N° d'ordre : 40539

Ecole Doctorale : Sciences Pour l'Ingénieur

THESE

présentée à

L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES & TECHNOLOGIES

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE

Spécialité Micro et Nano Technologies, Acoustique et Télécommunications

par

Qing LU

Caractérisation diélectrique de matériaux pulvérulents dans une large bande de fréquences micro-ondes

Soutenue le 16 juin 2011 devant la Commission d'Examen :

Président :	C. GAQUIERE	Professeur à l'Université de Lille 1
Rapporteurs :	F. OSSART	Professeur à l'UPMC Paris 06
	V. VIGNERAS	Professeur à l'Université de Bordeaux
Directeur de thèse :	T. LASRI	Professeur à l'Université de Lille 1
Co-encadrant de thèse :	L. DUBOIS	Maître de conférences à l'Université de Lille 1
Examinateurs :	S. VAUCHER	Chargé de Recherche au laboratoire EMPA de Thun, Suisse

Ce travail a été effectué à l'Institut d'Electronique, de Microélectronique et de Nanotechnologie (I.E.M.N.). Je tiens tout d'abord à adresser mes remerciements à Messieurs Alain CAPPY et Lionel BUCHAILLOT, qui ont été successivement les Directeurs de l'IEMN, de m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire.

En premier lieu, j'exprime ma profonde gratitude à mon directeur de thèse, Monsieur le Professeur Tuami LASRI, qui m'a proposé ce sujet de recherche et en a assuré la direction. Je tiens à saluer son courage, sa gentillesse et à le remercier de m'avoir guidé et supporté tout au long de ces années de thèse dans le groupe Microtechnologie et Instrumentation pour la Caractérisation Thermique et Electromagnétique (MITEC). Ses conseils et son dynamisme m'ont à chaque fois permis de rebondir dans les moments difficiles. Qu'il trouve ici, l'expression de ma sympathie et de ma reconnaissance.

Monsieur Luc DUBOIS, Maître de Conférences à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, a assuré le co-encadrant de ce travail en me faisant bénéficier de son expérience et de ses compétences, ce qui m'a permis de mener à bien ce travail. Qu'il trouve ici le témoignage de ma sincère reconnaissance pour tout ce qu'il m'a appris, pour sa patience, ses encouragements, sa gentillesse. Je lui exprime toute ma gratitude pour l'aide qu'il m'a apportée.

J'adresse mes vifs remerciements à Monsieur le Professeur Christophe GAQUIERE de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de thèse.

J'adresse mes sincères remerciements à Madame Valérie VIGNERAS, Professeur à l'Université de Bordeaux 1 et à Madame Florence OSSART, Professeur à l'Université de Paris 6, pour l'honneur qu'ils me font de juger ce travail en étant rapporteurs.

Aussi, mes remerciements s'adressent à Monsieur Sebastien VAUCHER, Chargé de Recherche au laboratoire EMPA pour avoir bien voulu également participer à l'évaluation de mon travail de thèse.

Je tiens à exprimer aussi ma reconnaissance envers Monsieur Erick PALECZNY, Monsieur Jean-François LEGIER, Monsieur Pierre-Yves CRESSON, Monsieur Kamel HADDADI, Monsieur David GLAY, Maîtres de conférences dans le groupe MITEC à

l'IEMN, qui m'ont accompagné dans ce travail. Je leur exprime toute ma gratitude pour l'aide qu'ils m'ont apportée et pour les discussions que nous avons eues.

Que mes camarades du groupe veuillent bien trouver ici l'expression de ma reconnaissance pour l'aide qu'ils m'ont apportée et la sympathie qu'ils m'ont témoignée. Qu'Oussama, MingMing, Abdelhatif, Nadine, Hind, et Zheng soient ainsi remerciés.

J'adresse également mes plus vifs remerciements à Madame Hélène DELSARTE, secrétaire du groupe MITEC, pour sa gentillesse et sa disponibilité.

Que l'ensemble des personnels administratifs et techniques soit assuré de mes sincères remerciements, en en particulier Madame Farah BENSAFIA du service d'accueil, Mesdames Michelle MIENS, Anne CALLEWAERT, Sylvie LABY et Monsieur Guillaume DEFOORT du service DAO, leur aide précieuse et leur professionnalisme.

Je remercie en particulier tous mes amis : Xin, Chang, Liu, Jiongjiong , Jing, Di, Ying, Ling, Nan, Mingdong, Xianglei, Xiao, Jiejia, qui m'ont apporté un soutien lors de ce long travail de thèse soient assurés de ma profonde reconnaissance.

Je tiens également à remercier sincèrement Madame Martine COPIN et Monsieur Georges COPIN pour leurs encouragements, leur soutien.

Enfin, je remercie mes parents pour leur soutien, leurs encouragements constants et pour m'avoir permis d'arriver jusqu'à la réalisation de cette thèse.

Sommaire

Introduction générale ..... **- 1 -**

Chapitre I
Généralités sur le frittage micro-onde et les techniques de caractérisation diélectrique de matériaux pulvérulents

I.1 Introduction ..... **- 7 -**

I.2 Elaboration des pièces mécaniques par frittage ..... **- 10 -**

I.2.1 Etapes de préparation et d'activation des poudres ..... - 11 -
I.2.2 Etapes de mise en forme ..... - 12 -
I.2.3 Etapes de frittage ..... - 13 -
I.2.3.1 Définition du frittage ..... - 13 -
I.2.3.2 Les différentes techniques de frittage ..... - 15 -
I.2.4 Etapes de finition et contrôle ..... - 17 -

I.3 Les matières premières du frittage ..... **- 19 -**

I.3.1 Les matières premières ..... - 19 -
I.3.1.1 Les métaux ..... - 19 -
I.3.1.2 Les céramiques ..... - 20 -
I.3.2 Les matériaux pulvérulents sélectionnés ..... - 21 -
I.3.2.1 Choix des matériaux : le carbure de silicium, l'alumine, l'aluminium ..... - 21 -
I.3.2.2 Les échantillons étudiés ..... - 25 -

I.4 Frittage par micro-ondes ..... **- 27 -**

I.4.1 Le principe du chauffage par micro-ondes ..... - 27 -
I.4.1.1 Cas des matériaux diélectriques à faibles pertes ..... - 28 -
I.4.1.2 Cas des matériaux diélectriques présentant des pertes ..... - 28 -
I.4.1.3 Cas des métaux ..... - 31 -
I.4.2 Application des micro-ondes au frittage ..... - 32 -
I.4.3 Suivis des trajectoires thermiques ..... - 34 -
I.4.3.1 Utilisation d'un dispositif radiométrique ..... - 34 -
I.4.3.2 Suivis de températures d'échantillons pulvérulents sous atmosphère contrôlée ..... - 37 -

I.5 Les propriétés diélectriques des matériaux pulvérulents ..... **- 43 -**

I.5.1 Techniques habituellement utilisées au Laboratoire ..... - 43 -
I.5.2 Les premiers résultats ..... - 45 -
I.5.2.1 Mesures en cellule coaxiale ..... - 45 -
I.5.2.2 Mesures en espace libre ..... - 47 -
I.5.2.3 Mesures par résonateur et ligne microruban ..... - 49 -

I.6 Conclusion ..... **- 53 -**

Bibliographie ..... **- 55 -**

Chapitre II
Caractérisations diélectriques large-bande de matériaux pulvérulents

II.1 Introduction ..... - 65 -

II.2 Mise en oeuvre d'une caractérisation diélectrique large-bande ..... - 68 -

II.2.1 Présentation de la méthode utilisée ..... - 69 -

II.2.1.1 Détermination de la constante de propagation : Méthode de Bianco-Parodi ..... - 69 -

II.2.1.2 Extraction de la permittivité complexe du matériau: modélisation de la structure de propagation par la SDA unidimensionnelle ..... - 73 -

II.2.2 Validation de la méthode à partir de simulations électromagnétiques ..... - 85 -

II.2.2.1 Lignes microrubans à vide sans porte-échantillon ..... - 85 -

II.2.2.2 Lignes microrubans à vide avec porte-échantillon ..... - 87 -

II.2.2.3 Lignes microrubans partiellement couvertes par un matériau ..... - 89 -

II.2.2.4 Détermination de la permittivité complexe d'un matériau ..... - 91 -

II.3 Conclusion ..... - 95 -

Bibliographie ..... - 96 -

Chapitre III
Application à la caractérisation diélectrique de matériaux pulvérulents.
Prospectives pour la caractérisation de poudres nanométriques

III.1 Introduction ..... - 101 -

III.2 Expérimentations ..... - 104 -

III.2.1 Mode opératoire ..... - 104 -
III.2.2 Mesure des paramètres S ..... - 105 -
III.2.3 Détermination de la constante de propagation ..... - 109 -
III.2.4 Extraction de la permittivité ..... - 110 -

III.3 Caractérisations diélectriques de matériaux pulvérulents dans la bande de fréquences : 50 MHz - 18 GHz ..... - 113 -

III.3.1 Tests sur matériaux solides : substrat Duroid 5880 et Plexiglass ..... - 113 -
III.3.2 Cas de matériaux pulvérulents ..... - 118 -
III.3.2.1 Poudres constituées d'un seul composant : SiC, Al_2O_3 et Al ..... - 118 -
III.3.2.2 Poudres composites SiC/Al_2O_3 et SiC/Al ..... - 123 -

III.4 Caractérisation diélectrique en espace libre ..... - 130 -

III.4.1 Principe ..... - 130 -
III.4.2 Calibrage du banc de mesure ..... - 133 -
III.4.3 Caractérisation de la poudre SiC ..... - 135 -

III.5 Etude de faisabilité pour la caractérisation de nanopoudres ..... - 139 -

III.5.1 Présentation de la structure coplanaire ..... - 139 -
III.5.2 Etude de la permittivité effective ..... - 141 -
III.5.3 Résultats ..... - 142 -

III.6 Conclusion ..... - 145 -

Bibliographie ..... - 146 -

Conclusion générale et perspectives ..... - 149 -

Introduction générale

La nature des matériaux que l'homme est capable d'élaborer et d'utiliser pour répondre à ses besoins est un marqueur le l'époque dans laquelle il vit. Aujourd'hui, nous assistons à une grande effervescence dans les milieux académique et industriel pour la création de nouveaux matériaux en réponse à des besoins très précis. En particulier les matériaux composites, dont la complexité et la fonctionnalité sont de plus en plus grandes, suscitent un grand intérêt. Dans ce cadre, les progrès constants de la technologie dans le domaine du chauffage micro-onde permettent d'entrevoir des applications dans le domaine du frittage pour la réalisation de matériaux composites. Ainsi, les études portant sur la compréhension des différentes interactions mises en jeu lors de l'élaboration de pièces mécaniques par frittage micro-onde de matériaux en poudre sont d'actualité.

Bien que très intéressante la technique de frittage micro-onde souffre néanmoins pour l'instant d'un manque de contrôle de la température. En effet, les systèmes de mesure de température actuellement disponibles sur le marché ne répondent pas suffisamment à ce besoin. Aussi, une collaboration entre l'E.M.P.A. (laboratoire Suisse spécialisé dans le domaine de la science des matériaux et des technologies durables) et l'I.E.M.N. (Institut d'Electronique, de Micrélectronique et de Nanotechnologie) a donc été initialisée il y a quelques années dans le but d'étudier la faisabilité du contrôle de température par radiométrie micro-onde. Cette technique non-intrusive permet en effet d'accéder à la température interne d'un corps. Une première étude a été menée à l'aide d'un dispositif radiométrique développé au laboratoire qui a permis de valider la possibilité d'un suivi non-intrusif de la trajectoire thermique (jusqu'à 300°C) de matériaux pulvérulents soumis à un gradient inverse de température. Ces premiers essais de suivis de la température par radiométrie micro-onde montrent que l'on peut obtenir des informations qui pourraient s'avérer utiles pour le contrôle de la température interne.

Lors d'un frittage par micro-ondes l'interaction entre le matériau et le champ électromagnétique se traduit d'un point de vue macroscopique par le paramètre de permittivité diélectrique. Ce paramètre va dépendre non seulement de la nature du matériau (composition chimique, structure, taille des grains, arrangement, densité,…) mais également de la fréquence micro-onde utilisée et de la température atteinte dans le matériau. Notons que ce paramètre est également d'une grande importance dans la mesure de la température radiométrique, il fixe le

degré d'émissivité au sein du matériau et intervient sur le champ de réception du capteur radiométrique. Aussi, la connaissance de la permittivité diélectrique des poudres et des matériaux en cours de frittage permettrait en particulier d'appréhender le processus du frittage par une modélisation macroscopique multi-physique. Malheureusement, peu d'informations sont actuellement disponibles à ce sujet. Pourtant, la connaissance de ce paramètre présente un grand intérêt dans de nombreux secteurs industriels (fabrication de matériaux composites, céramiques et polymères, industrie du verre,…) en particulier pour la conception de matériaux composites thermo-structuraux destinés à remplir des fonctions mécaniques à très hautes températures (500 à 2000°C) et qui peuvent être soumis à d'importants gradients thermiques dans le cas d'applications liées au secteur du transport, de l'aéronautique et du spatial.

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à la caractérisation hyperfréquence de matériaux simples et de matériaux composites non compactés réalisés à partir de mélanges (sous forme de poudres micrométriques) de différents constituants de base conférant ainsi au nouveau matériau des propriétés ou caractéristiques qu'il ne possède pas habituellement. Une attention particulière est portée aux mélanges comportant un taux important de particules métalliques pour la réalisation de pièces mécaniques ou micro-mécaniques par procédé de frittage sous rayonnement micro-onde. Les études de la permittivité diélectrique des matériaux sous investigation sont réalisées à partir de cellules de mesure originales. Celles-ci sont conçues à partir de structures de propagation large bande destinées en particulier à la caractérisation de faibles volumes de matériaux.

Le document est organisé autour de trois chapitres. Afin de situer le contexte de ces études, nous consacrons le premier à la présentation d'un état de l'art succinct dédié au frittage micro-onde. Nous donnons ensuite quelques résultats d'une étude réalisée lors de l'implantation du dispositif radiométrique, réalisé à l'IEMN, sur un four de type industriel installé sur le site de l'EMPA en termes de suivis de la température par radiométrie micro-onde. Nous montrons en particulier que la trajectoire thermique obtenue par radiométrie micro-onde dépend non seulement de la température réelle atteinte au sein du matériau mais aussi de son émissivité liée également à la permittivité diélectrique. Afin de mieux appréhender l'interaction des micro-ondes avec la nature pulvérulente de ces matériaux, ce chapitre se termine sur les premiers essais de mesure de permittivité diélectrique en utilisant les méthodes disponibles au Laboratoire : mesures en cellule coaxiale, mesures à distance en utilisant une antenne directive, puis des mesures sur un résonateur micro-ruban chargé. Nous

montrons qu'à partir de ces méthodes il est difficile d'obtenir une valeur de la permittivité complexe des poudres testées sans ambiguïté. Il est donc nécessaire de mettre au point une méthode alternative. Celle-ci fait l'objet du second chapitre du manuscrit.

Ainsi, dans le deuxième volet du mémoire, en réponse à cette problématique, nous proposons des cellules de mesure réalisées à partir de lignes microruban. Les avantages de cette technique résident dans la possibilité de mesure sur une une large bande de fréquences, la rapidité et la facilité de mise en œuvre. Après une description du principe général de la méthode de caractérisation en ligne de transmission développée, des simulations électromagnétiques à l'aide du logiciel Ansoft-HFSS (High Frequency Structure Simulator) sont décrites. Compte tenu des résultats très encourageants obtenus en simulation, la poursuite du projet est envisagée au travers de l'application de la méthode dans le domaine expérimental.

Enfin, le dernier chapitre présente la description du mode opératoire, les cellules réalisées et le banc de mesure complet. Les résultats de nombreuses campagnes de mesure sur divers matériaux en poudre sont donnés. En particulier, nous présentons les résultats de caractérisations diélectriques de matériaux tels que le plexiglass mais aussi des matériaux pulvérulents dans les bandes de fréquences : 30 MHz - 6 GHz et 50 MHz - 18 GHz. Afin de conforter nos résultats, nous avons également utilisé une autre technique de caractérisation diélectrique basée sur une mesure sans contact développée dans notre groupe de recherche (MITEC). La dernière partie de ce chapitre aborde la faisabilité d'une structure coplanaire pour la caractérisation de poudres de taille nanométrique.

Ce travail permet de fournir la constante diélectrique de matériaux micro-structurés en vue de l'établissement d'une première base de données qui demande à être enrichie pour répondre au cahier des charges imposé par les constructeurs de matériaux composites. Au terme de ce mémoire, nous dégageons les points forts de cette contribution à la caractérisation hyperfréquence de matériaux composites et proposons des perspectives pour la poursuite de ce passionnant projet de recherche.

Chapitre I

Généralités sur le frittage micro-onde et les techniques de caractérisation diélectrique de matériaux pulvérulents

Chapitre I

Généralités sur le frittage micro-onde et les techniques de caractérisation diélectrique de matériaux pulvérulents

I.1 Introduction ..... - 7 -

I.2 Elaboration des pièces mécaniques par frittage ..... - 10 -

I.2.1 Etapes de préparation et d'activation des poudres ..... - 11 -
I.2.2 Etapes de mise en forme ..... - 12 -
I.2.3 Etapes de frittage ..... - 13 -
I.2.3.1 Définition du frittage ..... - 13 -
I.2.3.2 Les différentes techniques de frittage ..... - 15 -
I.2.4 Etapes de finition et contrôle ..... - 17 -

I.3 Les matières premières du frittage ..... - 19 -

I.3.1 Les matières premières ..... - 19 -
I.3.1.1 Les métaux ..... - 19 -
I.3.1.2 Les céramiques ..... - 20 -
I.3.2 Les matériaux pulvérulents sélectionnés ..... - 21 -
I.3.2.1 Choix des matériaux : le carbure de silicium, l'alumine, l'aluminium ..... - 21 -
I.3.2.2 Les échantillons étudiés ..... - 25 -

I.4 Frittage par micro-ondes ..... - 27 -

I.4.1 Le principe du chauffage par micro-ondes ..... - 27 -
I.4.1.1 Cas des matériaux diélectriques à faibles pertes ..... - 28 -
I.4.1.2 Cas des matériaux diélectriques présentant des pertes ..... - 28 -
I.4.1.3 Cas des métaux ..... - 31 -
I.4.2 Application des micro-ondes au frittage ..... - 32 -
I.4.3 Suivis des trajectoires thermiques ..... - 34 -
I.4.3.1 Utilisation d'un dispositif radiométrique ..... - 34 -
I.4.3.2 Suivis de températures d'échantillons pulvérulents sous atmosphère contrôlée ..... - 37 -

I.5 Les propriétés diélectriques des matériaux pulvérulents ..... - 43 -

I.5.1 Techniques habituellement utilisées au Laboratoire ..... - 43 -
I.5.2 Les premiers résultats ..... - 45 -
I.5.2.1 Mesures en cellule coaxiale ..... - 45 -
I.5.2.2 Mesures en espace libre ..... - 47 -
I.5.2.3 Mesures par résonateur et ligne microruban ..... - 49 -

I.6 Conclusion ..... - 53 -

Bibliographie ..... - 55 -

I.1 Introduction

Depuis quelques années, les chercheurs et industriels portent un vif intérêt à la compréhension des différentes interactions mises en jeu lors de l'élaboration de pièces mécaniques par frittage de matériaux en poudre et cherchent surtout à déterminer les paramètres (composition, structure et procédé) qui conditionnent les propriétés et les performances de ces matériaux. La qualité finale d'une pièce mécanique dépend de l'ensemble des étapes qu'elle a subi : choix de la matière première (qui se présente sous forme pulvérulente), compression et mise en forme de celle-ci, puis consolidation lors du frittage (soudage des grains à haute température) avant l'étape de finition et de contrôle. La qualité des pièces dépend donc de nombreux paramètres : la taille des grains, l'arrangement, le degré de compaction et la température qui est déterminante lors du processus de frittage.

Le frittage est une technique de fabrication de pièces mécaniques consistant à chauffer les poudres sans les mener jusqu'à la fusion. Sous l'action de la chaleur, le matériau pulvérulent qui constitue la pièce est transformée en un matériau compact. Le frittage est couramment utilisé pour obtenir la densification de matériaux céramiques et récemment dans la métallurgie des poudres. Afin d'obtenir des matériaux plus homogènes, avec moins d'impuretés tout en réduisant les coûts, l'une des solutions envisagées est le frittage par micro-onde.

Dans ce premier chapitre, nous définissons tout d'abord le contexte de notre étude en présentant les généralités sur la fabrication des pièces mécaniques par frittage. Dans une deuxième partie, nous présentons les matières premières utilisées pour le frittage, puis les matériaux utilisés dans le projet. La technique du frittage par micro-ondes est ensuite abordée ainsi que la problématique du contrôle de température. Enfin nous abordons les propriétés diélectriques des matériaux pulvérulents ainsi que les techniques de caractérisation habituellement utilisées.

I.2 Elaboration des pièces mécaniques par frittage

Quelle que soit l'application visée, le procédé d'élaboration reste sensiblement le même, avec 4 grandes étapes décrites par l'organigramme de la **Figure I-1** : la préparation et l'activation des poudres, suivie par une étape de mise en forme, puis une étape de frittage et enfin une étape de finition et de contrôle.

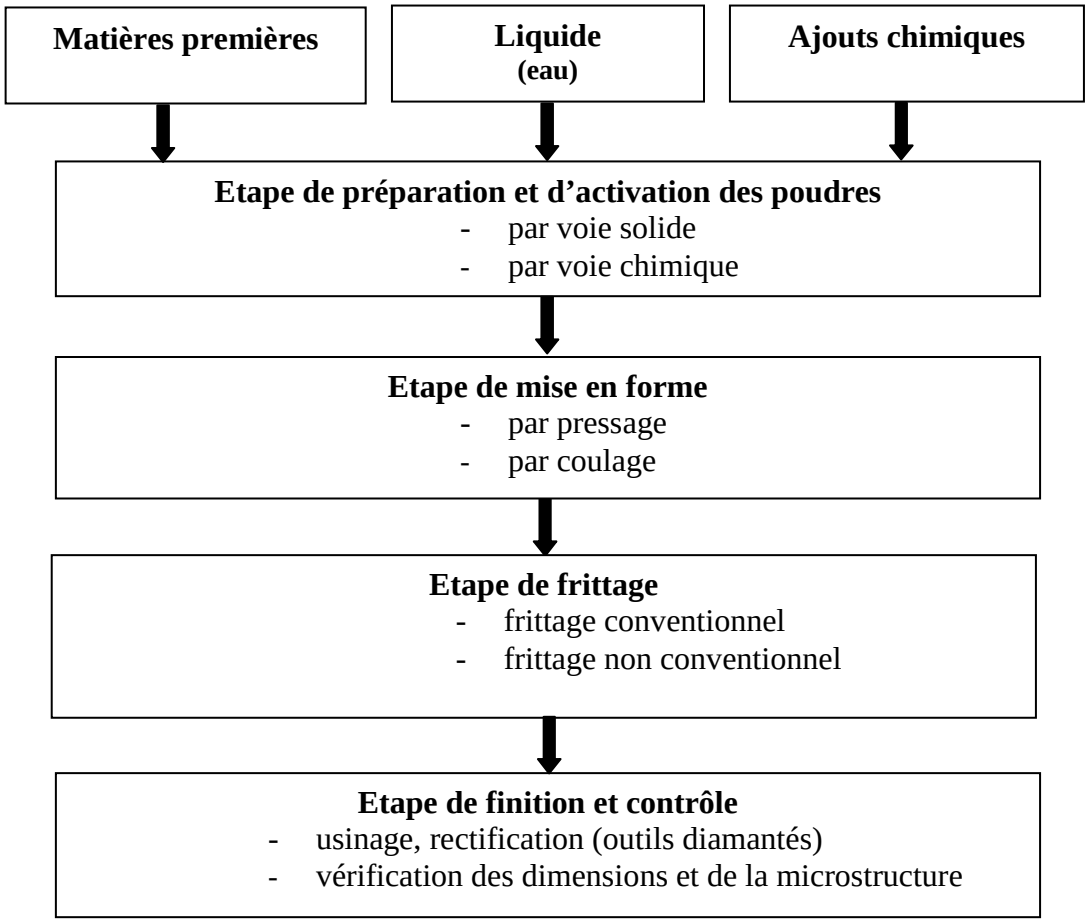


Figure I-1 : Les 4 étapes principales d'élaboration de pièces mécaniques par frittage.

