de frontière utilisant le code de calcul PHI3D pour résoudre l'équation de Laplace est un outil descriptif valable pour la permittivité effective des hétérostructures diélectriques. Cette méthode numérique peut être utilisée pour caractériser différents milieux et pour déterminer la présence d'inclusions et leur concentration dans une hétérostructure ou pour prédire les propriétés d'une hétérostructure en fonction de ces constituants initiaux.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] J.P. Baron, La mesure de la teneur en eau par les méthodes nucléaires, Journées de Physique. L.C.P.C., 1987, pp.151-156.
- [2] Capaccioli, S., Lucchesi, M., Casalini, R., Rolla, P.A., and Bona, N., Influence of the wettability on the electrical response of microporous systems, J. Phys. D: applied Physics, 33, 2000, pp. 1036-1047.
- [3] Davis, J.L., and Chudobiak, W.J., In situ method for measuring relative permittivity of soils, Geological Survey of Canada, Ottawa, paper 75-1, A, 1975, pp.75-79.
- [4] Pincet, B., Méline, D., and Auriol, J., Measurement of the moisture content variation in non saturated, compacted clays, Geoconfine 93, Arnould, Barrès and Côme (eds), 1993.
- [5] Topp, G.C., Davis, J.L., and Annan, A.P., Electromagnetic determination of soil water content using T.D.R. Evaluation of installation and configuration of parallel transmission lines, Soil Science Society of America. Journal, Vol. 46, 1982.
- [6] Topp, G.C., and Davis, J.L., Measurement of soil water content using T.D.R. : a field evaluation, Soil Science Society of America. Journal, Vol. 49, 1985.
- [7] A. Boudida, "Caractérisation diélectrique des matériaux composites : influence de l'anisotropie de forme et d'orientation, thèse de doctorat de l'Ecole Centrale de Lyon, 1999.
- [8] O.N. Oktar, H.Moral, M.A. Tsdemir, Sensitivity of concrete properties to the pore structure of hardened cement pate, Cement and Concrete Research, Vol. 26, N° 11, 1996, pp. 1619-1627.

CONCLUSION GENERALE

Dans ce travail, nous avons développé une nouvelle méthode permettant de caractériser des hétérostructures. Cette méthode est basée sur la mesure de l'impédance électrique équivalente des hétérostructures. Elle permet de rallier deux méthodes : la méthode électrique qui caractérise l'hétérostructure par sa résistivité électrique, et la méthode capacitive qui elle, la caractérise par la permittivité diélectrique. Les hétérostructures sont constituées d'un matériau hôte (matrice homogène à trois dimensions) et des inclusions diélectriques ou conductrices.

En utilisant cette méthode, nous avons établi des lois de mélanges permettant de déterminer la permittivité effective et la résistivité d'une hétérostructure donnée, en fonction de la concentration d'inclusions et de la permittivité et la résistivité de chacun des constituants de l'hétérostructure. Ces lois de mélanges ont été validées expérimentalement pour deux types d'échantillons avec trois types de matériaux. Parmi les lois de mélanges établies, celle relative à une hétérostructure constituée de diélectrique sans pertes est identique à celle établie par Wiener.

La méthode de l'impédance équivalente a été appliquée à des hétérostructures constituées de matériaux avec trous et des matériaux contenant des tubes métalliques. Des validations expérimentales ont été effectuées avec succès sur des échantillons contenant des inclusions alignées, en forme de tubes de section carrée, insérés dans une matrice en polymère et qui sont remplies soit d'air soit d'eau. Ces résultats montrent que la méthode de l'impédance équivalente est un outil descriptif valide pour caractériser des hétérostructures de géométries simples et de prédire les propriétés d'une hétérostructure.

Cette méthode ouvre des perspectives pour la conception de systèmes ou de sondes constitués d'électrodes planes (circulaires, carrées ou rectangulaires) connectés à un impédancemètre, pour la caractérisation d'hétérostructures de grandes dimensions.