Nous allons maintenant décrire les différentes étapes du processus en les commentant par quelques mots.

I.2.1 Etapes de préparation et d'activation des poudres

Les poudres utilisées pour le frittage doivent satisfaire certains critères conditionnant les propriétés finales du produit. Une poudre idéale peut être décrite comme étant formée de grains de petite taille, de forme régulière, avec une répartition de taille très étroite. Le problème principal concernant les matières premières de base, sous forme de poudres, est la difficulté d'évaluer les paramètres fondamentaux traduisant la réactivité du matériau vis-à-vis de ceux avec lesquels il est amené à réagir. L'histoire thermique du matériau joue un rôle très important lors du frittage. La forme et la taille des grains dépendent à la fois de la nature chimique des matériaux et de la méthode d'obtention du milieu pulvérulent. Il existe deux méthodes pour parvenir à la synthèse des matières premières.

Le premier procédé est une préparation mécanique par voie solide : les matières premières de base sous forme pulvérulente (oxydes, carbonates, nitrates) sont mélangées puis broyées afin de disperser les agglomérats de grains. Vient ensuite l'opération de chamottage ou calcination qui consiste à faire subir au mélange pulvérulent un cycle thermique au cours duquel va se former la phase cristalline recherchée. A l'issue du chamottage, le matériau de base de la céramique est disponible **[HAU 96]**.

Le second procédé est une préparation par voie chimique. Elle regroupe un ensemble de techniques de synthèse dont l'idée consiste à former des précipités ou des gels à partir d'une solution homogène contenant les cations désirés, puis à calciner ces précipités pour former la phase et la microstructure recherchées. Dans la majorité des cas, ces méthodes de synthèse permettent d'obtenir des poudres dont les caractéristiques (finesse, homogénéité, frittabilité…) sont nettement supérieures à celles obtenues par chamottage **[HAU 96]**.

Une fois les matières premières synthétisées, une nouvelle phase de mélange et de broyage est alors entreprise durant laquelle (en fin de broyage) peuvent être ajoutés des liants qui favorisent l'agglomération des grains.

I.2.2 Etapes de mise en forme

Au cours de l'opération de mise en forme, on obtient le produit de la compression dit "comprimé", "pièce à vert" ou "cru" qui est constitué des particules de poudre enrobées ou non d'un liant organique. La compression permet d'arranger les grains du matériau les uns à côté des autres, de diminuer la porosité et de donner une tenue mécanique au produit avant le frittage. Le produit est comprimé dans un moule qui préfigure la forme définitive de la pièce à réaliser.

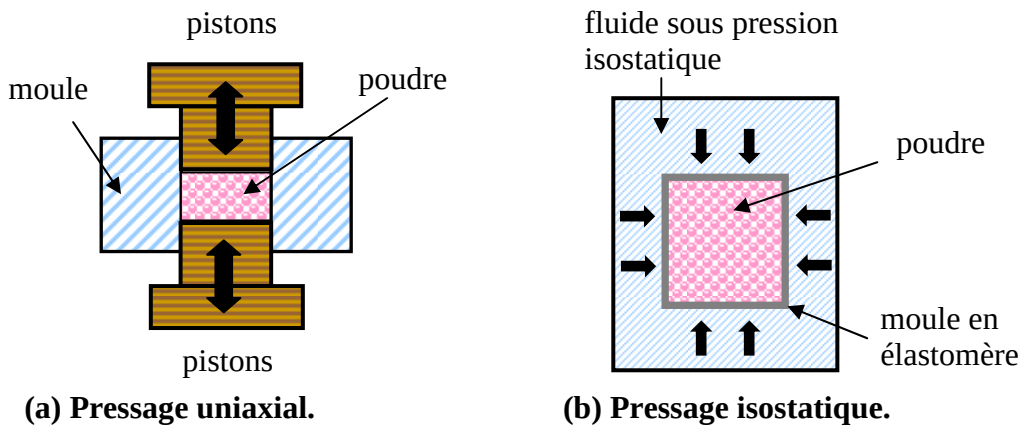
Le choix de la technique de mise en forme dépend essentiellement de la structure géométrique de la pièce finale (taille, forme et complexité). Il y a plusieurs méthodes de mise en forme d'une poudre, par exemple par coulage en barbotine, par extrusion, par calibrage ou pressage.

La technique du coulage consiste à injecter une barbotine contenant le moins d'eau possible dans des moules en plâtre. Le coulage sous racle permet d'obtenir de grandes feuilles de céramique d'épaisseur généralement inférieure au millimètre. Le procédé de mise en forme par calibrage est une technique de moulage tamponnage. Ce procédé permet de former des pièces atteignant 400 à 500 mm de diamètre. L'extrusion est utilisée pour la mise en forme de pièces de section régulière. Un piston force la pâte à travers une buse de sortie dont la forme correspond au profil désiré **[CAR 99]**.

Une autre technique de mise en forme est le pressage à froid ou à chaud :

- le pressage uniaxial (**Figure 1-2 (a)**) : la compaction de la poudre dans une matrice rigide est effectuée à l'aide d'un piston selon une direction privilégiée. Ce type de pressage convient à des pièces de formes simples.

- le pressage isostatique (**Figure I-2 (b)**) : la compaction de la poudre insérée dans un moule flexible est réalisée suivant toutes les directions par l'intermédiaire d'un fluide à base d'huile et d'eau. Ce type de pressage est particulièrement adapté aux pièces de formes complexes.



(a) Pressage uniaxial. **(b) Pressage isostatique.**

Figure I-2 : Deux types de pressage.

I.2.3 Etapes de frittage

Après leur mise en forme, les compacts de poudres (pièce à vert) doivent être plus ou moins densifiés suivant l'application désirée. Sous l'action de la température, la troisième étape permet de transformer les compacts en une masse solide, d'éliminer les liants organiques d'une part, et de densifier le matériau d'autre part. Des liaisons chimiques se forment alors entre les particules et les vides ou pores sont plus ou moins comblés. Les températures appliquées sont généralement inférieures à la température de fusion du constituant principal (entre 0,4 et 0,6 fois la température de fusion). Cependant, il existe souvent un constituant mineur qui forme une phase liquide, facilite la diffusion de la matière et accélère le frittage.

De nombreux paramètres influent sur la qualité du frittage : la température, la pression mais aussi la durée de l'opération, la granulométrie, la morphologie des poudres, la présence ou non d'une phase liquide. Le frittage fait actuellement l'objet de nombreuses recherches.

I.2.3.1 Définition du frittage

Nous trouvons deux définitions du frittage :

- « Le frittage est un processus faisant évoluer par traitement thermique un système constitué de particules individuelles (ou un agglomérat poreux), avec ou sans pression exercée, de sorte qu'au moins certaines des propriétés du système (sinon toutes) soient

modifiées dans le sens d'une réduction de l'énergie libre globale du système. Cette évolution entraîne une diminution importante (sinon complète) de la porosité initiale. Le processus suppose qu'au moins une phase solide existe constamment pendant tout le traitement thermique, de façon à conserver une certaine stabilité de forme et de dimension du système considéré. » Définition proposée par M. Cizeron **[CIZ 68]**

- « Le frittage est la consolidation par action de la chaleur d'un agglomérat granulaire plus ou moins compact, avec ou sans fusion d'un ou de plusieurs de ses constituants. » Définition proposée lors d'une série de conférences prononcées en 1968 à l'Institut de Céramique Française et à l'École Nationale Supérieure de Céramique Industrielle de Sèvres**.**

En résumé, le frittage permet de transformer un comprimé de poudre (corps cru) en une masse solide et cohérente sous l'effet de la température.

La force motrice lors du frittage est la réduction d'énergie libre de surface du système **[GOU 03]**. Ceci est obtenu par la réduction de l'aire des surfaces et des interfaces du compact selon deux processus :

- la densification : remplacement des interfaces gaz-solide au profit d'interfaces solide-solide d'énergie libre inférieure (joints de grains). Cette soudure des grains conduit à une augmentation de la cohésion du matériau, c'est le frittage.

- le grossissement des grains : réduction de l'étendue des joints de grains, c'est-à-dire conversion d'un grand nombre de petites particules en un nombre plus faible de grosses particules. Le grossissement des grains peut être limité par l'ajout de dopants appropriés gênant le mouvement des joints.

Au cours du traitement thermique d'un matériau pulvérulent, ces deux mécanismes peuvent se produire simultanément.

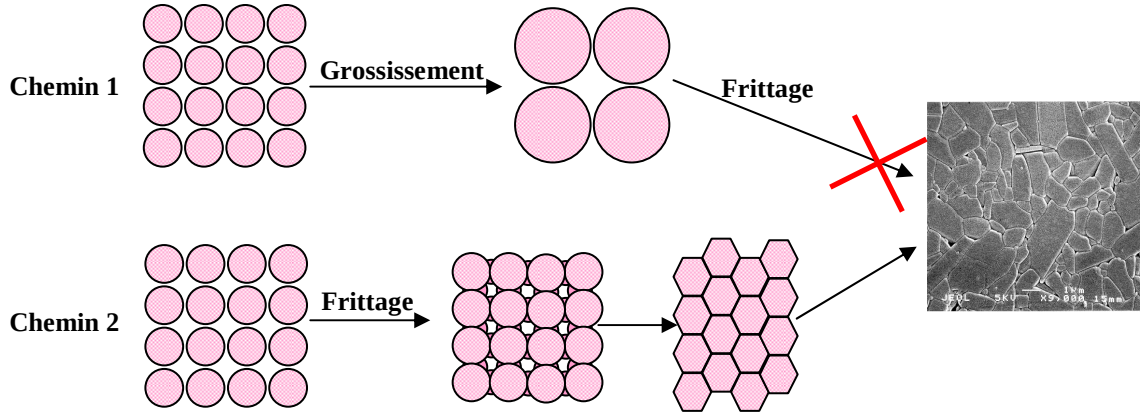


Figure I-3 : Les différentes évolutions d'une poudre soumise à un traitement thermique.

La **Figure I-3** montre les deux évolutions possibles lors du chauffage :

- Chemin 1 : les grains grossissent, se soudent et se densifient.
- Chemin 2 : les grains se soudent, se densifient et grossissent.

La densification et le grossissement des grains bien qu'ayant la même origine, sont deux processus concurrents du point de vue de l'élaboration d'une pièce. Il faut, dans la mesure du possible, favoriser le chemin 2 au détriment du premier puisque des grains anormalement gros entraînent une diminution de la résistance des pièces en agissant comme des concentrateurs de contraintes **[GOU 03, BER 05]**. Afin d'illustrer ces phénomènes, la **Figure I-4** donne un exemple de la structure d'une pastille d'alumine observée au cours d'un processus de frittage **[GRE 72]**.

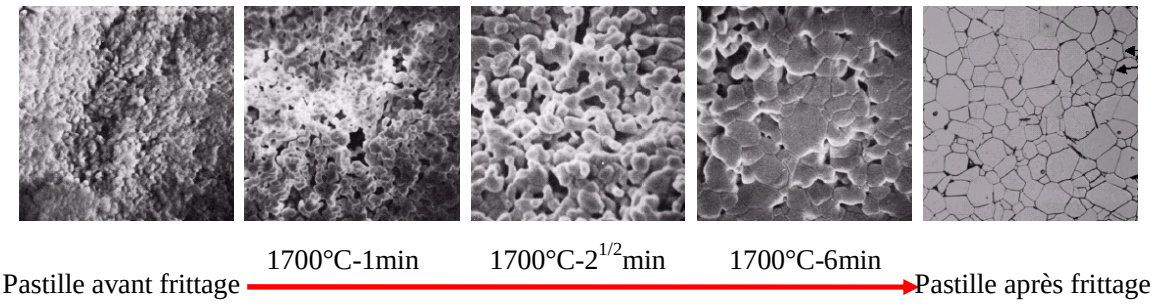


Figure I-4 : Evolution du processus de frittage d'une pastille d'alumine observée au microscope.

I.2.3.2 Les différentes techniques de frittage

D'un point de vue physico-chimique, on distingue deux types de frittage **[BER 05]**:

- en phase solide : tous les constituants restent à l'état solide tout au long du frittage. La densification passe par un changement de forme des grains et le transport de matière se produit principalement par diffusion en phase solide.

- en phase liquide : il y a formation d'un liquide visqueux qui remplit plus ou moins complètement les espaces poreux du compact initial. La densification se produit principalement par mise en solution et reprécipitation du solide, permettant un transport de matière rapide.

D'un point de vue technique, on distingue plusieurs procédés de frittage :

- le frittage naturel durant lequel aucune contrainte externe n'est appliquée. Ce procédé est simple mais nécessite des températures élevées qui peuvent entraîner une croissance granulaire importante pouvant à son tour empêcher l'élimination totale de la porosité **[RIC 98]**.

- le frittage sous charge ou pressage à chaud (HP=hot pressing) **[MOS 85]** uniaxial en matrice. Il permet d'obtenir des densités élevées à plus basses températures, ce qui, combiné avec la pression, prévient une croissance granulaire trop importante. Mais il nécessite un équipement lourd et la géométrie des échantillons est limitée.

- le frittage à pressage isostatique à chaud (HIP=hot isostatic pressing) **[ROU 93]**. Des pressions de gaz élevées (jusqu'à 200 MPa) permettent d'éliminer rapidement à relativement basses températures la porosité fermée d'échantillons pré frittés ou de fritter des comprimés crus encapsulés dans une enveloppe étanche au gaz (ex: quartz). Cela permet d'avoir une croissance granulaire limitée, des densités élevées, des échantillons de géométries complexes. Mais cela nécessite un équipement très lourd et des problèmes souvent liés à l'encapsulation peuvent se produire.

- le frittage-forgeage **[VEN 87]** où le matériau est déformé uniaxialement sans constriction latérale ce qui permet d'éliminer par les contraintes de cisaillement générées certains gros défauts introduits lors du compactage. Cependant un équipement lourd est nécessaire et la géométrie des échantillons est limitée.

- le frittage à vitesse de retrait contrôlée (RCS: rate controlled sintering) **[OBR 90, ALL 90]**. Cette technique vise l'obtention d'une microstructure et d'une densité précises en contrôlant la pression et la température en fonction de la vitesse de densification instantanée.

- le frittage à chaud avec un champ électrique pulsé (SPS = Spark Plasma Sintering) **[ZHA 04].** Cette technique assez récente vise à l'obtention d'une densité élevée dans un temps relativement court (5-10 minutes) grâce à une vitesse de chauffage et de refroidissement élevée et l'application de pressions importantes (100-200 MPa). La rapidité de frittage permet souvent de minimiser la croissance des grains et d'atteindre une densité proche de 100%.

- le frittage par micro-ondes **[SUT 89]**. La spécificité de cette technique se traduit, comme pour la méthode SPS, par des temps d'élaboration généralement très courts, de l'ordre de quelques minutes. Le frittage par micro-onde peut également conduire à des microstructures particulières.

Les propriétés d'une pièce mécanique sont fortement liées aux défauts microscopiques tels que les pores (frittage incomplet, porosité résiduelle), les agglomérats (dus à la matière première ou au procédé de mise en forme) ou les impuretés chimiques (des matières premières ou dues aux procédés d'élaboration). Nos travaux tentent d'éliminer ces imperfections afin d'obtenir des matériaux plus homogènes, avec moins d'impuretés tout en réduisant les coûts. Dans cette optique le frittage par micro-onde est l'une des solutions envisagées.

I.2.4 Etapes de finition et contrôle

L'étape de finition et contrôle entrant dans l'élaboration est essentiellement un contrôle de qualité de la pièce. Pour évaluer ses performances, le produit subit des contrôles dimensionnels et microstructuraux (taille de grains, structure des joints de grains, porosité) ainsi qu'une détection des défauts éventuels (hétérogénéités, microfissures, impuretés…) **[GER 96]**.

Pour devenir un composant mécanique ou électrique, le produit doit encore subir de nombreuses transformations spécifiques à chaque cas. Les finitions comprendront par exemple des opérations d'usinage (par tonnelage pour casser les angles, par rectification pour maîtriser des états de surface et des épaisseurs d'entrefers, par laser ou jet de sable), des poses d'électrodes et de connexions, (par trempage, peinture ou sérigraphie suivie de cuisson, par soudure électrique, soudure à la vague), des enrobages par des résines déposées par trempage et polymérisation, des résines moulées, etc **[HAU 96]**.

I.3 Les matières premières du frittage

I.3.1 Les matières premières

Le frittage est utilisé depuis une cinquantaine d'années par les céramistes, mais il n'est pas spécifique à la fabrication des céramiques, il est de plus en plus utilisé par les métallurgistes **[EUD 94]**. Les poudres sont caractérisées par leur composition (nature chimique, impuretés, défauts, …), leurs propriétés de surface qui en découlent, la taille et la forme des grains, la répartition granulométrique, la proportion d'agglomérats, …

Les poudres industrielles peuvent être des métaux purs et des alliages, des non-métaux ou des composés métalliques tels que les oxydes ou les carbures ; le mélange comprend, en outre, une faible proportion d'un lubrifiant solide. Voici quelques exemple, de matériaux pulvérulents disponibles sur le marché :

- plastique (Nylon, ABS, polycarbonate, Nylon composite, polystyrène). L'étude du frittage de ces matériaux ne sera pas abordée dans le cadre de cette thèse.

- métal (cuivre, fer, aluminium, or, acier...)

- céramique (silice, quartz, verre de silice, zircone, alumine, carbure de silicium...)

I.3.1.1 Les métaux

Les métaux sont en général des solides cristallins dans les conditions normales de température et de pression. Ils ont toujours un nombre d'oxydation positif et ne forment donc que des cations. La plupart du temps, les métaux sont extraits sous forme minérale plus ou moins cristallisée dans leurs minerais et presque toujours combinés à un ou plusieurs autres atomes. Dans le **Tableau I-1** nous comparons trois types de métaux purs couramment utilisés dans l'industrie.

Métal	Symbol chimique	Propriété physique			Propriété électronique (constante diélectrique)
		Masse volumique	Conductivité thermique	T° fusion	
Cuivre	Cu	8,96 $g \cdot cm^{-3}$	401 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	1084,62 °C	~1
Fer	Fe	7,87 $g \cdot cm^{-3}$	80,2 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	1538 °C	~1
Or	Au	19,3 $g \cdot cm^{-3}$	317 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	1064,18 °C	~1

Tableau I-1 : Caractéristiques de trois métaux.

I.3.1.2 Les céramiques

La plupart des céramiques sont des matériaux polycristallins, c'est à dire comportant un grand nombre de microcristaux ou grains bien ordonnés reliés par des zones moins ordonnées, que l'on appelle les joins de grains. Les propriétés des céramiques dépendent de la structure électronique (nature des atomes et des liaisons) mais également de la structure cristalline (phase cristalline et présence de défauts). Les matériaux céramiques présentent une caractéristique essentielle par rapport à d'autres matériaux : les atomes ou constituants de leur réseau cristallin sont en général très solidement liés entre eux par des liaisons chimiques fortes. Nous présentons dans le **Tableau I-2** trois matériaux céramiques : le dioxyde de titane, le dioxyde de silicium, la zircone.

Métal	Symbol chimique	Propriété physique			Propriété électronique (constante diélectrique)
		Masse volumique	Conductivité thermique	T° fusion	
Dioxyde de Titane	TiO_2	3,9 $g \cdot cm^{-3}$	2,5 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	1855 °C	3,8
Dioxyde de silicium	SiO_2	2,6 $g \cdot cm^{-3}$	6,8 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	1650 °C	4,2
Zircone	ZrO_2	5,9 $g \cdot cm^{-3}$	7 $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	2715 °C	12

Tableau I-2 : Caractéristiques des trois matériaux céramiques.

I.3.2 Les matériaux pulvérulents sélectionnés

I.3.2.1 Choix des matériaux : le carbure de silicium, l'alumine, l'aluminium

A l'origine les pièces mécaniques se présentent sous la forme de poudres compressées. Mais, afin de faciliter les essais de faisabilité de mesure de température lors des opérations de frittage nous avons travaillé avec des échantillons pulvérulents non compressés.

Pour effectuer une sélection parmi les nombreux matériaux pulvérulents qui étaient disponibles à l'EMPA (Laboratoire Fédéral de Suisse), nous nous sommes intéressés à trois propriétés:

- La conductivité thermique qui fixe l'amplitude des gradients thermiques à l'intérieur de l'échantillon.

- La transmission des micro-ondes afin de déterminer l'ordre de grandeur du volume de poudre qui peut contribuer à la mesure de la température radiométrique.

- La transmission des ondes infrarouges afin de comparer les températures mesurées par radiométrie micro-onde à celles obtenues par capteurs infrarouges habituellement employés.

Nous avons sélectionné trois matériaux de caractéristiques très différentes : l'alumine (Al_20_3), le carbure de silicium (SiC) et l'aluminium (Al) (**Tableau I-3**). Les caractéristiques indiquées dans ce tableau sont données à titre indicatif et correspondent aux matériaux massifs.

Echantillon	**Transmission infrarouge**	**Transmission micro-onde**	**Conductivité thermique**
Al_2O_3	Bonne	Très bonne	Mauvaise
SiC	Mauvaise	Mauvaise	Très bonne
Al	Mauvaise	Très mauvaise	Excellente

Tableau I-3 : Caractéristiques des trois matériaux pulvérulents retenus.

➢ Le Carbure de Silicium

A l'état naturel, le carbure de silicium (SiC) se trouve uniquement dans les météorites. Afin d'en obtenir une grande quantité, il doit donc être synthétisé. Il est produit industriellement à partir du carbone et du dioxyde de silicium, qui réagissent selon l'équation suivante :

$$SiO_2 + 3\,C \rightarrow SiC + 2\,CO \qquad \textbf{I-1}$$

Le SiC se présente principalement sous deux formes : α-SiC et β-SiC. Le SiC commercial est principalement constitué de β-SiC (3C) et de α-SiC sous la forme 2H, 4H, 6H et 15R. Les lettres C, H et R sont utilisées pour indiquer respectivement que la structure est Cubique, Hexagonal ou Rhombique **[RAB 99, LI 01]**. Lors d'une production en masse, il est souvent difficile de contrôler le type de structure qui sera obtenue. Dans le cadre de notre étude, nous avons eu à notre disposition du SiC-6H qui est donc de type α.

Ce matériau présente des propriétés remarquables : grande dureté, bonne résistance aux chocs thermiques, grande conductivité, faible dilatation thermique, excellente inertie chimique. Il trouve des applications comme : élément réfractaire, résistance chauffante, outil de coupe, pièce de frottement, joint d'étanchéité des pompes à eau et support de catalyseur.

Le SiC présente également des propriétés semi-conductrices découvertes récemment et son utilisation en électronique ne cesse de grandir depuis une dizaine d'années **[NEU 01, CEA 01]**.

Propriétés	3C-SiC	6H-SiC	Si	GaAs
Bande Interdite (eV)	2,3	3,0	1,1	1,4
Point de fusion (°C)	1800	1800	1420	1240
Stabilité physique	excellente	excellente	bonne	assez bonne
Mobilité des électrons ($cm^2.V^{-1}.s^{-1}$)	1000	600	1350	8000
Mobilité des trous ($cm^2.V^{-1}.s^{-1}$)	40	40	480	300
Tension de claquage (10^6 $V.cm^{-1}$)	4,0	4.0	0,3	0,4
Conductivité Thermique ($W.cm^{-1}.K^{-1}$)	3-5	3-5	1,5	0,5
Vélocité de saturation (10^7 $cm.s^{-1}$)	2,5	2,0	1,0	1,2
Constante diélectrique	9,7	9,7	12	11,5

Tableau I-4 : Propriétés du SiC comparées à celles d'autres semi-conducteurs (à T= 25 °C).

Le **Tableau I-4** présente quelques propriétés du SiC comparées à celles d'autres semi-conducteurs. Il est à noter que dans certains domaines il présente des propriétés plus intéressantes que le silicium. En effet, c'est un matériau semi-conducteur idéal pour travailler à haute tension puisqu'il a un champ de claquage au moins 10 fois supérieur. De plus, grâce à sa large bande interdite, le SiC peut être utilisé à de hautes températures (>600°C) alors que les composants à base de silicium sont limités à 150°C.

- **L'Alumine**

L'alumine ou oxyde d'aluminium (Al_20_3) représenterait plus de 1,5% de la masse de la croûte terrestre, il existe à l'état naturel dans la bauxite, sous forme d'alumine hydratée, mélangée avec de l'oxyde de fer. L'extraction de l'alumine de la bauxite est réalisée suivant un procédé chimique appelé procédé Bayer. Ce procédé consiste à dissoudre l'alumine et non les impuretés avec de la soude à chaud, puis les impuretés sont séparées de la liqueur d'alumine par décantation et filtration. En refroidissant et en diluant la liqueur, la réaction est inversée, il y a précipitation d'un hydrate d'alumine. Ce dernier est enfin calciné afin de produire de l'alumine.

Propriété de Al_2O_3	**Valeur**
Point de fusion	2 054 ± 6 °C
Point d'ébullition	3 000 °C
Coefficient de dilatation à 25 °C	7,1 10^{-6} K^{-1}
Conductivité thermique à 25 °C	0,46 $J.cm^{-1}.s^{-1}K^{-1}$
Chaleur spécifique à 25 °C	0,753 $J.g^{-1}.K^{-1}$
Constante diélectrique à 25 °C	10,6
Résistivité à 14 °C	10^{19} Ω.cm

Tableau I-5 : Propriétés de l'Alumine.

Le **Tableau I-5** donne quelques propriétés remarquables : bonne tenue mécanique aux températures élevées, grande résistivité électrique, grande dureté, bonne résistance à l'usure et inertie chimique. En particulier, l'alumine est un matériau biocompatible à faibles pertes diélectriques et à faible conductivité thermique, utilisé pour des applications très diverses, par exemple, comme substrat dans la conception de circuits électroniques hyperfréquences, dans les lampes à vapeur de sodium, pour la fabrication de prothèses, de membranes de séparation isotopiques et de filtration... **[SUG 98, PRU 01, COR 03]**

- **L'Aluminium**

L'aluminium (Al) est obtenu par électrolyse de l'alumine. C'est un matériau possédant des propriétés et des qualités uniques. Il est mou, léger, durable, souple, flexible, alliable et recyclable presque à l'infini sans que sa qualité n'en soit altérée. De plus, l'aluminium a une densité (2,7) (**Tableau I-6**) environ trois fois plus faible que celle de l'acier ou du cuivre ; il est malléable, ductile, facilement usinable et modulable. Il possède une excellente résistance à la corrosion et une grande longévité.

Propriété de Al	**Valeur**
Point de fusion	660,32 °C
Point d'ébullition	2519 °C
Conductivité thermique	237 $W.m^{-1}.s^{-1}K^{-1}$
Conductivité électrique	37,7 10^6 $S{\cdot}m^{-1}$
Chaleur massique	900 $J.kg^{-1}.K^{-1}$
Dureté	1,5
Masse volumique	2,6989 $g.cm^{-3}$

Tableau I-6 : Propriétés de l'Aluminium.

Ce matériau courant est très utilisé dans les biens de consommations et d'équipements tels que les transports, l'emballage, le matériel électrique, la construction et le bâtiment. L'association de ce matériau à des céramiques (matériaux composites) permet d'obtenir un matériau léger et très résistant utilisé pour des applications aérospatiales, militaires ou encore dans l'automobile **[MIL 04, YE 05]**.

I.3.2.2 Les échantillons étudiés

Nous avons travaillé avec des échantillons pulvérulents de carbure de silicium, d'aluminium et d'alumine pure, ainsi qu'avec des mélanges réalisés à partir de ces trois éléments de base.

Les clichés obtenus au microscope à balayage électronique (**Figure I-5)** permettent de constater que la taille des grains des échantillons sélectionnés se situe en moyenne autour de 100 µm. Les grains d'aluminium présentent une forme allongée et arrondie due au procédé d'élaboration. Contrairement au carbure de silicium et à l'alumine qui après synthétisation sont broyés et tamisés, l'aluminium a subi une atomisation dans l'eau. Ce matériau étant ductile de petites paillettes résulterait d'un broyage ce qui est inadapté à la fabrication de pièces frittées. Les poudres d'aluminium sont donc obtenues à partir du métal liquide qui est dispersé en fines gouttelettes avant d'être solidifié rapidement dans un gaz ou dans l'eau **[GAL 03]**.

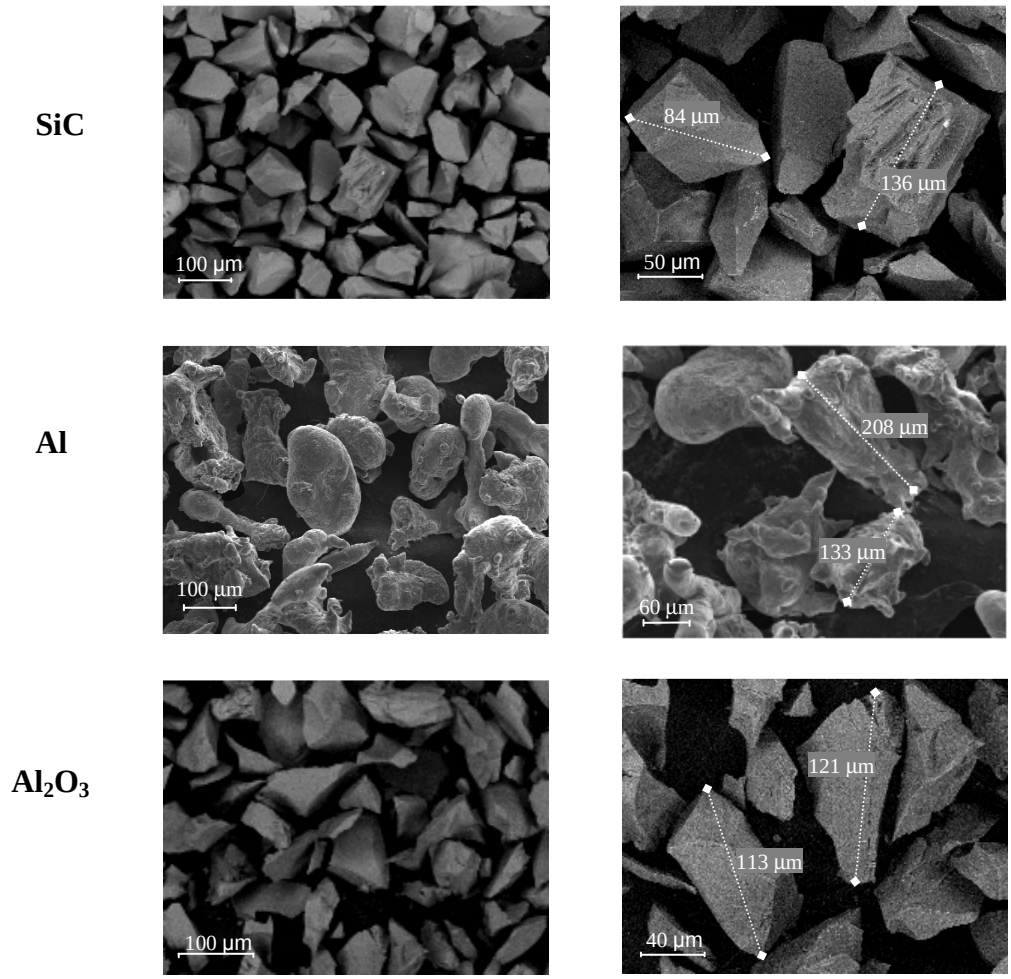


Figure I-5 : Photographies obtenues au MEB des échantillons pulvérulents de SiC, d'Al et d'Al_20_3.

I.4 Frittage par micro-ondes

I.4.1 Le principe du chauffage par micro-ondes

Lorsque des matériaux sont irradiés par une onde électromagnétique, plusieurs comportements sont possibles selon que ces matériaux sont transparents, absorbants ou réfléchissants (**Figure I-6**). L'origine de ces différents comportements est liée à la nature de la matière qui est constituée de charges mobiles (caractérisées par une conduction σ) et par des charges fixes (caractérisées par la permittivité complexe : ε^*) qui peuvent s'orienter plus ou moins sous l'effet d'un champ électrique ou magnétique.

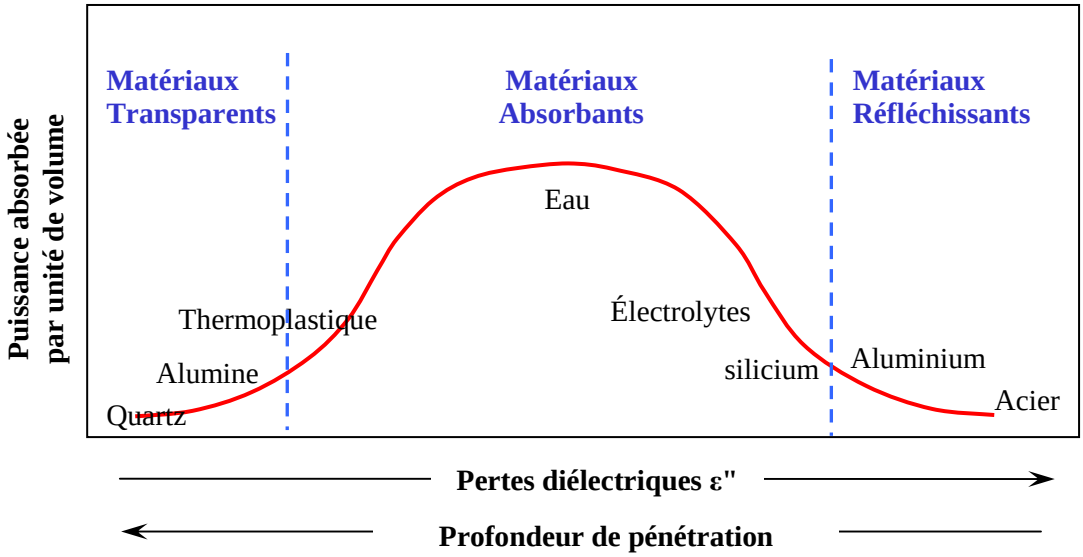


Figure I-6 : Absorption des micro-ondes en fonction de la nature des matériaux.

- Les matériaux transparents se caractérisent par de très faibles pertes diélectriques et une grande profondeur de pénétration. L'onde électromagnétique est transmise sans perte d'énergie.

- Les matériaux absorbants vont emmagasiner une fraction plus ou moins importante de l'énergie transportée par les ondes électromagnétiques.

- Les matériaux réfléchissants regroupent principalement les métaux qui en raison de la faible profondeur de pénétration (de l'ordre du µm) réfléchissent presque la totalité des ondes qu'ils reçoivent.

La propagation d'une onde électromagnétique peut donc conduire à un transfert d'énergie dans certains milieux. L'application d'un champ alternatif fait osciller les charges électriques ou les molécules du matériau qui lorsque la fréquence devient trop importante ne peuvent plus suivre le mouvement imposé par le champ électrique appliqué. Il y a alors apparition d'un déphasage entre le champ d'excitation et la réponse qui est accompagné d'une absorption de l'énergie engendrant le chauffage du matériau. L'interaction des micro-ondes avec les matériaux est exposée dans de nombreux articles, nous allons examiner plus précisément les trois cas principaux.

I.4.1.1 Cas des matériaux diélectriques à faibles pertes

Dans ce cas les ondes électromagnétiques traversent facilement ces matériaux, sans que ces derniers n'absorbent d'énergie. Dans cette catégorie, nous pouvons citer le verre, certaines matières plastiques comme le polyéthylène basse densité, le polypropylène ou le polyester. Toutefois parmi ces matériaux à faibles pertes diélectriques, beaucoup présentent une conductivité électrique (ou un facteur de pertes) qui augmentent rapidement au-delà d'une certaine température. Ils peuvent alors absorber les micro-ondes s'ils sont préalablement portés à une température appropriée à partir d'une source de chaleur classique (par conduction ou convection). Cette technique est par exemple utilisée pour réaliser un chauffage hybride **[DEK 02, ZHA 00]**.

I.4.1.2 Cas des matériaux diélectriques présentant des pertes

Au niveau microscopique, les entités dipolaires, ioniques, électroniques sont sensibles au champ électrique et réagissent en effectuant des mouvements (rotation, translation) limités par les forces de liaison du milieu. Ces mécanismes conduisent à l'échauffement du matériau **[SUT 89, NMA 94, MET 98].**

Le degré d'interactions des micro-ondes avec un matériau diélectrique s'exprime par la permittivité complexe du matériau ε^*:

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\,\varepsilon'' = \varepsilon_0\,(\varepsilon'_r - j\,\varepsilon''_r) \qquad \textbf{I-2}$$

où ε_0 : permittivité du vide (ε_0=8,86.10^{-12} F.m^{-1})

ε'_r : permittivité diélectrique relative

ε''_r : pertes diélectriques

Nous utilisons plus communément le facteur de pertes qui représente la capacité du matériau à dégrader l'énergie électromagnétique en chaleur :

$$tan\delta = \varepsilon''/\varepsilon' \qquad \textbf{I-3}$$

La puissance électromagnétique absorbée (P_{abs}) par le milieu est proportionnelle au carré du champ électrique.

$$P_{abs} = \sigma_{eff}\ \boldsymbol{E}^2 \qquad \textbf{I-4}$$

L'expression complète (P_{abs}) contient deux termes : le premier est relatif aux pertes diélectriques et le second aux pertes par conduction. Elle s'exprime par les relations suivantes:

$$P_{abs} = (\omega\varepsilon'' + \sigma)\,\boldsymbol{E}^2 \qquad \textbf{I-5}$$

$$P_{abs} = (\omega\varepsilon' tan\delta + \sigma)\,\boldsymbol{E}^2 \qquad \textbf{I-6}$$

pour un matériau diélectrique $\sigma = 0$,

$$P_{abs} = 2\pi f\varepsilon' tan\delta\ \boldsymbol{E}^2 \qquad \textbf{I-7}$$

où P_{abs} (W.m^{-3}) : puissance absorbée par unité de volume

σ_{eff} (S.m^{-1}) : conductivité électrique effective

$\boldsymbol{E}$ (V.m^{-1}) : amplitude du champ électrique à l'intérieur du matériau

ω (Rad.s^{-1}) : pulsation

σ (S.m^{-1}) : conductivité électrique

Cette expression (**Eq. I-7**) montre que la puissance absorbée varie linéairement avec la fréquence, la constante diélectrique relative, et le facteur de pertes, par contre elle est proportionnelle au carré du champ électrique.

La **Figure I-7** décrit le profil de la puissance absorbée dans un milieu diélectrique semi-infini soumis à une onde électromagnétique TEM. Une partie de cette onde est réfléchie et l'énergie de la partie transmise est transformée en énergie calorifique dont l'amplitude diminue au fur et à mesure que l'onde pénètre dans le matériau.

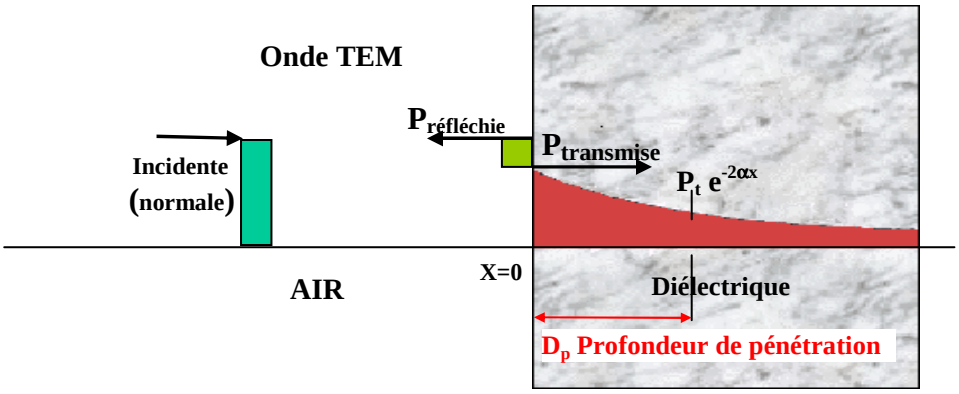


Figure I-7 : Profil de la puissance absorbée dans un milieu diélectrique.

La matière qui absorbe l'énergie électromagnétique affecte le champ électrique qui décroît exponentiellement en pénétrant dans le matériau:

$$P(x) = P_t\, e^{-2\alpha x} = P_t\, e^{-x/D_p} \qquad \textbf{I-8}$$

où P_t (W.m^{-3}): puissance transmise à l'interface air-matériau (en x = 0)

α (nep.m^{-1}): constante d'atténuation

D_p(m) : profondeur de pénétration

La profondeur de pénétration D_p (pour un milieu semi-infini) est définie comme étant la distance sur laquelle l'onde cède *1/e* de son énergie initiale au matériau :

$$D_p = \frac{c_0}{2\pi f \sqrt{2\varepsilon'(\sqrt{1+(\varepsilon''/\varepsilon')^2}-1)}} \qquad \textbf{I-9}$$

Où c_0 : vitesse de propagation de l'onde dans le vide, $c_0 = 3.10^8$ m.s $^{-1}$

La profondeur de pénétration est inversement proportionnelle à la fréquence (et donc proportionnelle à la longueur d'onde). Les rayonnements électromagnétiques souvent utilisés (infrarouge, laser) ont, du fait de leurs faibles longueurs d'onde, une pénétration extrêmement limitée dans la matière. Les micro-ondes présentent des longueurs d'onde centimétriques ou millimétriques généralement du même ordre de grandeur que les dimensions des objets à chauffer.

Il est à noter également que la profondeur de pénétration dépend des propriétés diélectriques du matériau qui elles-mêmes dépendent de la fréquence, mais aussi de la température. Les matériaux généralement soumis à un traitement par micro-ondes peuvent être classés selon leurs propriétés d'absorption.

I.4.1.3 Cas des métaux

Dans le cas des matériaux réfléchissants, l'utilisation des micro-ondes pour le chauffage est très difficile voire impossible. Toutefois lors de recherches bibliographiques, nous avons trouvé plusieurs travaux sur le frittage de métaux (se présentant sous une forme pulvérulente) réalisés avec succès depuis une dizaine années. Afin de comprendre les mécanismes sous-jacents et de confirmer ou non les nombreuses hypothèses avancées actuellement, de nombreux efforts devront encore être entrepris.

- L'équipe de Monsieur Cherradi a utilisé de petits échantillons de poudres compactées et de tailles variées placés selon différentes orientations dans une cavité mono-mode où l'orientation des champs électriques et magnétiques a été fixée par le mode TE_{102}. Ces expérimentations mettent en avant l'importance des courants de Foucault dans le chauffage des métaux **[CHE 97]**. Des expériences concluantes sur le frittage des métaux dans des cavités micro-ondes ont également été effectuées par l'équipe de Monsieur Roy **[ROY 99]**et l'équipe de Monsieur Cheng **[CHE 02]**. Ils ont mis en évidence que la forme et la taille des échantillons de poudres métalliques ont un effet direct sur le chauffage par micro-ondes et qu'il n'est pas possible d'ignorer l'influence du champ magnétique dans les interactions microondes-matériaux surtout dans le cas des matériaux conducteurs.

- L'équipe de Monsieur Peng a confirmé la capacité des poudres métalliques à absorber les micro-ondes **[PEN 02]**. A titre indicatif la poudre d'aluminium peut ainsi après une durée de chauffage ne dépassant pas 5 minutes sous une puissance incidente de 1000 W, atteindre une température de 600°C alors que la température de l'alumine (l'oxyde d'aluminium) ne dépasse pas 100°C. Il semblerait que la poudre métallique en raison de sa porosité inter-particulaire se comporte comme un diélectrique conducteur. Le chauffage peut alors se produire principalement par pertes ohmiques (et probablement par d'autres mécanismes) à condition que la taille des grains soit de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de peau.

- L'équipe de Monsieur Rybakov a concentré ses recherches sur la présence d'une fine couche isolante d'oxyde sur les grains métalliques **[RYB 06]**. La présence d'une couche diélectrique sur toutes les particules conductrices empêche ainsi la percolation, c'est-à-dire les transitions de connectivité entre les particules et augmente de manière significative l'énergie électromagnétique qui peut être absorbée par le compact de poudre. La connaissance de la distribution du champ électrique à l'intérieur d'un tel matériau permet d'avoir une information sur la distribution de la puissance absorbée. Par exemple, pour un échantillon compact de poudre de silicium chauffé par micro-ondes à 30 GHz, la distribution de la puissance absorbée change en fonction de l'épaisseur de la couche d'oxyde, mais également de la température. Il semble qu'une épaisseur suffisante d'oxyde (quelques nanomètres) soit nécessaire pour que le champ électrique soit maximum au centre de l'échantillon : le chauffage par micro-ondes devient alors plus efficace.

I.4.2 Application des micro-ondes au frittage

Le frittage par micro-ondes fait partie des techniques de frittage dites rapides et assistées par champ (« FAST », Field Assisted Sintering Techniques). Cette technique de frittage est apparue à la fin des années 70 et elle a été mise en oeuvre à l'origine pour des poudres céramiques. Aujourd'hui cette technologie est utilisée dans de nombreux secteurs industriels comme l'industrie agroalimentaire, le séchage du bois, le traitement du caoutchouc, la stérilisation médicale ou dans l'industrie pharmaceutique et chimique **[EPR 93]**. Par rapport au chauffage traditionnel (four électrique), cette technique présente de réels avantages.

Le principal avantage réside dans la distribution volumique de l'énergie à l'intérieur du matériau traité. La conversion de l'énergie électromagnétique en chaleur est instantanée et particulièrement efficace, permettant ainsi de réduire considérablement le temps de chauffage et par la même occasion d'économiser une quantité importante d'énergie qui dans les procédés conventionnels contribue majoritairement à échauffer les parois du four **[BYK 01, FAL 02, SHU 03_a]**. Ainsi une opération de frittage avec une méthode traditionnelle par induction nécessite deux à quatre heures, alors qu'une heure environ suffit en utilisant les micro-ondes comme le montre la **Figure I-8(a)**.