Pour des hétérostructures avec des inclusions à géométrie complexe, le calcul de l'impédance équivalente et des permittivités diélectriques complexe de façon analytique est assez laborieux, voire irréalisable. Dans ces conditions, le recours aux méthodes numériques est incontournable. C'est pourquoi, nous avons fait appel à une méthode basée sur les équations intégrales de frontière pour déterminer la permittivité effective complexe. Cette méthode a été appliquée à des hétérostructures avec inclusions cylindriques disposées

périodiquement suivant une configuration cubique simple et validé expérimentalement sur des matériaux modèles que nous avons réalisés.

En dépit du fait que le modèle expérimental soit un modèle simple d'un composite anisotrope et périodique, et malgré ses limitations, il nous a permis de vérifier la validité de nos simulations. Le bon accord observé entre les résultats expérimentaux et simulés indique que la méthode des équations intégrales de frontière utilisant le code de calcul PHI3D pour résoudre l'équation de Laplace est un outil descriptif valable pour la permittivité effective des hétérostructures diélectriques. Par conséquent, cette méthode numérique peut être utilisée pour caractériser différents milieux et pour déterminer la présence d'inclusions et leur concentration globale dans une hétérostructure ou pour prédire les propriétés d'une hétérostructure en fonction de ces constituants initiaux.

La caractérisation des hétérostructures par la MEIF est très efficace. La modélisation et l'utilisation des méthodes numériques constituent des outils appréciables pour la détermination des caractéristiques diélectriques des hétérostructures. Elles permettent une économie de moyens et de temps dans la conception et la prédiction des caractéristiques des hétérostructures.

Enfin, les hétérostructures que nous avons traitées sont des matrices avec des inclusions distribuées périodiquement. Il serait utile dans un travail ultérieur de traiter le cas des matériaux composites avec des distributions aléatoires d'inclusions, en géométrie tridimensionnelle (3D).

Résumé

Ce travail porte sur la caractérisation des hétérostructures par deux méthodes non destructives : la méthode de l'impédance équivalente pour des systèmes à géométrie simple et la méthode de la permittivité effective pour des matériaux à géométrie complexe. Les résultats de simulation obtenus avec chacune de ces méthodes sont validés expérimentalement sur des matériaux modèles. Dans le premier cas, les expressions de l'impédance équivalentes sont déterminées analytiquement pour diverses hétérostructures et des lois de mélanges donnant la permittivité et la résistivité effectives en fonction de la concentration d'inclusions et de la permittivité et la résistivité de chacun des constituants de l'hétérostructure ont été déduites. Pour illustrer cette méthode, des validations expérimentales ont été réalisées sur des structures « sandwich » et sur des échantillons contenant des inclusions alignées, en forme de tubes de section carrée, insérées dans une matrice en polymère, remplies d'air ou d'eau. Dans le second cas, la permittivité effective complexe est déterminée par une méthode numérique utilisant les équations intégrales de frontière et le code de calcul PHI3D, l'hétérostructure considérée étant constituée d'un matériau hôte et d'inclusions distribuées périodiquement. Il est montré également que cette méthode permet d'évaluer la présence d'inclusions et leur concentrations dans une structure donnée. Des validations expérimentales sur des échantillons en polymère comportant des cavités cylindriques, vides ou remplies d'eau, sont également présentées.

Abstract

This work deals with the characterisation of heterostructures by two nondestructive methods: (1) the equivalent electrical impedance method for systems of simple geometry; and (2) the method of the effective complex permittivity for systems of complicated geometry. The simulated results obtained using each one of both methods are experimentally validated. In the first case. The relationships of the equivalent impedance are analytically determined for various heterostructures, and mixture laws giving the effective dielectric permittivity and resistivity are also deduced in function of the concentration of inclusions and both the permittivity and resistivity of each component of the heterostructure. To illustrate this method, experimental validations are achieved on sandwich structures and on samples containing identical aligned inclusions, in the form of square section tubes, embedded in a polymer matrix and which are filled either by air or water. In the second case, the effective complex permittivity is computed by a numerical approach based on the boundary integral equation method (BIEM) and the PHI3D package. The considered. Heterostructure consisting of a host material and inclusions periodically distributed. It's also shown that this method enables to predict the presence of inclusions and their concentration in a given heterostructure. Experimental validations, carried out on samples composed of cylindrical cavities, filled either by water or air, embedded in a polymer matrix, are also presented.