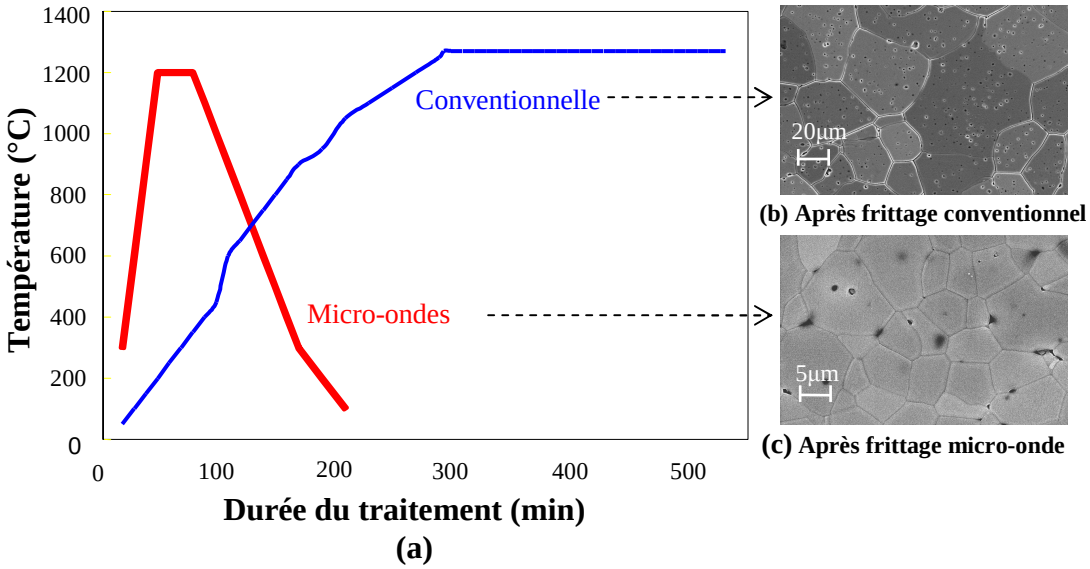


Figure I-8 : (a) Comparaison de la durée de traitement entre le frittage conventionnel et par micro-ondes.
(b) microstructure après un frittage conventionnel.
(c) microstructure après un frittage micro-onde.

Ce chauffage rapide et en volume engendre également une microstructure plus fine et homogène des matériaux céramiques. Les **Figures I-8(b)** et **(c)** montrent une comparaison des microstructures obtenues en fonction de la méthode utilisée après un même temps de chauffage. La microstructure est constituée de grains dont la taille varie de 20 à 40 µm après un frittage conventionnel alors que l'utilisation des micro-ondes permet d'obtenir des grains ne dépassant pas 10 µm. De ce fait les matériaux frittés par micro-ondes présentent généralement de meilleures propriétés : dureté et densité plus importantes, augmentation de la résistance à la corrosion et à l'érosion… **[BRE 05]**

Le frittage par microondes semble particulièrement bien adapté à l'élaboration de multi matériaux grâce son caractère rapide, susceptible de ralentir certaines transformations microstructurales non souhaitées (croissance granulaire,…etc), et surtout grâce à la possibilité d'utiliser les effets distincts des champs électrique et magnétique sur des matériaux de classes différentes pour opérer des phases de chauffage sélectif. L'application à l'élaboration de multi matériaux est très prometteuse, en combinant les effets de chauffage rapide, de couplage localisé à l'échelle macroscopique (constituants d'un multi matériau) et microscopique (phases d'un matériau composite) **[BAN 08]**. Un des plus récents développements du chauffage

micro-onde concerne le frittage de composites métallos-céramiques. Des essais de frittage sous micro-ondes à 2,45 GHz ont été réalisés avec succès au laboratoire d'Essais des Matériaux de l'EMPA (Suisse) sur des composites : Al/SiC, Ti/C **[LEP 02]**.

Bien que les effets des micro-ondes pendant le frittage ne soient pas encore totalement bien élucidés, ils permettent d'obtenir des microstructures plus uniformes, avec une bonne reproductibilité des caractéristiques souhaitées et offrent ainsi des potentialités remarquables pour de nouvelles applications **[CIU 03, SHU 03_b]**.

I.4.3 Suivis des trajectoires thermiques

I.4.3.1 Utilisation d'un dispositif radiométrique

Lors d'une opération de frittage par micro-ondes, la difficulté majeure est le contrôle de la température interne qui s'avère primordial afin d'éviter les emballements thermiques **[ROU 87, KRI 92, PAR 97, WU 02]**. Au cours de cette opération, la température est l'une des grandeurs physiques les plus difficiles à mesurer. Dans le cas du traitement de matériaux à faible conductivité thermique, l'absorption des micro-ondes génère des gradients inverses de température qui peuvent produire en profondeur un excès de chaleur entraînant une rupture fatale des pièces en cours de frittage. Etant donné la difficulté de détecter en profondeur la présence de zones surchauffées, les risques de fissures ou de distorsions sont fréquents. De ce fait, malgré le nombre important de résultats prometteurs qui ont été obtenus et publiés, l'utilisation industrielle du frittage par micro-ondes reste quasi-inexistante.

La radiométrie micro-onde semble alors être une méthode prometteuse pour détecter les échauffements internes trop importants. L'accès à distance à la température interne de pièces en cours de frittage, permettrait d'optimiser les paramètres du processus. Compte-tenu de l'expérience de l'IEMN dans le domaine de la mesure de température par radiométrie micro-onde, nous avons été sollicité par l'EMPA pour étudier la possibilité d'intégrer un dispositif radiométrique sur un four micro-onde dédié aux opérations de frittage **[DUB 96, RIC 06]**. Une description schématique du radiomètre utilisé est présentée sur la **Figure I-9**.

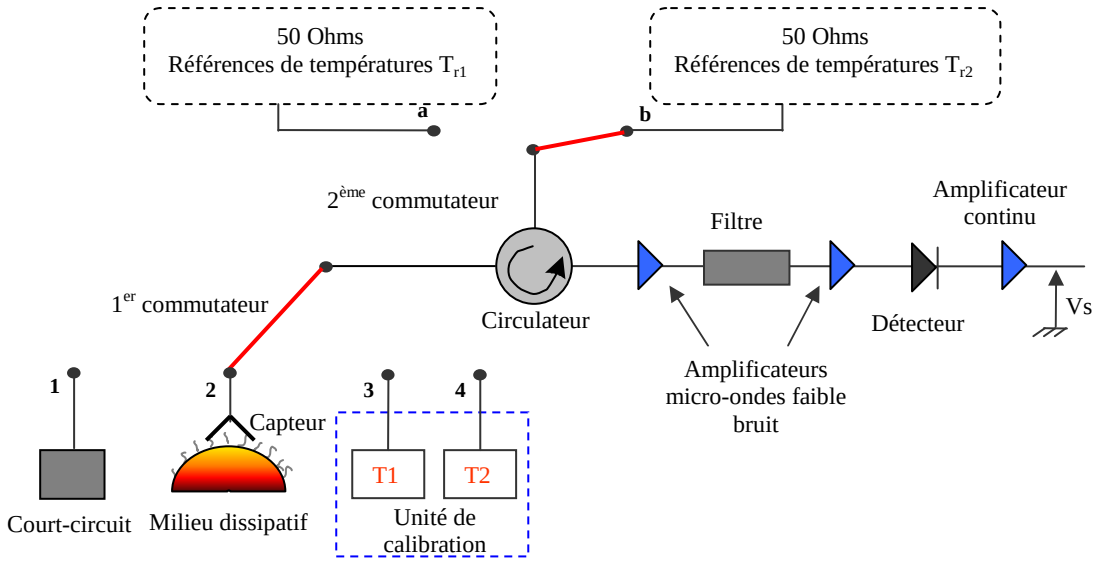


Figure I-9 : Synoptique du radiomètre à deux références internes de température équipé de son unité de calibration.

Ce radiomètre fonctionne autour de 3,2 GHz avec une bande-passante de 500 MHz. Sa structure permet d'éliminer un certain nombre d'imperfections, notamment au niveau de l'étalonnage qui est souvent long et fastidieux, et de réduire considérablement l'influence de grandeurs déterminantes lors de la mesure (bruit propre de chaque composant y compris du capteur, pertes d'insertion des éléments de connexion, adaptation du capteur qui se modifie en fonction de la position de l'objet ciblé par exemple).

Nous avons intégré ce dispositif radiométrique sur un four industriel, localisé sur le site de l'EMPA situé à THUN (Suisse) que nous nommerons « four de l'EMPA ». Ce four (**Figure I-10(a)**) est constitué d'une cavité de 40×40×40 cm^3. Celle-ci est reliée à trois guides d'ondes qui permettent d'amener l'énergie micro-onde générée à la fréquence de 2,45 GHz par trois magnétrons indépendants : deux magnétrons qui délivrent au maximum 3 kW et le troisième 1,2 kW. La puissance maximale qui peut être délivrée est donc de 7,2 kW.

Afin de chauffer les pièces le plus uniformément possible, le four est équipé d'un plateau tournant placé au centre de la cavité où l'intéraction avec le champ électromagnétique est maximale. Ce plateau est réglable en hauteur et la rotation maximale est d'un tour toutes les 2,5 secondes. La température des éléments soumis au champ micro-onde peut facilement atteindre 1500°C voire 2000°C. Dans ces conditions, un système de refroidissement est nécessaire: une circulation d'eau peut alors être actionnée dans la double paroi de l'enceinte (étanche aux micro-ondes et aux gaz) d'un mètre de diamètre (**Figure I-10(b)**) qui entoure la

cavité où s'effectue le frittage des matériaux. Il est également possible de travailler sous atmosphère contrôlée: hydrogène, azote ou argon.

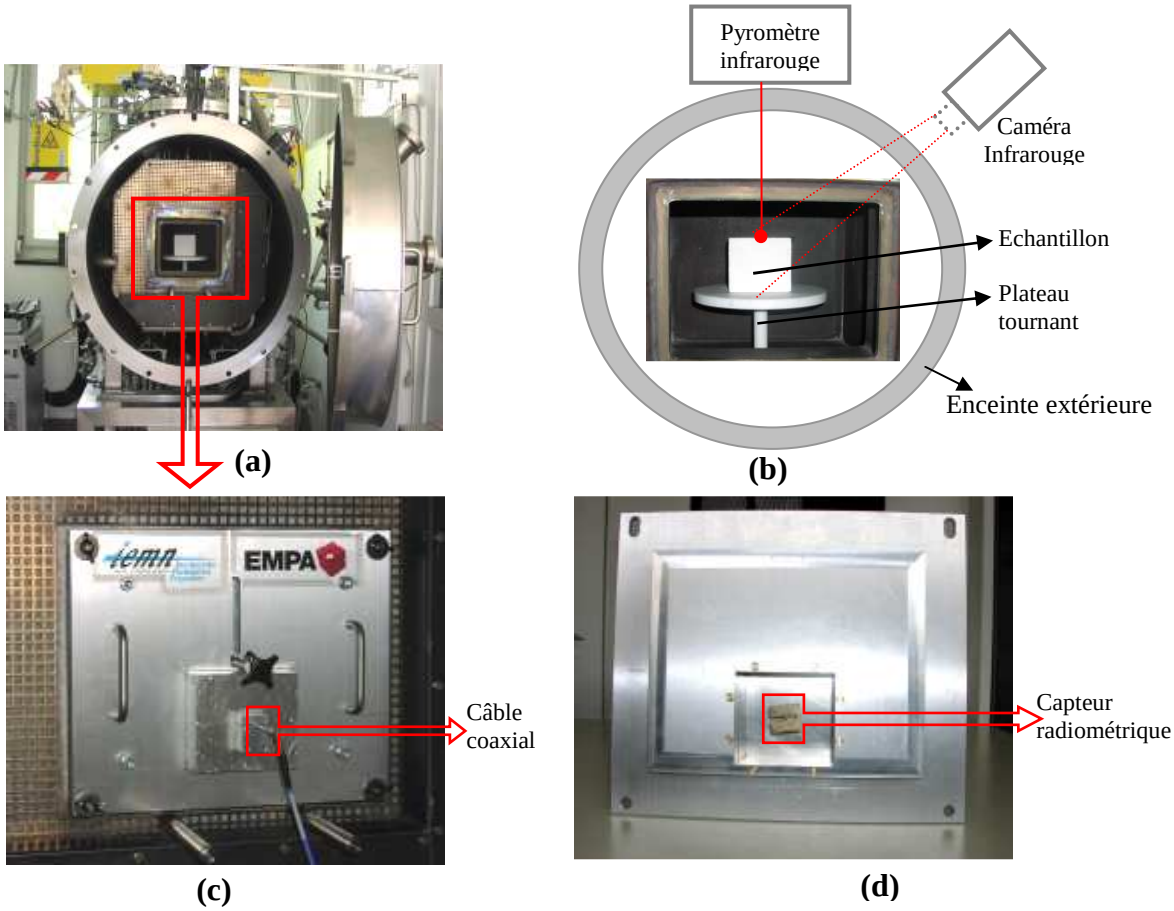


Figure I-10 : (a) Photographie du four de l'EMPA utilisé pour le frittage par micro-ondes (b) Positionnement du pyromètre et de la caméra infrarouge. (c) vue extérieure de la porte et (d) vue intérieure.

Afin d'étudier le processus de frittage par micro-ondes dans le cadre de recherches appliquées et fondamentales, le four est équipé de nombreux capteurs, au total plus de 200 paramètres (température, pression, puissance…) peuvent être contrôlés et enregistrés. Parmi toutes ces données, nous nous sommes particulièrement intéressés aux différentes mesures de température et aux puissances délivrée et réfléchie lors de l'émission des micro-ondes:

- la température des parois du four peut être enregistrée grâce à cinq thermocouples,

- un pyromètre infrarouge (Heitronics) situé au niveau de la paroi supérieure de la cavité permet de suivre l'évolution de la température d'un point ciblé sur la surface supérieure d'un échantillon (**Figure I-10(b)**),

- une caméra infrarouge (Flir) placée en position oblique par rapport à l'échantillon enregistre son image thermique, à partir de laquelle il est possible d'extraire l'évolution temporelle de la température en différentes zones. Nous avons sélectionné deux zones, l'une au niveau du plateau et l'autre au niveau de l'échantillon pour lesquelles nous avons extrait les valeurs maximales de température.

L'installation du dispositif radiométrique a nécessité quelques aménagements, notamment la réalisation d'une nouvelle porte pour la cavité du four (**Figure I-10(c) et (d)**) afin d'y intégrer le capteur radiométrique.

Le capteur a été placé dans un boîtier métallique muni d'une plaque coulissante jouant le rôle d'obturateur, afin de protéger l'électronique du dispositif radiométrique durant l'émission des micro-ondes. L'ensemble a été vissé sur la partie inférieure de la porte (**Figure I-10(c)**), constituée d'une double paroi pour assurer une bonne étanchéité aux micro-ondes. Afin de faire coulisser manuellement l'obturateur, nous avons connecté à celui-ci une vis munie d'une poignée permettant par serrage de bloquer sa position à la hauteur souhaitée (sur une excursion d'une dizaine de centimètres).

I.4.3.2 Suivis de températures d'échantillons pulvérulents sous atmosphère contrôlée

Afin de minimiser la durée d'arrêt de l'émission micro-onde nécessaire à la mesure radiométrique, (principalement dû aux manipulations d'ouverture et fermeture des portes), nous avons installé un dispositif pneumatique d'ouverture de la trappe, commandable de l'extérieur et entièrement étanche. Cette modification a permis également de réaliser des expérimentations sous atmosphère contrôlée (en particulier sous azote). Plusieurs essais de suivis de température ont été menés avec différents échantillons pulvérulents (SiC, Al, Al/SiC à 50% en volume) placés dans un creuset hermétique et sous atmosphère d'azote. Ce creuset a été réalisé à partir d'un bloc de KVS© de 11 cm de côté et de 12 cm de hauteur (couvercle compris), dans lequel a été creusé une cavité cylindrique de 7 cm de diamètre et de 6 cm de profondeur (**Figure I-11**). Les creusets en KVS© sont fabriqués par la société RATH à partir de panneaux de fibres à base d'alumine et de silice.

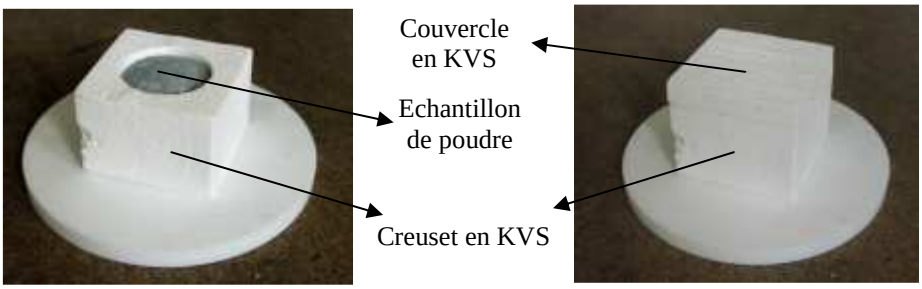


Figure I-11 : Echantillon de poudre placé dans un creuset en KVS©.

Pour remplir ce creuset et travailler avec le même volume de poudre, nous avons utilisé :

- 345 grammes de poudre de SiC,
- 205 grammes de poudre d'Al,
- 252 grammes d'un mélange de poudres Al et SiC (à 50% en volume).

Lors des expérimentations présentées ci-après, la durée du chauffage (en mode alterné) a été fixée à 20 minutes avec une puissance incidente de 1000 W délivrée par un seul magnétron. Chaque cycle de 2 minutes comporte 80 secondes d'émission micro-onde et 40 secondes affectées à la mesure radiométrique **[RIC 06]**.

➢ **Poudre de carbure de silicium**

Un échantillon de poudre de SiC a été soumis au rayonnement micro-onde selon un mode alterné comportant 10 cycles d'une durée de 2 minutes. Au cours d'un cycle, les micro-ondes ont été émises dans la cavité du four durant 80 secondes, puis les mesures de température radiométrique (3 à 4 acquisitions) ont été effectuées durant les 40 secondes suivantes. Pendant les mesures, le magnétron est désactivé, la porte extérieure du four (enceinte cylindrique) est ouverte, ainsi que l'obturateur du boîtier contenant l'antenne radiométrique et les signaux sont envoyés vers le radiomètre. Une fois les mesures réalisées, la porte extérieure et l'obturateur sont fermés et les signaux résiduels qui se propagent dans le câble de liaison entre le capteur et le radiomètre sont envoyés vers une charge adaptée qui peut dissiper 10 W. Cette procédure permet de suivre la montée en température de l'échantillon sans détériorer ou perturber l'électronique du radiomètre.

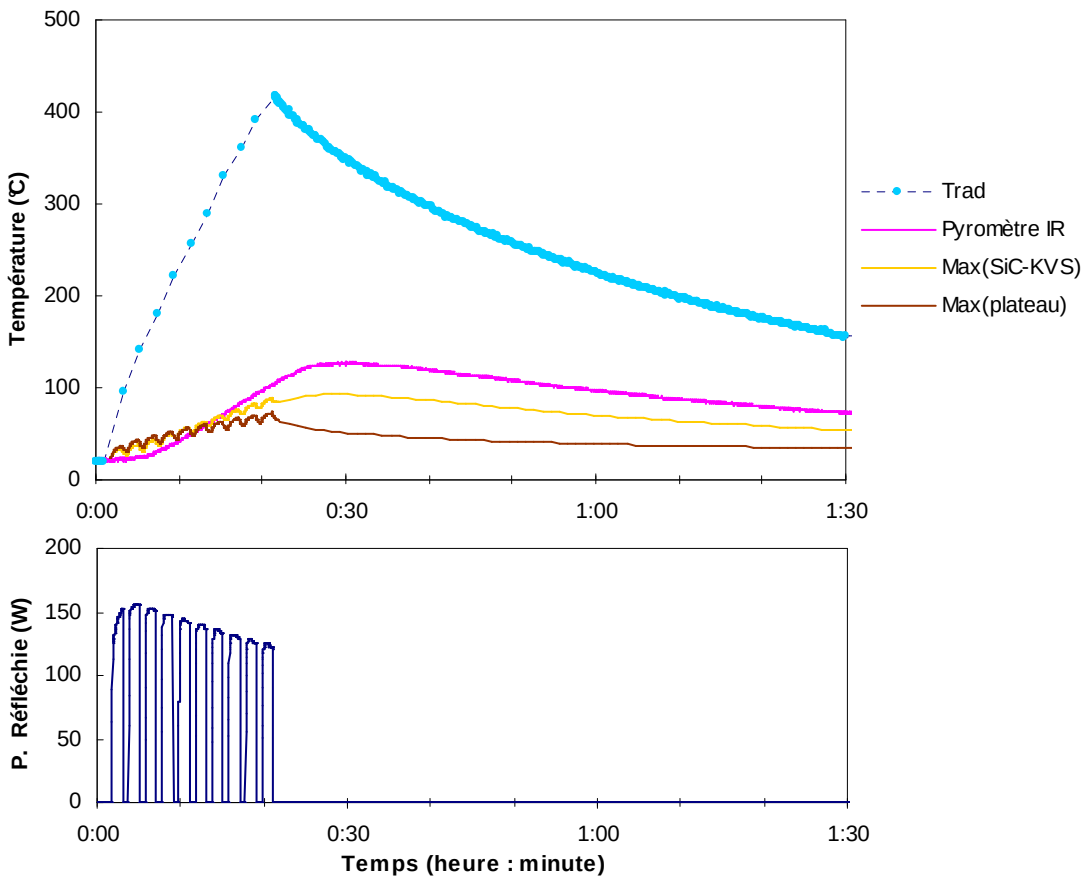


Figure I-12 : Enregistrements des températures et de la puissance réfléchie lors du chauffage sous atmosphère d'azote, de poudre de SiC placée dans un creuset hermétique en KVS© (puissance incidente : 1000 W).

Sur les relevés obtenus (**Figure I-12**) nous constatons que la température radiométrique mesurée augmente très rapidement (80°C), dès le premier cycle, puis elle progresse avec une pente d'environ 30°C/cycle pour atteindre une valeur de 400°C au bout de 10 cycles (soit 20 minutes). L'examen de la puissance réfléchie montre une décroissance, probablement due à une absorption plus importante des micro-ondes dans le matériau, liée à l'augmentation des pertes diélectriques avec la température.

➢ Poudre d'aluminium

La même expérimentation a été reproduite avec un échantillon de poudre d'aluminium et les relevés obtenus sont présentés sur la **Figure I-13**. Cette fois, la trajectoire thermique enregistrée par radiométrie présente une évolution différente de celle obtenue dans le cas précédent (SiC). Après une très rapide montée (3 cycles) jusqu'aux environs de 300°C, la

température radiométrique décroît rapidement (en 4 cycles) pour tendre finalement vers une valeur de 130°C, alors que le niveau de la puissance délivrée est resté fixé à 1000 W. Dès l'arrêt de l'émission micro-onde, l'évolution de la température radiométrique reprend une allure classique traduisant le refroidissement naturel de la poudre d'aluminium. Par contre toutes les autres températures mesurées par infrarouge présentent, sur l'ensemble de l'enregistrement, le même comportement que celui observé lors du chauffage de la poudre de SiC.

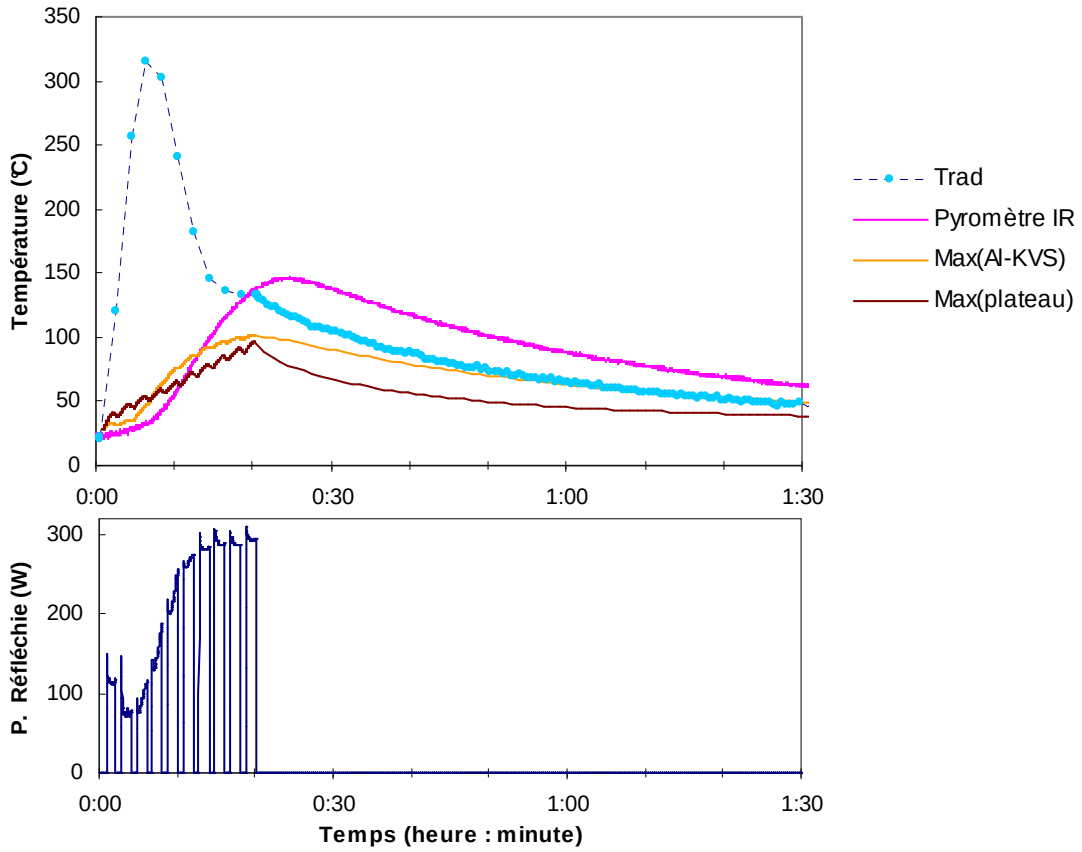


Figure I-13 : Enregistrements des températures et de la puissance réfléchie lors du chauffage sous atmosphère d'azote de poudre d'aluminium placée dans un creuset hermétique en KVS© (puissance incidente : 1000 W).

Le relevé de la puissance réfléchie présente une évolution inverse à celle de la température radiométrique. Sa valeur décroit de 110 Watts à 80 Watts en 2 cycles et augmente ensuite durant les 4 cycles suivants pour atteindre un palier à 300 Watts. Cette évolution à la fois de la température radiométrique et de la puissance réfléchie est caractéristique du phénomène de frittage: les grains d'aluminium se soudent entre eux, formant alors une cohésion qui débute au cœur de l'échantillon et progresse vers la surface. Par conséquent, les

ondes électromagnétiques ont de plus en plus de difficultés à pénétrer à travers l'échantillon. Au cours des 3 premiers cycles, la température au cœur de la poudre augmente et entraîne une absorption plus importante de l'énergie micro-onde due à l'augmentation des pertes du matériau (traduit par une diminution de la puissance réfléchie). Lorsque la température radiométrique atteint environ 300°C, il y a frittage des grains.

➢ Mélange de poudres Al/SiC

L'opération a également été répétée avec un échantillon constitué d'un mélange (à 50% en volume) de poudres d'aluminium et de carbure de silicium. Les enregistrements obtenus sont donnés sur la **Figure I-14**.

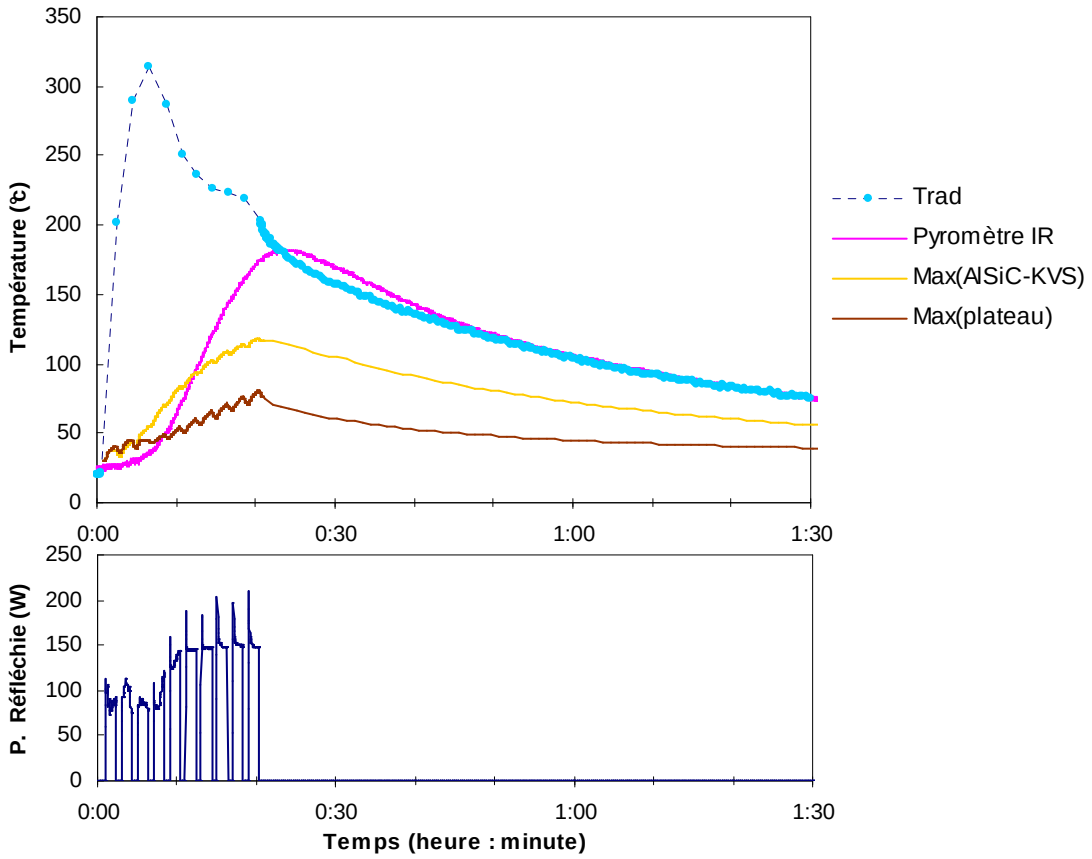


Figure I-14 : Enregistrements obtenus lors du chauffage micro-onde sous atmosphère d'azote, d'un mélange (à 50% en volume) de poudres Al/SiC placé dans un creuset hermétique en KVS© (puissance incidente : 1000 W).

Nous observons les mêmes phénomènes que précédemment, l'évolution de la température radiométrique met en évidence un processus de frittage au bout de 3 cycles. Cependant la décroissance durant les 7 cycles suivants est beaucoup plus lente ceci est

principalement du à la présence des grains de carbure de silicium qui donnent au matériau une émissivité plus importante lors de la mesure radiométrique. Nous constatons d'ailleurs que le palier de la température radiométrique qui apparaît au bout du 7ème cycle est situé à environ 220°C au lieu de 130°C dans le cas de l'aluminium seul. Les grains de carbure de silicium constituent un obstacle à une cohésion entre les grains d'aluminium et permettent ainsi aux micro-ondes de mieux traverser le matériau fritté.

Les expérimentations effectuées ont clairement montré que la radiométrie micro-onde en bande S permet de suivre la trajectoire thermique lors du chauffage interne de matériaux composites pulvérulents comportant une grande quantité de particules métalliques.

Nous avons constaté au cours des divers essais réalisés que les matériaux pulvérulents vont réagir différemment en fonction de leur nature lorsqu'ils sont soumis à un rayonnement micro-onde. Le paramètre qui caractérise l'interaction avec le champ électrique (en ce qui concerne les matériaux testés) est la permittivité diélectrique. De même la trajectoire thermique obtenue par radiométrie micro-onde dépend de la température réelle atteinte au sein du matériau mais aussi de son émissivité liée également à la permittivité diélectrique.

I.5 Les propriétés diélectriques des matériaux pulvérulents

Les propriétés diélectriques des matériaux interviennent lors d'un chauffage par micro-ondes et lors des mesures radiométriques de températures. Les paramètres thermiques et diélectriques vont agir sur l'évolution des trajectoires thermiques lors du processus de frittage et il est donc intéressant de connaître ces paramètres sur une large gamme de températures (allant de la température ambiante jusqu'aux environs de 1500°C). Malheureusement peu de ces données sur les matériaux pulvérulents sont disponibles dans la littérature. Nous avons donc entrepris, en parallèle de nos recherches bibliographiques, d'évaluer expérimentalement ces grandeurs d'abord pour des échantillons de poudre de carbure de silicium, et d'aluminium, puis pour des mélanges.

Dans une première phase, des mesures de permittivités diélectriques ont été effectuées au moyen de trois méthodes de caractérisation disponibles à l'IEMN: mesures en cellule coaxiale, en espace libre puis à partir d'un résonateur.

I.5.1 Techniques habituellement utilisées au Laboratoire

Depuis l'avènement de l'analyseur de réseaux dans les années 70, on observe une multiplication des techniques de caractérisation par micro-ondes notamment pour la caractérisation de matériaux nouveaux **[GAN 95]**. Dans cette partie nous nous proposons de décrire rapidement les principales méthodes de caractérisation hyperfréquences utilisées : mesures en cavité, utilisation de structures de propagation, sonde de contact ou de proximité, mesure en espace libre, microscopie micro-onde en champ proche.

- <u>Mesures en cavité</u>: c'est une technique qui consiste à placer un échantillon du matériau à caractériser dans une cavité résonnante: les plus classiques sont les cavités métalliques rectangulaires ou cylindriques. Le principe repose en général sur la méthode des perturbations **[MEN 95]**, d'où sa grande sensibilité pour la mesure de la permittivité ε_r ou de la perméabilité μ_r des matériaux à faibles pertes. L'inconvénient majeur de cette technique est le caractère monofréquence de la mesure, en effet celle-ci s'effectue uniquement au voisinage de la fréquence de résonance de la cavité.

- Utilisation de structures de propagation: ces techniques permettent de réaliser des mesures sur de larges bandes de fréquences. Elles sont largement utilisées pour la caractérisation des matériaux, notamment lorsqu'ils présentent des pertes diélectriques importantes. Le principe consiste bien souvent à placer l'échantillon à caractériser à l'intérieur d'un guide d'onde rectangulaire ou dans une ligne de transmission coaxiale. La mesure des paramètres S de la cellule (un tronçon de la structure de propagation de dimensions connues) permet de déterminer la permittivité de l'échantillon **[GLA 99]**. L'inconvénient de cette méthode est qu'il faut, en général, usiner le matériau à analyser de manière à ce qu'il puisse être parfaitement inséré dans la structure de propagation tout en assurant un très bon contact avec les parois métalliques du guide ou de la ligne.

- Sonde de contact ou de proximité: cette technique peut être utilisée pour des mesures à faibles distances, dans le cas de matériaux en défilement ou directement au contact, dans ce cas il est nécessaire d'avoir une surface parfaitement plane entre la sonde et l'échantillon pour garantir un bon contact. Dans le cas de mesures en défilement, on utilise un modèle prenant en compte la distance entre le matériau et la sonde **[BAK 94]**. Il existe essentiellement deux types de sonde: l'extrémité ouverte d'une ligne coaxiale et le guide d'onde ouvert ou fendu. Les mesures sont effectuées la plupart du temps en réflexion.

- Mesure en espace libre: c'est la méthode qui semble la mieux adaptée au contrôle non destructif de matériaux en milieu industriel. Les mesures sont effectuées en transmission ou en réflexion. En général les mesures sont effectuées dans des conditions permettant d'utiliser les hypothèses du champ lointain afin d'inverser facilement les équations permettant de remonter aux caractéristiques diélectriques des matériaux (homogènes, hétérogènes, isotropes, anisotropes) à partir des paramètres S relevés **[GOD 90]**. La dimension des échantillons à caractériser (en particulier la surface) doit être relativement grande afin de minimiser les effets de bords, sinon il faut avoir recours à l'utilisation d'antennes focalisantes, en plaçant par exemple une lentille à la sortie d'un guide d'onde. En transmission le matériau à caractériser est placé entre deux antennes et en réflexion l'une des antennes est remplacée par un plan de référence qui est généralement un court-circuit.

- Microscopie micro-onde en champ proche: cette technique permet d'obtenir une résolution spatiale supérieure et une plus grande sensibilité aux propriétés diélectriques des matériaux scannés. En règle générale, les microscopes micro-ondes en champ proche sont

équipés d'une antenne dont la dimension est beaucoup plus petite que la longueur d'onde de la fréquence d'observation : souvent une pointe ou l'extrémité ouverte d'un micro-câble coaxial. Cette antenne est reliée à un analyseur de réseaux vectoriel et maintenue à une très faible distance du matériau (inférieure à la taille de l'antenne) **[ANL 01]**. Les principaux avantages de la microscopie champ proche sont : une plus grande résolution spatiale et une plus grande sensibilité aux propriétés diélectriques des matériaux scannés. Les limites de cette résolution ne sont plus fixées par la longueur d'onde des signaux micro-ondes utilisés, mais par la géométrie de la sonde du microscope. Mais cette technique nécessite un contrôle rigoureux de la distance séparant la sonde du matériau à caractériser et elle n'est pas large bande **[WAN 10]**.

I.5.2 Les premiers résultats

Les premiers essais de mesure de permittivité diélectrique des matériaux pulvérulents sélectionnés ont été réalisés en utilisant les méthodes déjà disponibles au Laboratoire : mesures en cellule coaxiale, mesures à distance en utilisant une antenne directive, puis des mesures sur un résonateur micro-ruban chargé **[RIC 06].**

I.5.2.1 Mesures en cellule coaxiale

La photographie (**Figure I-15**) présente la cellule coaxiale utilisée pour caractériser un échantillon de poudre placé entre le conducteur extérieur (7 mm de diamètre) et intérieur d'un tronçon de ligne coaxiale d'une longueur égale à 9 mm **[LEG 84]**. Ce tronçon de ligne peut être court-circuité et caractérisé en tant que dipôle (mesure du coefficient de réflexion uniquement) ou considéré comme un quadripôle qui est inséré entre les deux ports de l'analyseur de réseau. La configuration en transmission nécessite une compression suffisante de l'échantillon afin qu'il garde une certaine cohésion, cependant, en raison de la dureté des grains, nos échantillons sont difficilement compressibles et s'effritent. Donc, seule la configuration en tant que dipôle a été utilisée.

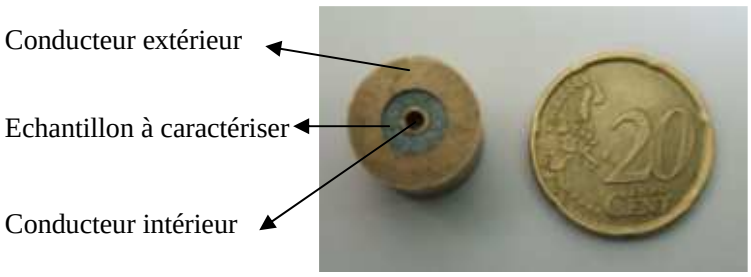


Figure I-15 : Photographie de la cellule coaxiale contenant un échantillon de poudre.

La **Figure I-16** présente les résultats obtenus à partir des mesures en réflexion pour 3 échantillons de poudre, SiC, Al et un mélange à 50% en volume d'Al et de SiC. Les mesures ont été effectuées sur une plage de fréquences allant de 0,1 GHz à 3 GHz.

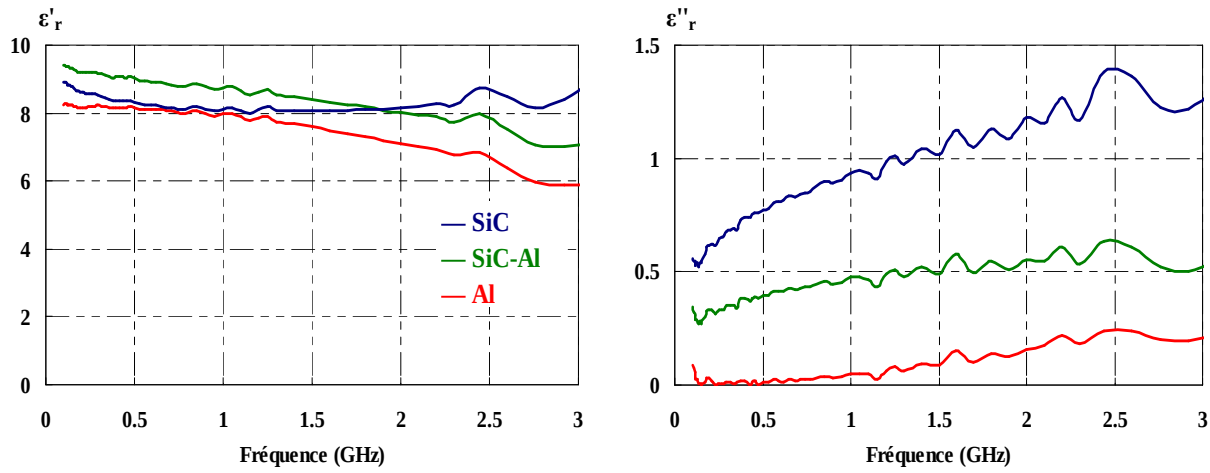


Figure I-16 : Evolution fréquentielle de la permittivité diélectrique des échantillons de poudre SiC, Al, puis un mélange Al/SiC à 50% en volume.

L'introduction de grains d'aluminium dans la poudre de carbure de silicium semble modifier l'évolution de la permittivité, toutefois jusqu'à 3 GHz les ordres de grandeur sont similaires pour les trois types d'échantillons. En ce qui concerne le terme imaginaire de la permittivité, nous constatons nettement que les grains d'aluminium se comportent comme un matériau a plus faibles pertes que les grains de carbure de silicium.

Nous n'avons pas pu obtenir des résultats exploitables sur une plus large gamme de fréquences car des fluctuations importantes apparaissent au-delà de 3 GHz dont l'origine semble due à un problème de contact entre la poudre et le conducteur central du tronçon de ligne. La nature pulvérulente des matériaux rend difficile l'utilisation de cette technique : compactage impossible du SiC, quantification du degré de compactage difficile, mauvais contact entre l'échantillon et le conducteur central,… A ce stade nous avons testé la technique

de mesure en espace libre pour laquelle la mesure sans contact permet d'envisager ultérieurement une étude de la permittivité des échantillons de poudre en fonction de la température.

I.5.2.2 Mesures en espace libre

Cette technique utilisée en réflexion a été élaborée dans le Groupe MITEC pour des applications industrielles notamment pour la détection de défaut ou d'humidité **[GLA 02, GLA 05]**. Un dispositif de mesure des paramètres S (SPMS : S-Parameters Measurement System) fonctionnant à 2,45 GHz a été utilisé. Il permet de mesurer le coefficient de réflexion à l'entrée d'une antenne placée à une distance L du matériau testé qui est déposé sur une plaque métallique.

Un modèle simplifié prenant en compte l'épaisseur du matériau et la distance qui le sépare de l'antenne permet de relier le coefficient de réflexion mesuré à la permittivité du matériau sous test. Celle-ci peut alors être déterminée par résolution d'un problème inverse à l'aide d'une procédure d'optimisation numérique basée sur la méthode de NEWTON-RAPHSON **[GLA 05]**.

En pratique, afin d'éviter les phénomènes de diffraction sur les bords de l'échantillon, l'antenne qui a été utilisée est une antenne BIP qui présente un diagramme de rayonnement étroit permettant ainsi de mieux cibler le matériau sous test placé à une dizaine de centimètres. Le dispositif est présenté sur la photographie de la **Figure I-17.** Les matériaux pulvérulents ont été déposés sur une plaque métallique et délimités par un pourtour cylindrique en carton de 40 cm de diamètre.

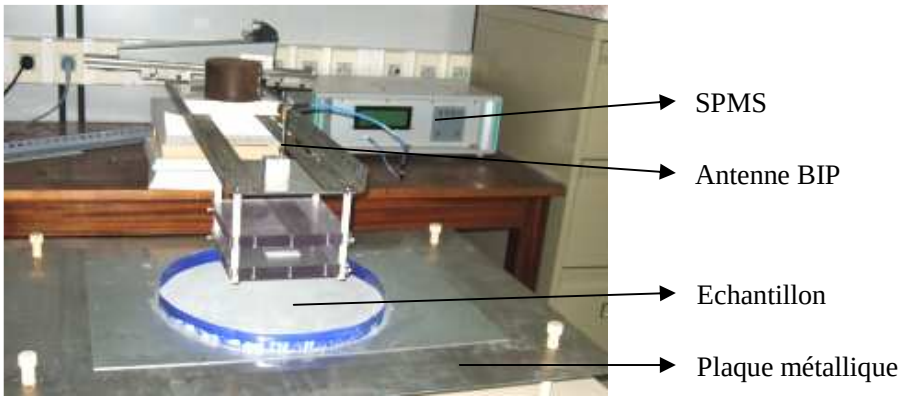


Figure I-17 : Photographie du dispositif pour la mesure en espace libre.

Les résultats obtenus pour les trois échantillons sont reportés sur la **Figure I-18**. Le carbure de silicium présente une permittivité ε'_r de l'ordre de 9,5 à 10,5 et des pertes diélectriques $\varepsilon''_r \approx 1{,}5$. Un mélange à 50% avec la poudre d'aluminium fait chuter la valeur de ces deux paramètres et nous observons une plus grande incertitude dans l'estimation des pertes.

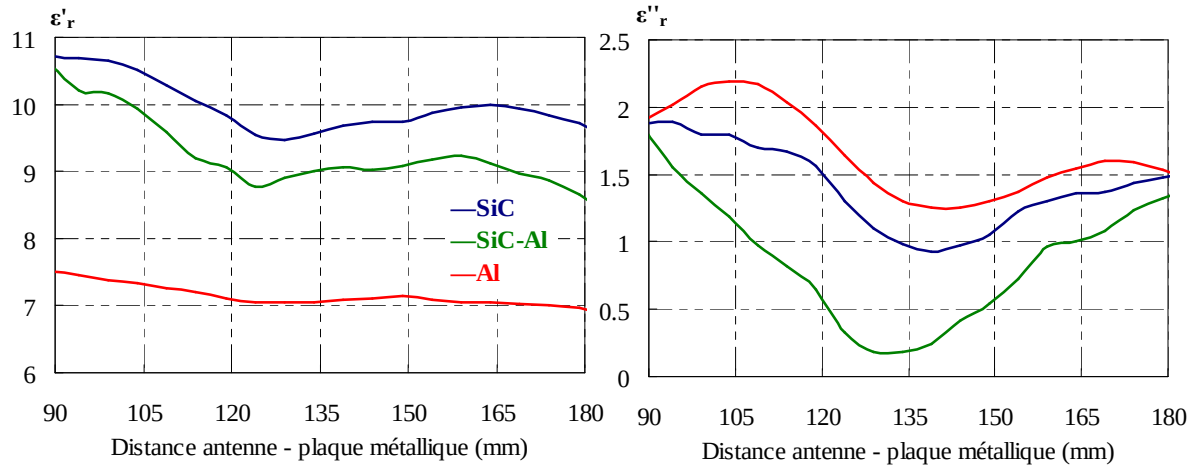


Figure I-18 : Détermination de la permittivité des différents échantillons de poudre à la fréquence de 2,45 GHz.

Au vu des résultats obtenus avec la cellule coaxiale à 2,45 GHz (**<u>Al :</u>** $\varepsilon'_r = 6{,}8$ et $\varepsilon''_r = 0{,}24$; **<u>Al-SiC :</u>** $\varepsilon'_r = 7{,}9$ et $\varepsilon''_r = 0{,}63$; **<u>SiC :</u>** $\varepsilon'_r = 8{,}7$ et $\varepsilon''_r = 1{,}38$), nous nous attendions à ce que l'échantillon contenant uniquement de l'aluminium présente une permittivité et des pertes inférieures aux échantillons de SiC et d'Al-SiC. La permittivité extraite, expérimentalement de l'ordre de 7 pour ε'_r vérifie cette prévision, mais contrairement aux résultats attendus, les pertes ($\varepsilon''_r > 1{,}5$) sont plus importantes que celles du SiC. A ce stade il est difficile de définir quelle est la technique qui donne les bons résultats.