ANNEXES

Tableau 1 : Matrice en Bakélite $e_m = 4,30$; inclusion en plexiglas $e_i = 2,10$;
fréquence $f = 100$ kHz

| Concentration β | e_e expérimental | e_e simulé |
|-----------------------|--------------------|--------------|
| 0 | 4,30 | 4,30 |
| 0,09 | 3,86 | 3,92 |
| 0,11 | 3,85 | 3,85 |
| 0,14 | 3,75 | 3,75 |
| 0,20 | 3,60 | 3,55 |
| 0,33 | 3,20 | 3,19 |
| 0,50 | 2,80 | 2,82 |
| 0,67 | 2,50 | 2,52 |
| 0,75 | 2,36 | 2,40 |
| 0,80 | 2,30 | 2,34 |
| 0,83 | 2,24 | 2,30 |
| 1,00 | 2,10 | 2,10 |

Tableau 2 : Matrice en Bakélite $e_m = 4,30$; inclusion en plexiglas $e_i = 2,10$;
fréquence $f = 1$ MHz

| Concentration β | e_e expérimental | e_e simulé |
|-----------------------|--------------------|--------------|
| 0 | 4,30 | 4,30 |
| 0,09 | 3,80 | 3,78 |
| 0,11 | 3,80 | 3,85 |
| 0,14 | 3,70 | 3,75 |
| 0,20 | 3,60 | 3,55 |
| 0,33 | 3,30 | 3,19 |
| 0,50 | 2,86 | 2,82 |
| 0,67 | 2,67 | 2,52 |
| 0,75 | 2,56 | 2,40 |
| 0,80 | 2,49 | 2,34 |
| 0,83 | 2,42 | 2,30 |
| 1,00 | 2,10 | 2,10 |

Tableau 3 : Matrice en Bakélite $e_m = 4,30$; inclusion Air $e_i = 1,00$;
fréquence $f = 100$ kHz

| Concentration β | e_e expérimental | e_e simulé |
|-----------------------|--------------------|--------------|
| 0 | 4,30 | 4,30 |
| 0,34 | 2,08 | 2,02 |
| 0,51 | 1,65 | 1,60 |
| 0,61 | 1,50 | 1,42 |
| 0,67 | 1,48 | 1,33 |
| 0,72 | 1,44 | 1,27 |
| 0,75 | 1,42 | 1,23 |
| 0,78 | 1,40 | 1,20 |
| 1,00 | 1,00 | 1,00 |

Tableau 4 : Matrice en Bakélite $e_m = 4,30$; inclusion Air $e_i = 1,00$; fréquence $f = 1$ MHz

| Concentration β | e_e expérimental | e_e simulé |
|-----------------------|--------------------|--------------|
| 0 | 4,30 | 4,3 |
| 0,34 | 2,05 | 2,02 |
| 0,51 | 1,69 | 1,60 |
| 0,61 | 1,55 | 1,42 |
| 0,67 | 1,49 | 1,33 |
| 0,72 | 1,45 | 1,27 |
| 0,75 | 1,45 | 1,23 |
| 0,78 | 1,45 | 1,20 |
| 1,00 | 1,00 | 1,00 |

Tableau 5 : Matrice en Bakélite $e_m = 4,3$; inclusion en plexiglas $e_i = 2,1$;
concentration $\beta = 0,33$

| Fréquence (Hz) | e_e expérimental | e_e simulé |
|----------------|--------------------|--------------|
| 200 | 3,46 | 3,19 |
| 500 | 3,46 | 3,19 |
| 1 000 | 3,44 | 3,19 |
| 2 000 | 3,43 | 3,19 |
| 5 000 | 3,42 | 3,19 |
| 10 000 | 3,41 | 3,19 |
| 20 000 | 3,39 | 3,19 |
| 50 000 | 3,38 | 3,19 |
| 100 000 | 3,36 | 3,19 |
| 200 000 | 3,34 | 3,19 |
| 500 000 | 3,32 | 3,19 |
| 1 000 000 | 3,29 | 3,19 |