Le modèle utilisé pour extraire la permittivité du matériau, suppose que nous ayons une onde plane en incidence normale qui se propage au travers d'un matériau plan, homogène et isotrope. Or l'échantillon de poudre est positionné à une dizaine de centimètres de l'antenne BIP et les conditions d'approximation TEM ne sont pas suffisamment respectées. Une solution pour améliorer les résultats serait d'effectuer une calibration qui prenne en compte le diagramme de rayonnement de l'antenne dans l'air et dans le matériau.

I.5.2.3 Mesures par résonateur et ligne microruban

Afin de déterminer la permittivité diélectrique des matériaux pulvérulents sur une large bande de fréquences et ceci avec un volume de matériau peu important nous avons utilisé (**Figure I-19**) :

- une ligne microruban gravée sur un substrat époxy de 1,52 mm d'épaisseur dont la permittivité ε'_r est voisine de 4,7. Elle présente une longueur de 110 mm et une largeur de 2,9 mm afin d'obtenir une impédance caractéristique égale à 50 Ω (dans l'air).
- un résonateur microruban de 80 mm de long, réalisé à partir d'une ligne d'impédance caractéristique égale à 50 Ω. Il est relié par un couplage capacitif à deux accès 50 Ω par le biais de deux coupures de 0,2 mm de large.

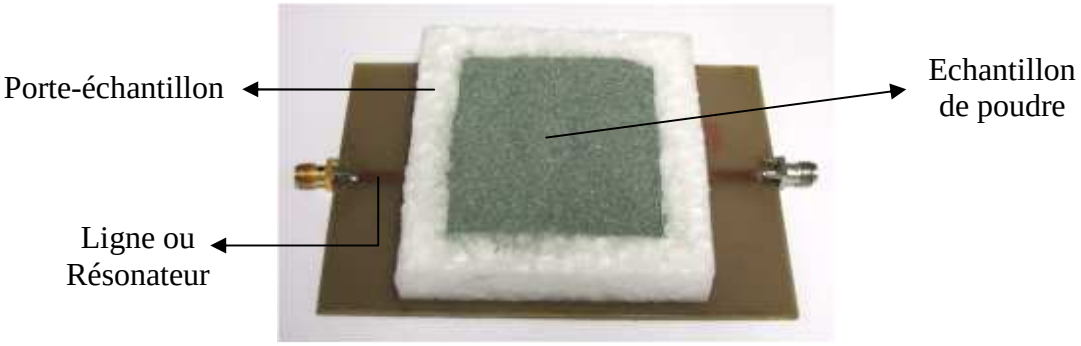


Figure I-19 : Photographie de la structure (ligne ou résonateur) en présence de l'échantillon de poudre à caractériser.

Le matériau sous test peut être le substrat **[HIN 01, HIN 02]**, ou une surcouche au contact ou à faible distance de la ligne **[QUE 94, QUE 96]** (ou du résonateur) microruban. L'échantillon pulvérulent a été placé à l'intérieur d'un porte-échantillon qui se présente sous la forme d'un cadre de 15 mm de hauteur avec 50 mm de côtés internes. Le matériau utilisé pour la réalisation du cadre est du polystyrène expansé qui présente une permittivité diélectrique très proche de celle de l'air avec de très faibles pertes. Nous avons tout de même préalablement vérifié que sa présence ne perturbait pas les mesures. Nous avons fixé la hauteur des échantillons (à l'aide du cadre) à 15 mm. Une épaisseur plus importante ne modifie pas les mesures de même que la présence d'une plaque métallique placée sur la face supérieure de l'échantillon.

La permittivité du matériau peut être déterminée sur une large bande de fréquences à partir du relevé, du coefficient de transmission S_{12} des deux structures. Les valeurs de permittivité sont extraites des paramètres S mesurés à partir d'une modélisation électromagnétique tridimensionnelle de la structure. La recherche de la permittivité du matériau a été réalisée de façon itérative par simulations successives, à l'aide du logiciel commercial de simulation électromagnétique IE3D (Zeland Software **[IE3D]**). Ce logiciel, basé sur la méthode des moments, permet de traiter facilement des structures (circuits ou antennes) planaires de dimensions finies, même en présence de fortes pertes diélectriques.

L'analyse des échantillons de poudre a été réalisée de 0,1 GHz à 4 GHz, en utilisant les deux structures (ligne et résonateur microrubans). Le module du coefficient de transmission de la ligne est influencé principalement par les pertes diélectriques (ε''_r) du matériau analysé alors que les fréquences de résonance du résonateur sont essentiellement liées à la permittivité relative (ε'_r).

Les courbes expérimentales obtenues ($|S_{12}|$) pour la ligne microruban et le résonateur sont présentées sur les **Figures I-20** et **I-21**.

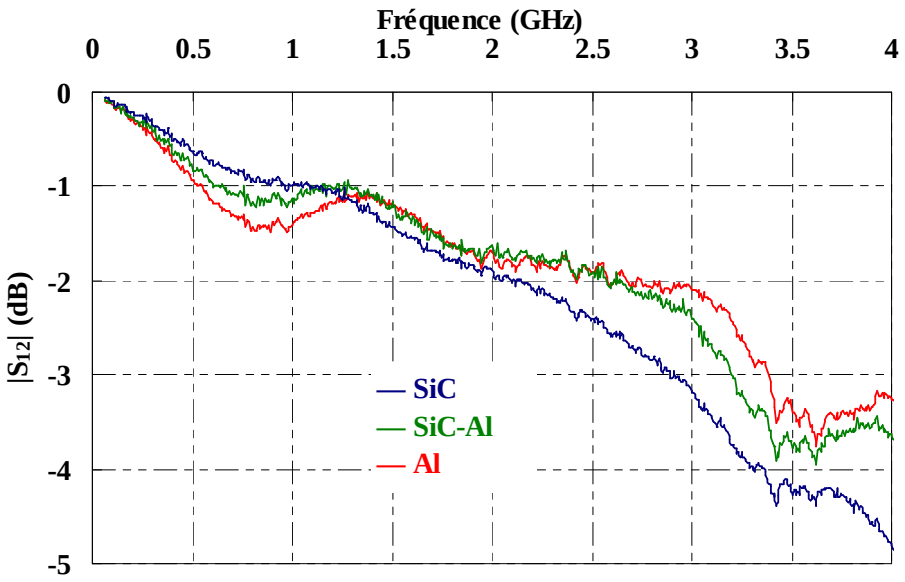


Figure I-20 : Evolution fréquentielle du coefficient de transmission de la ligne microruban en présence de poudre SiC, Al, puis SiC / Al à 50% dans le porte-échantillon.

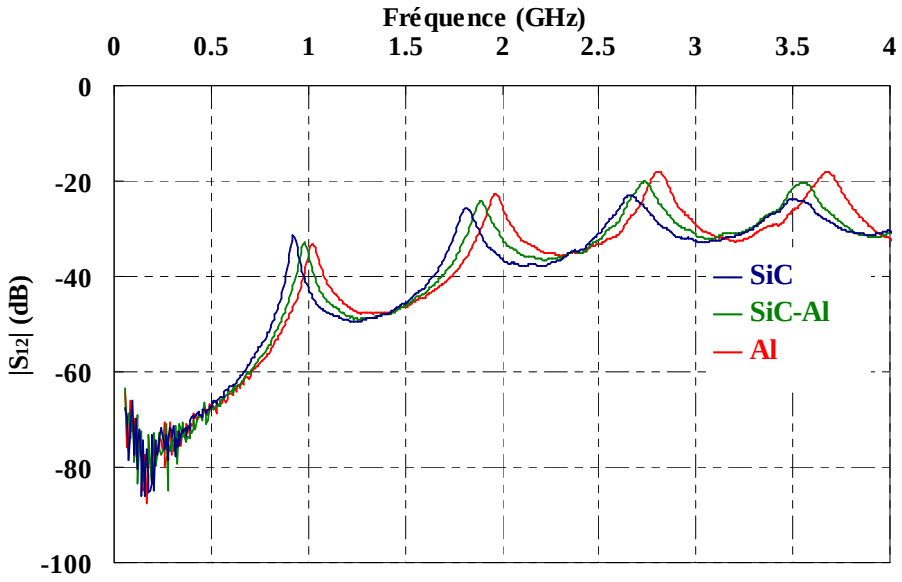


Figure I-21 : Evolution fréquentielle du coefficient de transmission du résonateur en présence de poudre SiC, Al, puis SiC / Al à 50% dans le porte-échantillon.

Nous constatons que la substitution d'une partie ou de la totalité de la poudre de SiC par de l'aluminium ne modifie pas l'allure des relevés obtenus. Pour le paramètre $|S_{12}|$ de la ligne de transmission, nous observons qu'en fonction du pourcentage d'aluminium, l'allure fréquentielle est plus complexe à analyser. Suivant la bande de fréquences considérée, le comportement est différent : de 0,1 à 1,3 GHz, les pertes semblent augmenter avec la quantité d'aluminium alors que l'inverse est observé au-delà de 1,3 GHz.

Dans le cas du résonateur, la fréquence relative aux pics de résonances augmente en fonction du pourcentage d'aluminium introduit dans la poudre de SiC, ce qui suggère une diminution de la permittivité. Il semble que la permittivité ε'_r suive le même comportement que celui observé à partir des mesures réalisées en espace libre. A partir de la méthode utilisant une cellule coaxiale ce comportement est plus difficilement discernable en raison des difficultés de reproductibilité du degré de tassement des poudres.

L'essai d'extraction de la permittivité de la poudre SiC est présenté sur la **Figure I-22**. Les résultats relatifs à l'extraction de la permittivité de la poudre d'aluminium et du mélange Al/SiC à 50% à partir des relevés des paramètres $|S_{12}|$, n'ont pas été concluants. Nous n'avons pas réussi à déterminer des valeurs cohérentes permettant d'ajuster les courbes théoriques et expérimentales du paramètre $|S_{12}|$ pour la ligne et pour le résonateur simultanément. De ce

fait, la question du comportement diélectrique des échantillons comportant des particules métalliques se pose.

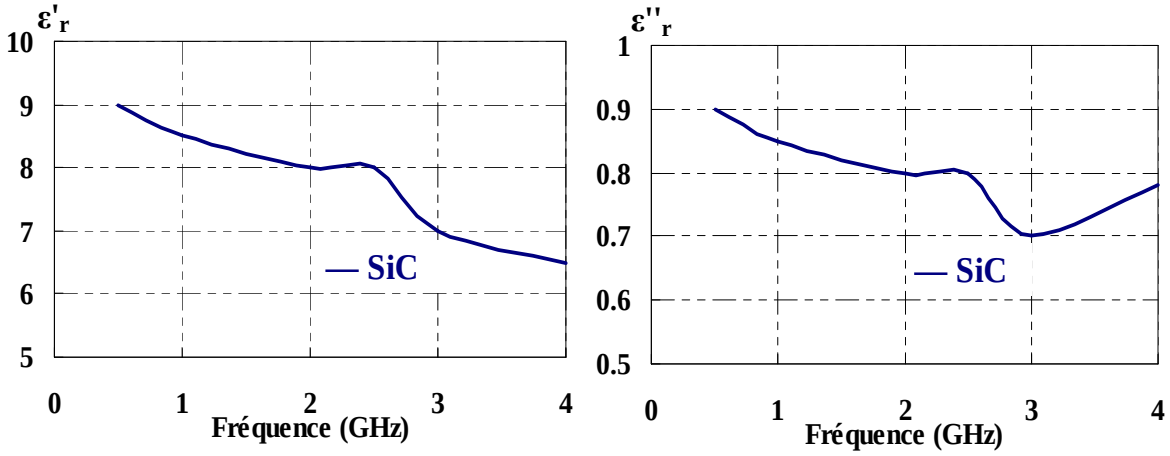


Figure I-22 : Evolution fréquentielle de la permittivité diélectrique de la poudre SiC.

I.6 Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous avons introduit le contexte et les enjeux du projet, qui a été entrepris en réponse à un vif intérêt du secteur industriel pour la fabrication de matériaux composites (céramiques, polymères, industrie du verre, métallurgie des poudre …). L'élaboration de pièces mécaniques en matériaux composites par frittage par micro-ondes est une procédure très attractive (rapidité, croissance des grains plus faible, moins gourmande en énergie,…), mais elle nécessite un contrôle de la température interne des pièces qui n'est pas encore suffisamment maîtrisé. Les premiers essais de suivi de la température par radiométrie microonde montrent que l'on peut obtenir des informations qui pourraient s'avérer utiles sur l'évolution interne de la température, mais il ne faut pas oublier que c'est une information volumique. Il reste encore de nombreux travaux à effectuer tant sur le plan expérimental que théorique avant de pouvoir utiliser la ou les températures radiométriques mesurées pour optimiser une opération de frittage.

La nature des matières premières utilisées pour la conception des composites, la taille des grains, leur forme, l'arrangement, le degré de compaction, mais également la trajectoire thermique qui aura été suivie vont conditionner les propriétés du matériau final (solidité, état de surface, conductivité, densité,..).

Lors d'un frittage par micro-ondes, l'interaction entre le matériau et le champ électromagnétique se traduit d'un point de vue macroscopique par le paramètre de permittivité diélectrique. Ce paramètre va dépendre non seulement de la nature du matériau (composition chimique, structure, taille des grains, arrangement, densité,…) mais également de la fréquence de l'émission microonde utilisée et de la température atteinte dans le matériau. Ce paramètre est également d'une grande importance dans la mesure de la température radiométrique, il fixe le degré d'émissivité au sein du matériau et intervient sur le champ de réception du capteur radiométrique.

La connaissance de la permittivité diélectrique des poudres et des matériaux en cours de frittage permettrait en particulier d'appréhender le processus du frittage par une modélisation macroscopique multi-physique.

Les premiers tests de mesure de la permittivité diélectrique des poudres qui ont été réalisés ne permettent pas de donner sans ambiguïté une valeur de celle-ci. Nous avons donc entrepris de mettre en œuvre une autre méthode, plus rigoureuse, qui permettrait de déterminer la permittivité diélectrique des poudres sur une large bande de fréquences.

Bibliographie

[ALL 90] J. ALLEMANN, H. HOFMANN and L. GAUCKLER
"Sintering Behaviour of Tetragonal Zirconia Polycrystalline Powders"
CFI/Berichte DKG, 67 pp 434-442, 1990.

[ANL 01] S. M. ANLAGE, D. E. STEINHAUER, B. J. FEENSTRA, C. P. VLAHACOS and F. C. WELLSTOOD
"Near-Field Microwave Microscopy of Materials Properties"
Microwave Superconductivity, Kluwer Academic Publisher, Norwell, MA, pp 239-269, 2001.

[BAK 94] J. BAKER-JARVIS, M. JANEZIC, P. DOMICH and R. GEYER
"Analysis of an Open-Ended Coaxial Probe with Lift-Off for Nondestructive Testing"
IEEE Transaction on Instrumentation and Measurement, vol. IM-43, n°5, pp 711-718, October 1994.

[BAN 08] N. P. BANSAL and J. P. SINGH
"Processing and Properties of Advanced Ceramics and Composites"
Materials Science and Technology Conference (MS&T08)"
Pittsburgh, Pennsylvania, 5-9 October, 2008.

[BER 05] D. BERNACHE-ASSOLLANT and J. P. BONNET
"Frittage : aspects physico-chimiques"
Techniques de l'Ingénieur, traité Electronique, AF6620 et AF6621, 2005.

[BRE 05] E. BREVALA, J.P. CHENG, D.K. AGRAWAL, P. GIGL, M. DENNIS, R. ROY and A.J. PAPWORTH
"Comparison between microwave and conventional sintering of WC/Co composites"
Materials Science and Engineering A, vol. 391, pp 285–295, 2005.

[BYK 01] Y. V. BYKOV, K. I. RYBAKOV and V. E. SEMENOV
"High-temperature microwave processing of materials"
Journal of Physics D: Applied Physics, vol. 34, pp 55-75, 2001.

[CAR 99] C. A. R. M. A
"Rapport Les Céramiques Industrielles : Applications industrielles et développements potentiels dans les Alpes-Maritimes"
Centre d'animation regional en matériaux avances, October, 1999.

[CEA 01] CEA
"Carbure de silicium : de la technologie aux composants"
CEA, Technologies n°58, novembre 2001.
http://www.cea-technologies.com/articles/article/96/fr

[CHE 97] A. CHERRADI, S. MARINEL, G. DESGARDIN, J. PROVOST and B. RAVEAU
"Microwave sintering of the high-Tc superconductor Y-Ba-Cu-O"
Science & Technology of Superconductivity, vol. 10, pp 475-483, 1997.

[CHE 02] J. CHENG, R. ROY and D. AGRAWAL
"Radically different effects on materials by separated microwave electric and magnetic fields"
Mat Res Innovat 5, pp 170–177, 2002.

[CIU 03] A. CIUCIUMIS, A. FOELA and D. RADU
"Unconventional processing technique for ceramic materials"
International Semiconductor Conference, vol. 2, pp 343-346, 2003.

[CIZ 68] G. CIZERON
"Le frittage sous son aspect physico-chimique"
Extrait de l'industrie céramique -1968-1971-1972-1973

[COR 03] R. CORDINGLEY, L. KOHAN, B. BEN-NISSAN and G. PEZZOTTI
"Alumina and zirconia bioceramics in orthopaedic applications"
Journal of the Australasian Ceramic Society, vol. 39, n° 1, pp 20-28, 2003.

[DEK 02] R. DEKKERS
"Non-mettallic inclusions in liquid steel"
Thèse de l'Université de Leuven, Belgique, 2002.

[DUB 96] L. DUBOIS, J.P. SOZANSKI, V.TESSIER, J.C. CAMART, J.J. FABRE, J. PRIBETICH and M. CHIVE
"Temperature control and thermal dosimetry by microwave radiometry in hypertermia"
IEEE Transaction on Microwave Theory and Techniques (Special issue on Medical applications and biological effects of RF/Microwaves), vol. 44, n°10, pp 1751-1761, October 1996.

[EPR 93] EPRI: ELECTRIC POWER RESEARCH INSTITUTE
"Industrial microwave heating applications"
EPRI Center for Materials Fabrication, vol. 4, n°3R, 1993.

[EUD 94] M. EUDIER
"Métallurgie des poudres"
Techniques de l'ingénieur, Juillet, 1994.
http://www.techniques-ingenieur.fr/book/m860/metallurgie-des-poudres-generalites.html

[FAL 02] M.L. FALL, W.J. WALKER, H.S. SHULMAN and L. WOLFE
"Sintering wear parts with microwave heating"
104th Meeting of The American Ceramic Society, St. Louis, 2002.

[GAL 03] C. GALLET, Y. BERTAUD, M. LEFEBVRE, M. KERMARREC and C. ZELLER
"Métallurgie des poudres"
La lettre de l'Agence Rhône-Alpes pour la maîtrise des matériaux, n°8, Octobre.-Décembre. 2003

[GAN 95] S.I GANCHEV, N. QADDOUMI, S.BAKHTIARI and R. ZOUGHI
"Calibration and Measurement of a Dielectric Properties of Finite Thickness Composite Sheets With Open-Ended Coaxial Sensors"
IEEE Transaction on Instrumentation and Measurement, vol. 44, n°6, pp 1023-1029, December 1995.

[GER 96] R.M. GERMAN
"Sintering Theory and Practice"
John Wiles and Sons, New York, 1996.

[GLA 99] D. GLAY
"Conception et réalisation de systèmes micro-ondes destinés au contrôle non destructif de matériaux"
Thèse de Docteur de l'université Lille1, Novembre 1999.

[GLA 02] D. GLAY and T. LASRI
"Characterization of surface cracks in metals by microwave techniques"
Nondestructive Characterization of Materials XI, Berlin, Germany, Springer, pp 345-352, June 2002.

[GLA 05] D. GLAY and T. LASRI
"A blind deconvolution approach for free-space profile retrieval at microwave frequencies"
Electromagnetic Aquametry - Electromagnetic Wave Interaction With Water and Moist Substances, Chapter 12, edited by K. Kupfer – Publishing house :Springer Verlag Heidelberg , Berlin, pp 257-275, March 2005.

[GOD 90] D.K. GODGAONKAR, V.V. VARADAN, and V.K. VARADAN
"Free-Space Measurement of Complex Permittivity and Complex Permeability of Magnetic Materials at Microwave Frequencies"
IEEE Transaction on Microwave Theory and Techniques, vol. 39, n°2, pp 387-394, April 1990.

[GOU 03] D. GOUVEA, and R. H. R. CASTRO
"Sintering: the role of interface energies"
Applied Surface Science, vol. 217, pp 194–201, 2003.

[GRE 72] C. GRESKOVICH and K.W. LAY,
"Grain Growth in very Porous Al2O3 Compacts"
Journal American Ceramic Society, vol. 55, pp 142-46, 1972.

[HAU 96] F. J-M HAUSSONNE
"Céramiques pour composants électroniques"
Techniques de l'ingénieur, Juin, 1996.
http://www.techniques-ingenieur.fr/book/e1820/ceramiques-pour-composants-electroniques.html

[HIN 01] J. HINOJOSA, L. FAUCON, P. QUEFFELEC, and F. HURET
"S-parameter broadand measurement of microstrip lines and extraction of the substrate intrinsic properties"
Microwave and Optical Technology Letters, vol.30, n°1, pp 65-69, 2001.

[HIN 02] J. HINOJOSA, K. LMIMOUNI, G. SIX, and G. DAMBRINE
"Broadband method for measuring complex permittivity and permeability of film-shaped materials"
Techonline publication, article n°20324,2002.
www.techonline.com/community/home/20324

[IE3D] MENTOR GRAPHICS
Electromagnetic (EM) Design & Simulation Software
http://www.mentor.com/electromagnetic-simulation/

[KRI 92] G.A. KRIEGSMANN
"Thermal runaway in microwave heated ceramics: A one-dimensional model"
Journal of Applied Physics, vol. 71, n°4, pp 1960-1966, 1992

[LEG 84] C. LEGRAND
"Mesures automatiques de permittivités, applications à la caractérisation diélectrique de substances mésomorphes"
Thèse de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, Juillet 1984.

[LEP 02] S. LEPAROUX, S. VAUCHER and O. DEFFORT
"Evaluation of microwave assisted processing of compacted metal/ceramic mixtures"
Magazine/conference Materials Week 2002, Munich, Allemagne, 2002.

[LI 01] R. LI
"Temperature – Induced Direct Casting of SiC"
Thèse de l'Université de Stuttgart, Juin 2001.

[MEN 95] B. MENG, J. BOOSKE, and R. COOPER
"Extended Cavity Perturbation Technique to Determine the Complex Permittivity of Dielectric Material"
IEEE Transaction on Microwave Theory and Techniques, vol. 43, pp 2633-2636, November 1995.

[MET 98] A.C. METAXAS and R.J. MEREDITH
"Industrial Microwave Heating"
Series 4, Peter Peregrinus Ltd, London, 1998.

[MIL 04] P. MILLBANK
"Aerospace dominance increasingly challenged: aluminium continues to dominate aircraft structural materials and metal producers work hard to keep it that way--but they are not always successful and composites are achieving some notable successes"
Aluminium International Today, September-October 2004.

[MOS 85] H. MOSTAGHACI and R.J. BROOK
"Kinetics of Hot-Pressing of Batio3 Ceramics"
Transactions and Journal of the British Ceramic Society, n°84, pp 203-206, 1985.

[NEU 01] P. G. NEUDECK
"Silicon Carbide Electronic Devices"
Encyclopedia of Materials: Science and Technology, vol. 9, K. H. J. Bushchow, R. W. Cahn, M. C. Flemings, B. Ilschner, E. J. Kramer, and S. Mahajan, Eds. Oxford: Elsevier Science, pp. 8508-8519, 2001.

[NMA 94] NMAB: NATIONAL MATERIALS ADVISORY BOARD
"Microwave Processing of Materials"
Committee on Microwave Processing of Materials: An Emerging Industrial Technology, Commission on Engineering and Technical Systems, National Research Council, Publication NMAB-473, National Academy Press, Washington, 1994.

[OBR 90] R. OBERACKER, K. DORFSCHMIDT and T. LIU
"Application of rate controlled sintering in the production of ZrO2-based ceramic materials"
Science of Sintering, ed. D.P. Uskokovic. 1990.

[PAR 97] P.E. PARRIS and V.M. KENKRE
"Thermal runaway in ceramics arising from the temperature dependence of the thermal conductivity"
Physica status solidi (b), vol. 200, n°1, pp 39-47, 1997.

[PEN 02] J.-H. PENG, J. BINNER and S. BRADSHAW
"Microwave initiated self-propagating high temperature synthesis of materials"
Materials Science and Technology, vol. 18, pp1419-1427, 2002.

[PRU 01] S. PRUNEANU, G. MIHAILESCU, S. NEAMTU, L. OLENICl and L.P. BIRO
"Applications of nanoporous alumina membranes"
Proceedings International Semiconductor Conference, vol. 1, pp 59-621, Octobre 2001.

[QUE 94] P. QUEFFELEC, P. GELIN, J. GIERALTOWSKI, and J. LOAEC
"A micostrip device for the broad band simultaneous measurement of the complex permeability and permittivity"
IEEE Transaction on Magnetics, vol. 30, n°2, pp 224-231,1994.

[QUE 96] P. QUEFFELEC, and P. GELIN
"Influence of higher order modes on the measurements of complex permittivity and permeability of materials using a microstrip discontinuity"
IEEE Transaction on Microwave and Techniques, vol. 44, n° 6, pp 816-824,1996.

[RAB 99] P. RABACK
"Modeling of the Sublimation Growth of Silicon Carbide Crystals"
Thèse de l'Université d'Helsinki, Finlande, Juin 1999.

[RIC 98] R.W. RICE
"Porosity of Ceramics"
New York: Dekker Inc. 1998.

[RIC 06] C. RICARD
"Utilisation des micro-ondes pour la caractérisation et le suivi sans contact de trajectories themiques de poudre métallo-céramiques: Application au contrôle du processus de frittage"
Thèse de Docteur de l'université Lille1, Novembre 2006.

[ROU 87] G. ROUSSY, A. BENNANI and J.M. THIEBAUT
"Temperature runaway of microwave irradiated materials"
Journal of Applied Physics, vol. 62, n°4, pp 1167-1170, 1987.

[ROU 93] T. ROUXEL, J.L. BESSON, and P. GOURSAT
"Improvement of Creep Resistance of Sintered Silicon-Nitride by Hot Isostatic Exudation of Intergranular Glass"
Journal of the American Ceramic Society, n°76, pp 2790-2794, 1993.

[ROY 99] R. ROY, D. AGRAWAL, J. CHENG and S. GEDEVANSHIVILI
"Full sintering of powdered-metal bodies in microwave field"
Nature 399, pp 668-670, June 1999.

[RYB 06] K.I. RYBAKOV, V.E. SEMENOV, S.V. EGOROV, A.G. EREMEEV, I.V. PLOTNIKOV and Y.V. BYKOV
"Microwave heating of conductive powder materials"
Journal of Apllied Physics, vol. 99, pp 023506-1 à -9, 2006.

[SHU 03_a] H.S. SHULMAN
"Microwaves in High-Temperature Processes"
Industrial Heating Magazine, March 2003.

[SHU 03_b] H.S. SHULMAN, M. FALL, W.J. WALKER JR, T.A. TREADO, S.J. EVANS, M. MARKS and M.L. TRACY
"Sintering uniformity and reproducibility with 2.45 GHz microwaves in an industrial sized chamber"
Innovative Processing and Synthesis of Ceramics, Glasses, and Composites VI, J.P. Singh, Ceramic Transactions, vol. 135, 2003.

[SUG 98] K. SUGAI, H. MATSUMOTO, Y. SHIMOIVOU and Y. KISHIRA
"Multilayer alumina substrates for ECU [Automative electronics]"
IEEE Electronics Manufacturing Technology Symposium, pp 109-112, April 1998.

[SUT 89] W.H. SUTTON
"Microwave processing of ceramic materials"
Cermic bulletin, vol. 68, n°2, pp 376-386, 1989.

[VEN 87] K.R. VENKATACHARI and R. RAJ
"Enhancement of Strength through Sinter Forging"
Journal of the American Ceramic Society, n°70, pp 514-20, 1987.

[WAN 10] MM. WANG, K. HADDADI, D. GLAY and T. LASRI
"Compact near-field microwave microscope based on the multi-port technique"
The 40th European Microwave Conferenc (EuMC), pp 771-774, 2010.

[WU 02] X. WU, J.R. THOMAS and W.A. DAVIS
"Control of thermal runaway in microwave resonant cavities"
Journal of Applied Physics, vol. 92, n°6, pp 3374-3380, 2002.

[YE 05] J. YE, B. Q. HAN, Z. LEE, B. AHN, S.R. NUTT and J.M. SCHOENUNG
"A tri-modal aluminium based composite with super-high strength"
Scripta Materialia, vol. 53, pp 481-486, 2005.

[ZHA 00] C. ZHAO, J. VLEUGELS, C. GROFFILS, P.J. LUYPAERT and O. VAN DER BIEST
"Hybrid sintering with a tubular susceptor in a cylindrical single-mode microwave furnace"
Acta materialia, vol. 48, pp 3795-3801, 2000.

[ZHA 04] Z. ZHAO, V. BUSCAGLIA, P. BOWEN, and M. NYGREN
"Spark plasma sintering of nano-crystalline ceramics"
Euro Ceramics Viii, Pts 1-3, 264-268 2297-300, 2004.

Chapitre II

Caractérisations diélectriques large-bande de matériaux pulvérulents

Chapitre II

Caractérisations diélectriques large-bande de matériaux pulvérulents

II.1 Introduction ..... - 65 -

II.2 Mise en oeuvre d'une caractérisation diélectrique large-bande ..... - 68 -

II.2.1 Présentation de la méthode utilisée ..... - 69 -

II.2.1.1 Détermination de la constante de propagation : Méthode de Bianco-Parodi ..... - 69 -

II.2.1.2 Extraction de la permittivité complexe du matériau: modélisation de la structure de propagation par la SDA unidimensionnelle ..... - 73 -

II.2.2 Validation de la méthode à partir de simulations électromagnétiques ..... - 85 -

II.2.2.1 Lignes microrubans à vide sans porte-échantillon ..... - 85 -

II.2.2.2 Lignes microrubans à vide avec porte-échantillon ..... - 87 -

II.2.2.3 Lignes microrubans partiellement couvertes par un matériau ..... - 89 -

II.2.2.4 Détermination de la permittivité complexe d'un matériau ..... - 91 -

II.3 Conclusion ..... - 95 -

Bibliographie ..... - 96 -

II.1 Introduction

Le chauffage par micro-ondes d'un matériau ainsi que la mesure de sa température radiométrique sont fortement dépendant de ses propriétés diélectriques qui vont évoluer, en particulier, en fonction de sa température, de la fréquence de travail et de la pression exercée. La connaissance des propriétés diélectriques et de leur évolution est donc d'un grand intérêt si l'on désire par exemple optimiser un processus de frittage par micro-ondes. Peu de données étaient jusqu'à maintenant disponibles sur ce sujet dans la littérature. Mais le regain d'intérêt sur l'utilisation des micro-ondes dans les opérations de frittage de poudres céramiques mais également métalliques ainsi que les recherches menées sur l'élaboration de nouveaux matériaux composites a entraîné une relance des travaux sur les mesures de la permittivité diélectrique.

Afin d'interpréter les résultats que nous avons obtenus lors des essais de suivis des trajectoires thermiques par radiométrie micro-onde au cours d'opérations de frittage, nous avons tenté de déterminer la permittivité diélectrique des matériaux pulvérulents utilisés (SiC, Al, mélanges SiC/Al). Les premiers tests réalisés à partir de résonateurs microrubans **[RIC 06]** ont permis d'obtenir un ordre de grandeur entre 0,1 et 4 GHz de la permittivité diélectrique de la poudre SiC utilisée. Afin d'obtenir une estimation plus précise et pour extraire la permittivité d'autres matériaux (comme par exemple la poudre d'aluminium) d'une façon plus rigoureuse et plus aisée, nous avons mis en œuvre une nouvelle technique basée sur l'utilisation de lignes microruban faisant office de cellules de mesure. L'objectif visé dans un premier temps est la détermination, à la température ambiante, de la permittivité diélectrique de matériaux pulvérulents (non compactés) sur une large bande de fréquences. Après une description du principe général de la méthode utilisée, nous présentons les travaux de simulations électromagnétiques que nous avons entrepris afin de vérifier la validité de la méthode proposée.

II.2 Mise en oeuvre d'une caractérisation diélectrique large-bande

Parmi les méthodes utilisées au Laboratoire et celles présentées dans la littérature c'est l'utilisation d'une ligne de propagation partiellement chargée par le matériau diélectrique à caractériser qui nous a semblé la plus simple à mettre en œuvre pour atteindre notre objectif : déterminer la permittivité diélectrique de matériaux pulvérulents à température ambiante sur une large bande de fréquences. Nous avons déjà présenté au chapitre I des essais réalisés avec une ligne microruban gravée sur un substrat diélectrique FR4, les résultats obtenus étaient cohérents avec les données de la littérature. Cependant, la détermination de la permittivité diélectrique avait été entreprise en modélisant la structure de propagation à l'aide du logiciel IE3D en ajustant la permittivité du matériau testé de façon à faire coïncider au mieux les paramètres de transmission mesurés et calculés. Ce mode opératoire nécessite un temps de calcul trop important et d'autre part le substrat FR4 utilisé présentait des pertes diélectriques élevées et la présence des connecteurs SMA était prise en compte de façon trop simplifiée.

Nous avons donc recherché dans un premier temps une méthode simple permettant de déterminer la constante de propagation d'un tronçon de ligne microruban chargé par le matériau à caractériser qui permette de s'affranchir des connecteurs et des transitions situées entre les connecteurs et la zone chargée par le matériau. A partir de la connaissance de la constante de propagation, il est alors possible (sous certaines conditions) d'en déduire la permittivité diélectrique du matériau en utilisant une modélisation bidimensionnelle dans un plan orthogonal à la direction de propagation de la structure de propagation que constitue la ligne microruban chargée par le matériau à caractériser.

Nous avons donc étudié la faisabilité de cette technique sur une bande de fréquence allant de 0,1 GHz à 6 GHz. Nous avions en effet à notre disposition dans le groupe MITEC un analyseur de réseaux portable fonctionnant dans cette bande de fréquences qui couvre les fréquences utilisées pour le frittage micro-onde (2,45 GHz) des poudres et les mesures de températures par radiométrie micro-onde.

Cet analyseur peut être facilement piloté par un microordinateur portable dans lequel sera implanté le modèle d'extraction de la permittivité diélectrique. Cela nous permettra donc

de concevoir un démonstrateur dédié à la mesure de permittivité dans la bande 0,1-6 GHz que l'on peut aisément transporter sur un site industriel.

II.2.1 Présentation de la méthode utilisée

II.2.1.1 Détermination de la constante de propagation : Méthode de Bianco-Parodi

Différentes techniques permettent de déduire la constante de propagation : $\gamma^*=\alpha+j\beta$ d'une structure de propagation à partir de la mesure des paramètres S. Au cours de notre étude bibliographique, nous avons retenu les travaux de M. Bianco et M. Parodi publiés en 1976 qui proposent une méthode habile d'extraction de la constante de propagation du mode fondamental d'une ligne microruban. Nous allons à présent rapidement décrire la méthodologie employée. La détermination de la constante de propagation est basée sur la mesure des paramètres S de deux quadripôles (lignes de propagation), possédant des topologies identiques, et qui ne diffèrent entre eux que d'un incrément de longueur de ligne noté ΔL **[BIA 76]**.

Les quadripôles Q_1 et Q_2 (**Figure II-1**) sont composés d'un point de vue schématique **[PAL 92]** :

- de deux accès constitués par deux tronçons de ligne d'impédance caractéristique égale à 50 Ω,
- de deux transitions identiques R_1 et R_2, entre les lignes d'accès et la ligne d'étude de largeur W_0,
- d'une ligne de largeur W_0 et de longueur égale à L_1 ou L_2.

Le deuxième quadripôle (**Figure II-1(b)**), ne diffère du premier (**Figure II-1(a)**) que d'une longueur $\Delta L = L_2 - L_1$ de la ligne de largeur W_0.

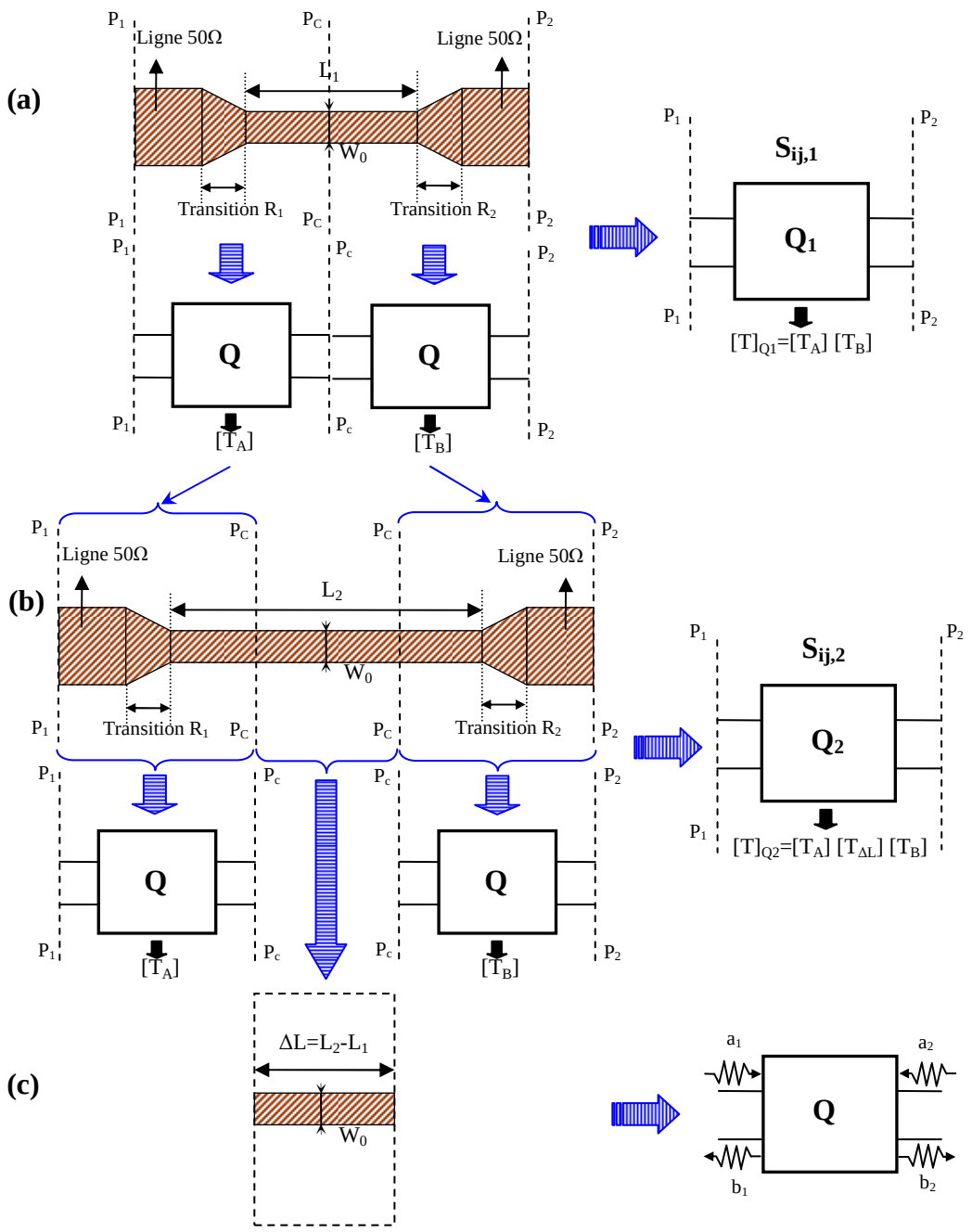


Figure II-1: Méthode utilisée pour la détermination de la constante de propagation du tronçon de ligne de longueur $\Delta L=L_2-L_1$ et de largeur W_0.

Dans le développement qui suit, nous montrons qu'à partir de la connaissance des paramètres S relatifs aux quadripôles Q_1 et Q_2, nous obtenons la constante de propagation complexe de la ligne de largeur W_0 et de longueur ΔL (**Figure II-1(c)**).

Cette technique repose sur la mise en cascade de quadripôles. Plutôt que d'utiliser la matrice chaîne classique, nous privilégions l'emploi de la matrice de transfert $[T]$: les

grandeurs de sortie sont exprimées en fonction des grandeurs d'entrée. Cette matrice possède des propriétés analogues pour ce qui concerne le chaînage de quadripôles. Nous remémorons l'expression matricielle de la matrice de transfert en fonction des ondes entrantes et sortantes à chaque accès du quadripôle (équation **II-1**).

$$\begin{bmatrix} a_1 \\ b_1 \end{bmatrix} = [T] \begin{bmatrix} a_2 \\ b_2 \end{bmatrix} \qquad \textbf{II- 1}$$

Les paramètres de la matrice de transfert globale sont exprimés en fonction des termes de la matrice [S]. Dans ce but, nous rappelons également la transformation suivante :

$$[T]_{L1} = \frac{1}{S_{21,L1}} \begin{bmatrix} 1 & -S_{22,L1} \\ S_{11,L1} & -\Delta S_{L1} \end{bmatrix} \text{ et } [T]_{L2} = \frac{1}{S_{21,L2}} \begin{bmatrix} 1 & -S_{22,L2} \\ S_{11,L2} & -\Delta S_{L2} \end{bmatrix} \qquad \textbf{II-2}$$

où $\Delta S_{L1} = S_{11,L1}\, S_{22,L1} - S_{12,L1}\, S_{21,L1}$ et $\Delta S_{L2} = S_{11,L2}\, S_{22,L2} - S_{12,L21}\, S_{21,L2}$

Nous posons alors l'hypothèse suivante : la propagation de l'onde dans les structures de longueur L_1, L_2 et les transitions R_1, R_2 est monomodale. Les discontinuités ne génèrent aucun mode supérieur, seul le mode fondamental se propage.

Comme indiqué sur la **Figure II-1(a)**, le quadripôle Q_1 est décomposé en deux quadripôles élémentaires notés Q_A et Q_B. Les matrices de transfert respectives $[T_A]$ et $[T_B]$ sont définies dans les plans P_1, P_C et P_2, P_C. C'est dans les plans P_1 et P_2 que seront effectués ultérieurement les relevés des paramètres S. Le plan P_C est fictif et peut être localisé, à priori, en tout point de la ligne de longueur L_1. La matrice de transfert $[T]$ du quadripôle Q_1 s'exprime alors par la relation suivante :

$$[T]_{Q1} = [T_A]\,[T_B] \qquad \textbf{II-3}$$

Le second quadripôle Q_2 (**Figure II-1(b)**) est une réplique du précédent, la ligne de largeur W_0 possède ici une longueur $L_2 > L_1$. Le quadripôle Q_2 est alors constitué du quadripôle Q_A, du tronçon de ligne de largeur W_0 et de longueur ΔL, puis du quadripôle Q_B. Sa matrice de transfert s'exprime donc par la relation :

$$[T]_{Q2} = [T_A]\,[T_{\Delta L}]\,[T_B] \qquad \textbf{II-4}$$

A partir des deux formulations (eq.**II-3** et eq.**II-4**), nous pouvons écrire l'égalité suivante:

$$[T]_{Q1}\,[T]^{-1}_{Q2} = [T_A]\,[T_{\Delta L}]\,[T_A]^{-1} \qquad \textbf{II-5}$$

Cela implique que la somme des termes de la diagonale principale des matrices $[T_{\Delta L}]$ et $[T]_{Q1}[T]^{-1}_{Q2}$, ou encore que leurs traces sont égales. Nous avons donc :

$$\mathrm{tr}[T_{\Delta L}] = \mathrm{tr}[T]_{Q1}[T]_{Q2}^{-1} \qquad \textbf{II-6}$$

Dans l'équation **II-6**, la partie droite peut être exprimée en fonction des paramètres $S_{ij,L1}$ et $S_{ij,L2}$ mesurés sur les quadripôles Q_1 et Q_2. Quant à la partie gauche, elle peut être exprimée par la relation:

$$tr\left[T_{\Delta L}\right] = \frac{1-\Delta S}{S_{21}} \qquad \textbf{II-7}$$

Sachant que la trace de la matrice de transfert $[T_{\Delta L}]$ d'un tronçon de ligne d'impédance quelconque et de longueur ΔL est égale à $2ch(\gamma^*\Delta L)$ où $\gamma^*=\alpha+j\beta$ représente la constante de propagation complexe, nous obtenons finalement la formulation générale suivante :

$$2\,\mathrm{ch}(\gamma^*\Delta L) = \frac{S_{12,L1}^2 + S_{12,L2}^2 + S_{11,L1}S_{22,L2} + S_{11,L2}S_{22,L1} - S_{11,L1}S_{22,L1} - S_{11,L2}S_{22,L2}}{S_{12,L1}S_{12,L2}} \qquad \textbf{II-8}$$

Ainsi, la mesure des paramètres $S_{ij,1}$ et $S_{ij,2}$ des deux quadripôles Q_1 et Q_2 aboutit à la détermination de la constante de propagation du tronçon de ligne de longueur $\Delta L=L_2-L_1$.

Nous nous sommes donc inspirés de cette méthode pour déterminer la permittivité diélectrique de matériaux (en particulier sous forme de poudre) qui seront déposés sur deux tronçons de ligne microruban (**Figure II-2**) de longueur respective L_1 et L_2 et d'impédance caractéristique égale à 50 Ohms dans l'air. La permittivité des matériaux déposés sera calculée à partir de la connaissance de la constante de propagation γ^* du tronçon de ligne de longueur ΔL déterminée en appliquant la méthode de Bianco-Parodi **[QUE 94, QUE 96, HIN 01, HIN 02]**.

Avec cette méthode notre but est de réduire l'influence des fiches de connexion, des lignes d'accès (lignes microrubans dans l'air) et du porte-échantillon sur la détermination de la constante de propagation.

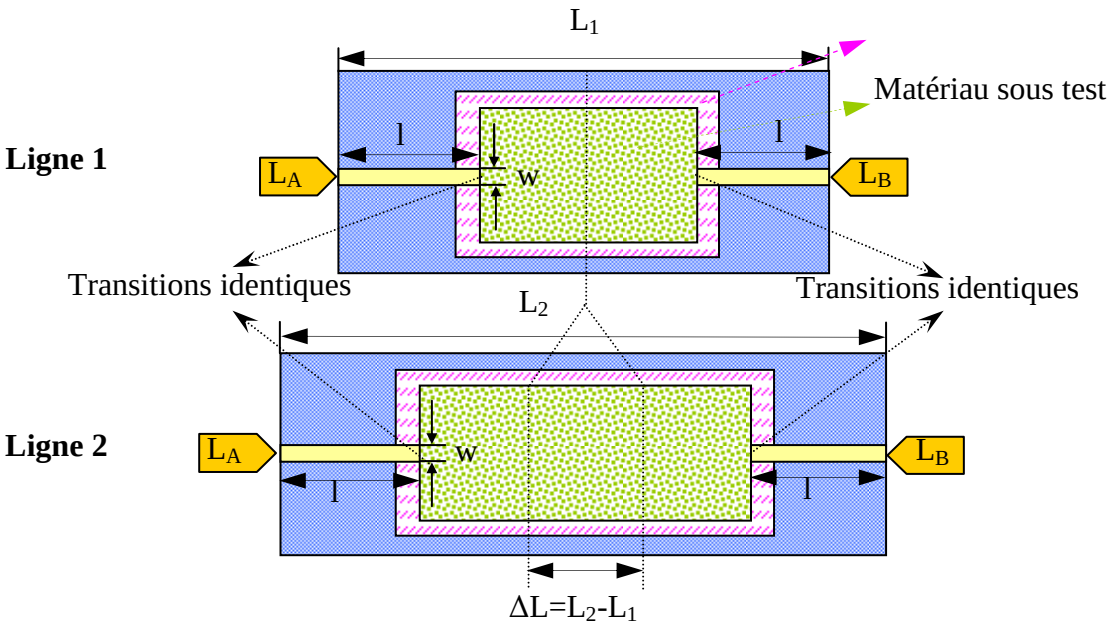


Figure II-2: Cellules de mesure (deux lignes microruban de longueurs respectives L_1 et L_2 partiellement recouvertes par le matériau à caractériser)

II.2.1.2 Extraction de la permittivité complexe du matériau: modélisation de la structure de propagation par la SDA unidimensionnelle

Afin de déterminer la permittivité du matériau déposé sur le tronçon de ligne de longueur ΔL, nous pouvons utiliser un logiciel de simulation électromagnétique tels que HFSS, CST Microwave Studio ou encore un code de calcul développé dans le Groupe MITEC basé sur la FDTD. Le problème à traiter se résume ici à l'étude des caractéristiques de propagation d'une structure (ligne microruban) invariante suivant l'axe de propagation. Nous pouvons donc nous limiter à une modélisation bidimensionnelle dans un plan de section droite de la structure. Les codes cités précédemment sont basés sur une résolution purement numérique des équations de propagation ou des équations de Maxwell. Le temps de calcul nécessaire à la détermination de la permittivité du matériau sous test à partir de la connaissance de la constante de propagation peut donc être important (nous avons en effet observé un temps de calcul minimum de 30 minutes par point de fréquence avec un ordinateur ayant un processeur de type Intel Core2 fonctionnant à 2,1 GHz et ayant 4 Go de mémoire RAM). Nous avons donc préféré utiliser un code de calcul basé sur l'Approche dans le

Domaine Spectral (SDA) **[BER 90**, **HUR 91**, **TEN 03]**. Dans cette méthode semi-analytique les équations de continuité entre les différentes couches (**Figure II-3)** sont écrites dans l'espace transformé de Fourier (α_m, y, z) de l'espace réel ce qui permet de nous ramener à la résolution d'un système d'équations algébriques. L'utilisation de ce code de calcul permet alors de réduire le temps de calcul à quelques secondes par point de fréquence avec le même matériel informatique.

La structure de propagation modélisée est schématisée sur la **Figure II-3**. Une analyse rigoureuse par la mise en œuvre de l'Approche dans le Domaine Spectral nécessite quelques hypothèses :

- Les différents milieux qui composent la structure de propagation (structure planaire) sont assimilés à des couches parallèles et supposés homogènes, isotropes et linéaires. Ils sont caractérisés par leur épaisseur et leur permittivité diélectrique complexe. Nous considérons qu'ils n'ont pas de propriétés magnétiques.
- Nous supposons l'absence de charges et de phénomènes de polarisation.
- Des murs électriques sont placés de part et d'autre de la structure, suffisamment loin pour ne pas perturber les phénomènes de propagation. Cela permet de faciliter le développement analytique du problème.

Du point de vue pratique nous avons défini les dimensions des cellules (en particulier les dimensions transversales) de façon à vérifier au mieux les hypothèses utilisées pour la mise en œuvre de la SDA.

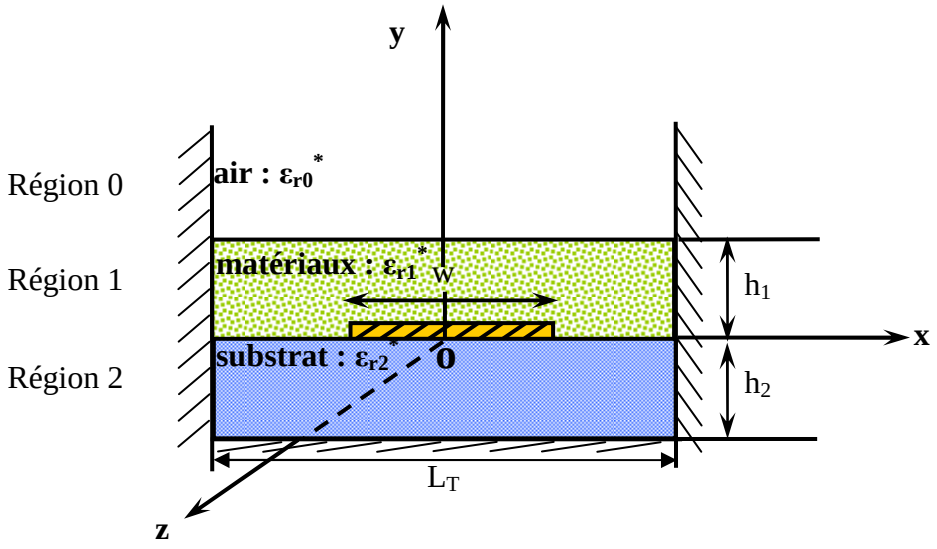


Figure II-3. Modèle de type ligne de transmission.

Toute étude de propagation se ramène à la résolution d'un problème aux valeurs propres. Habituellement après avoir considéré un axe privilégié de propagation (ici l'axe Oz), l'ensemble des composantes longitudinales des vecteurs d'onde, ou constantes de propagation, constitue le spectre de valeurs propres des modes recherchés. Ici, nous nous intéresserons uniquement au mode fondamental pour lequel nous pouvons calculer le diagramme de dispersion et l'affaiblissement en fonction de la fréquence.

Notre but est cependant d'utiliser ce modèle pour en extraire la permittivité complexe de l'une des couches (région 1 ou 2). Nous avons donc modifié la description du problème de façon à ce que la permittivité complexe de l'une des régions constitue maintenant la valeur propre à rechercher connaissant la constante de propagation du mode fondamental de la structure préalablement déterminée à partir de la méthode de Bianco-Parodi.

Si nous négligeons dans un premier temps l'influence de l'épaisseur de métallisation (ce point sera pris en compte ultérieurement), la difficulté essentielle réside dans l'écriture des conditions de continuité sur l'interface comportant le ruban métallique.

La simulation numérique basée sur la SDA permet d'exprimer les champs et les conditions de continuité dans un domaine transformé de l'espace direct ; ce domaine est obtenu en considérant la décomposition en série de Fourier des champs électromagnétiques suivant un axe parallèle à l'interface comportant le ruban métallique. Ainsi, cette méthode permet de décrire aisément les conditions de continuité sur cette interface en dépit de son inhomogénéité.

- **Expression des champs *E* et *H* dans les différentes régions**

Dans un premier temps, nous rappelons succinctement les étapes de la mise en oeuvre de l'Approche dans le Domaine Spectral. Les champs $\vec{E}$ et $\vec{H}$ caractérisent l'onde se propageant suivant la direction Oz. L'inhomogénéité de la structure dans un plan de section droite entraîne que les modes qui s'y propagent soient de nature hybride. Le mode fondamental étudié est de type pair, les composantes longitudinales des champs $\vec{E}$ et $\vec{H}$ respectent les deux conditions suivantes :

$$Ez(-x)=Ez(x)$$

$$Hz(-x)=-Hz(x) \qquad \textbf{II-9}$$

La connaissance de l'ensemble des champs électromagnétiques qui se propagent dans la structure passe par la résolution des équations d'Helmhotz :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial^2 x}+\frac{\partial^2}{\partial^2 y}-\gamma^{*2}+\omega^2\varepsilon_0\mu_0\varepsilon_{ri}^*\right)\begin{pmatrix}Ez_i\\ Hz_i\end{pmatrix}=0 \qquad \textbf{II-10}$$

avec $\varepsilon_{ri}^*=\varepsilon_{ri}'-j\varepsilon_{ri}''$ et $\varepsilon_{ri}''=\sigma_i/\omega\varepsilon_0$

où i : représente l'indice de la région (couche) considérée

γ^* : la constante de propagation

ε_{ri}^* : la permittivité complexe de la région i

σ_i : la conductivité de la région i

La présence de murs électriques en position $x=\pm L_T/2$, permet de décomposer l'ensemble du champ électromagnétique en série de Fourier. Les composantes longitudinales peuvent ainsi s'exprimer sous la forme:

$$\begin{aligned}Ez_i(x,y)&=\sum_{m=1}^{\infty}\left(\tilde{E}z_{is}(\alpha_m,y)\cdot\sin(\alpha_m x)+\tilde{E}z_{ic}(\alpha_m,y)\cdot\cos(\alpha_m x)\right)\\ Hz_i(x,y)&=\sum_{m=1}^{\infty}\left(\tilde{H}z_{is}(\alpha_m,y)\cdot\sin(\alpha_m x)+\tilde{H}z_{ic}(\alpha_m,y)\cdot\cos(\alpha_m x)\right)\end{aligned} \qquad \textbf{II-11}$$

où $\tilde{E}z_{is}$, $\tilde{E}z_{ic}$, $\tilde{H}z_{is}$ et $\tilde{H}z_{ic}$ sont les coefficients de Fourier des composantes Ez_i et Hz_i.

La parité du mode fondamental de type pair permet de simplifier les équations **II-11**, nous obtenons alors :

$$\begin{aligned}Ez_i(x,y)&=\sum_{m=1}^{\infty}\tilde{E}z_{ic}(\alpha_m,y)\cdot\cos(\alpha_m x)\\ Hz_i(x,y)&=\sum_{m=1}^{\infty}\tilde{H}z_{is}(\alpha_m,y)\cdot\sin(\alpha_m x)\end{aligned} \qquad \textbf{II-12}$$

La variable α_m prend des valeurs discrètes : $\alpha_m=\dfrac{(m-0.5)2\pi}{L_T}$ **II-13**

(où m est un nombre entier) afin de respecter l'annulation des composantes tangentielles du champ électrique sur les murs électriques. Les coefficients de Fourier $\tilde{E}z_{ic}$ et $\tilde{H}z_{is}$ s'expriment par les relations suivantes :

$$\tilde{E}z_{ic}(\alpha_m, y) = \frac{2}{L_T}\int_{-\frac{L_T}{2}}^{\frac{L_T}{2}} Ez_i(x,y)\cos(\alpha_m x)dx$$
$$\tilde{H}z_{is}(\alpha_m, y) = \frac{2}{L_T}\int_{-\frac{L_T}{2}}^{\frac{L_T}{2}} Hz_i(x,y)\sin(\alpha_m x)dx \qquad \textbf{II-14}$$

Dans ces conditions le système d'équation **II-10** appliqué aux grandeurs transformées devient :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial^2 y} - K_{mi}^2\right)\begin{bmatrix}\tilde{E}z_{ic}\\ \tilde{H}z_{is}\end{bmatrix} = 0 \qquad \textbf{II-15}$$

où le vecteur d'onde suivant l'axe Oy a pour expression :

$$K_{mi}^2 = \alpha_m^2 + \gamma^{*2} - \omega^2\varepsilon_0\mu_0\varepsilon_{ri}^* \qquad \textbf{II-16}$$

Pour le mode étudié, les composantes longitudinales obtenues à partir du système (II-15) ont pour forme :

- dans la région 0 ($y>h_1$) :

$$Ez_0(x,y) = \sum_{m=1}^{\infty} M(m)e^{-K_{m0}(y-h_1)}\cos(\alpha_m x)$$
$$Hz_0(x,y) = \sum_{m=1}^{\infty} N(m)e^{-K_{m0}(y-h_1)}\sin(\alpha_m x) \qquad \textbf{II-17}$$

- dans la région 1 ($0<y<h_1$) :

$$Ez_1(x,y) = \sum_{m=1}^{\infty}\left[O(m)sh(K_{m1}y) + P(m)ch(K_{m1}y)\right]\cos(\alpha_m x)$$
$$Hz_1(x,y) = \sum_{m=1}^{\infty}\left[Q(m)sh(K_{m1}y) + R(m)ch(K_{m1}y)\right]\sin(\alpha_m x) \qquad \textbf{II-18}$$

- dans la région 2 ($-h_2<y<0$) :

$$Ez_2(x,y)=\sum_{m=1}^{\infty}\left[S(m)sh(K_{m2}y)+T(m)ch(K_{m2}y)\right]\cos(\alpha_m x)$$
$$Hz_2(x,y)=\sum_{m=1}^{\infty}\left[U(m)sh(K_{m2}y)+V(m)ch(K_{m2}y)\right]\sin(\alpha_m x) \qquad \textbf{II-19}$$

Les grandeurs *N(m)*, *M(m)...V(m)* sont des termes complexes qui seront déterminés en écrivant les conditions de continuité aux différentes interfaces de la structure. Dans chaque région indicée i, les composantes transversales sont déduites des composantes longitudinales à partir de l'écriture des équations de Maxwell.

- **Ecriture des conditions de continuité**

- en $y=-h_2$, nous avons un plan métallique supposé parfaitement conducteur, les champs électriques tangentiels sont nuls :

$$Ex_2(x,-h_2)= Ez_2(x,-h_2)=0 \quad \forall x \qquad \textbf{II-20}$$

- en $y=0$, à l'interface ruban métallique-diélectrique nous avons :

a) continuité des composantes tangentielles du champ électrique, aussi bien sur a partie conductrice qu'en dehors de celle-ci, soit :

$$Ex_1(x,0)= Ex_2(x,0) \quad \forall x$$
$$Ez_1(x,0)= Ez_2(x,0) \quad \forall x \qquad \textbf{II-21}$$

b) discontinuité des composantes tangentielles du champ magnétique sur la partie conductrice qui fait apparaître des densités de courant superficiel J_X^r et J_Z^r :

$$Hx_1(x,0)- Ex_2(x,0)=J^r z(x,0) \quad \forall x$$
$$Hz_1(x,0)- Ez_2(x,0)=J^r x(x,0) \quad \forall x \qquad \textbf{II-22}$$

- en $y=h_1$, à l'interface entre la région 0 et région 1, nous avons :

a) continuité des composantes tangentielles du champ électrique

$$Ex_0(x,h_1)= Ex_1(x,h_1) \quad \forall x$$
$$Ez_0(x,h_1)= Ez_1(x,h_1) \quad \forall x \qquad \textbf{II-23}$$

b) continuité des composantes tangentielles du champ magnétique

$$Hx_0(x,h_1)= Hx_1(x,h_1) \quad \forall x$$

$$Hz_0(x,h_1)= Hz_1(x,h_1) \quad \forall x \qquad \textbf{II-24}$$

La présence des murs électriques en x=±L_T/2, nous permet également d'exprimer les densités de courant J_X^r et J_Z^r sur le ruban métallique (en y=0) sous la forme de séries de Fourier :

$$\begin{aligned} J_X^r(x,0) &= \sum_{m=1}^{\infty} \tilde{J}_X^r(\alpha_m,0)\cdot\sin(\alpha_m x) \\ J_Z^r(x,0) &= \sum_{m=1}^{\infty} \tilde{J}_Z^r(\alpha_m,0)\cdot\cos(\alpha_m x) \end{aligned} \qquad \textbf{II-25}$$

En tenant compte des relations d'orthogonalité :

$$\begin{aligned} &\int_{-\frac{L_T}{2}}^{\frac{L_T}{2}} \cos(\alpha_m x)\cdot\cos(\alpha_n x)dx = \frac{L_T}{2}\delta_{mn} \\ &\int_{-\frac{L_T}{2}}^{\frac{L_T}{2}} \sin(\alpha_m x)\cdot\sin(\alpha_n x)dx = \frac{L_T}{2}\delta_{mn} \\ &\int_{-\frac{L_T}{2}}^{\frac{L_T}{2}} \sin(\alpha_m x)\cdot\cos(\alpha_n x)dx = 0 \end{aligned} \qquad \textbf{II-26}$$

où δ_{mn}=1 si α_m=α_n≠0 et δ_{mn}=0 si α_m≠α_n

De l'ensemble des conditions de continuité aux différentes interfaces et des expressions des champs *E* et *H* dans les différentes régions, nous aboutissons au système matriciel suivant :

$$\begin{pmatrix} B'_{11}(\alpha_m,\gamma^*,\omega,\varepsilon_{ri}^*) & B'_{12}(\alpha_m,\gamma^*,\omega,\varepsilon_{ri}^*) \\ B'_{21}(\alpha_m,\gamma^*,\omega,\varepsilon_{ri}^*) & B'_{22}(\alpha_m,\gamma^*,\omega,\varepsilon_{ri}^*) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{J}_X^r(\alpha_m,0) \\ \tilde{J}_Z^r(\alpha_m,0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{E}x(\alpha_m,0) \\ \tilde{E}z(\alpha_m,0) \end{pmatrix} \qquad \textbf{II-27}$$

Où $\tilde{E}x(\alpha_m,0)$, $\tilde{E}z(\alpha_m,0)$, $\tilde{J}_X^r(\alpha_m,0)$, $\tilde{J}_Z^r(\alpha_m,0)$ sont les composantes des champs électriques et des densités de courant sur l'interface contenant le ruban conducteur, exprimées dans l'espace transformé de Fourier. Les termes B'_{11}, B'_{12}, B'_{21}, B'_{22} sont les éléments de la

fonction de Green dyadique exprimés dans le domaine transformé de Fourier qui dépendent en particulier de la constante de propagation de la structure et des caractéristiques des différents milieux dont la permittivité diélectrique.

- **Prise en compte des pertes métalliques**

L'Approche dans le Domaine Spectral ne permet pas de prendre en compte de façon rigoureuse des métallisations de conductivité finie et d'épaisseur non nulle. Mais il est toutefois possible d'introduire la notion d'impédance de surface Zs qui permet d'obtenir des résultats relativement correctes en présence d'un ruban métallique non infiniment mince et non parfait **[ITO 73, NGH 91, KIN 90]**.

Dans ce cas le champ électrique sur l'interface y=0 peut être considéré comme la somme de deux composantes : un champ électrique E^r sur le ruban conducteur et un champ électrique E^d en dehors du ruban. Nous pouvons donc écrire dans l'espace transformé de Fourier les relations suivantes:

$$\begin{aligned} \tilde{E}x &= \tilde{E}^r x + \tilde{E}^d x = B_{11}^{'}.\tilde{J}^r x + B_{12}^{'}.\tilde{J}^r z \\ \tilde{E}z &= \tilde{E}^r z + \tilde{E}^d z = B_{21}^{'}.\tilde{J}^r x + B_{22}^{'}.\tilde{J}^r z \end{aligned} \qquad \textbf{II-28}$$

avec $\tilde{E}^r x = Zs.\tilde{J}^r x$ et $\tilde{E}^r z = Zs.\tilde{J}^r z$. Le terme $\tilde{J}^r$ représente la densité de courant sur le ruban métallique. Nous aboutissons alors au système matriciel modifié :

$$\begin{pmatrix} B_{11}(\alpha_m, \gamma^*, \omega, \varepsilon_{ri}^*) & B_{12}(\alpha_m, \gamma^*, \omega, \varepsilon_{ri}^*) \\ B_{21}(\alpha_m, \gamma^*, \omega, \varepsilon_{ri}^*) & B_{22}(\alpha_m, \gamma^*, \omega, \varepsilon_{ri}^*) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{J}^r x(\alpha_m, 0) \\ \tilde{J}^r z(\alpha_m, 0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{E}^d x(\alpha_m, 0) \\ \tilde{E}^d z(\alpha_m, 0) \end{pmatrix} \qquad \textbf{II-29}$$

où $B_{11} = (B_{11}^{'} - Zs)$; $B_{22} = (B_{22}^{'} - Zs)$; $B_{12} = B_{12}^{'}$ et $B_{21} = B_{21}^{'}$.

L'impédance de surface peut s'exprimer par la relation ci-dessous, dans le cas où l'épaisseur '*t*' de métallisation reste faible par rapport à la largeur '*W*' du ruban de conductivité σ:

$$Zs = \sqrt{\frac{j\omega\mu_0}{\sigma}}.\coth\left(\sqrt{j\omega\mu_0\sigma}.t\right) \qquad \textbf{II-30}$$

➢ Résolution du système matriciel

La résolution du système matriciel **II-29**, est réalisée à partir d'une méthode des moments connue sous le nom de méthode de Galerkin **[PRI 84]**.

Cette méthode consiste à :

a) décomposer les densités de courant sur le ruban métallique sur une base de fonctions connues $Jx_i(x, 0)$ et $Jz_i(x, 0)$:

$$J_X^r(x,0) = \sum_{i=1}^{I} A_i Jx_i(x,0)$$
$$J_Z^r(x,0) = \sum_{j=1}^{J} C_j Jz_j(x,0) \qquad \textbf{II-31}$$

Les coefficients de pondération A_i et C_j sont des constantes inconnues à déterminer.

b) définir un produit scalaire :

Sur l'interface séparant les régions 1 et 2, les composantes tangentielles du champs électrique $E_d\ (x,0)$ sont nulles sur le ruban conducteur et la densité de courant superficiel n'existe que sur ce ruban conducteur. Ainsi le produit scalaire de ces deux grandeurs est nul sur l'interface y=0. Nous pouvons donc écrire les relations suivantes :

$$\left\langle E_X^d(x,0), J_X^{r*}(x,0) \right\rangle = \int_{-L_T/2}^{+L_T/2} E_X^d(x,0).J_X^{r*}(x,0).dx = 0$$
$$\left\langle E_Z^d(x,0), J_Z^{r*}(x,0) \right\rangle = \int_{-L_T/2}^{+L_T/2} E_Z^d(x,0).J_Z^{r*}(x,0).dx = 0 \qquad \textbf{II-32}$$

Le symbole * désigne le complexe conjugué.

Par application du théorème de Parseval, ces produits scalaires se transforment en sommations discrètes dans le domaine spectral :

$$\left\langle E_X^d(x,0), J_X^{r*}(x,0) \right\rangle = L\sum_{m=1}^{M} \tilde{E}_X^d(\alpha_m,0)\cdot \tilde{J}_X^{r*}(\alpha_m,0)$$
$$\left\langle E_Z^d(x,0), J_Z^{r*}(x,0) \right\rangle = L\sum_{m=1}^{M} \tilde{E}_Z^d(\alpha_m,0)\cdot \tilde{J}_Z^{r*}(\alpha_m,0) \qquad \textbf{II-33}$$

où L est un coefficient qui dépend de la définition de la transformée de Fourier utilisée.

Ceci permet alors de transformer le système **II-29** en un système homogène **[PRI 84]** de dimension $K= (I+J)$ où les inconnues sont les coefficients de pondération A_i, C_j des fonctions de base :

$$\begin{aligned} &\sum_{i=1}^{I} K_{11}(n,i)A_i + \sum_{j=1}^{J} K_{12}(n,j)C_j = 0 \\ &\sum_{i=1}^{I} K_{21}(p,i)A_i + \sum_{j=1}^{J} K_{22}(p,j)C_j = 0 \end{aligned} \qquad \textbf{II-34}$$

I et J correspondent respectivement au nombre de fonctions de base utilisées pour décomposer les densités de courant $\tilde{J}_X^r$ et $\tilde{J}_Z^r$, et les quantités $K_{11}(n, i)$, $K_{12}(n, j)$, $K_{21}(p, i)$ et $K_{22}(p, j)$ s'expriment par :

$$\begin{aligned} K_{11}(n,i) &= \sum_{m=1}^{M} \tilde{J}_{xn}^*(\alpha_m) B_{11}(\alpha_m, \gamma^*, \omega, \varepsilon_{ri}^*) \tilde{J}_{xi}(\alpha_m) \\ K_{12}(n,j) &= \sum_{m=1}^{M} \tilde{J}_{xn}^*(\alpha_m) B_{12}(\alpha_m, \gamma^*, \omega, \varepsilon_{ri}^*) \tilde{J}_{zj}(\alpha_m) \\ K_{21}(p,i) &= \sum_{m=1}^{M} \tilde{J}_{zp}^*(\alpha_m) B_{21}(\alpha_m, \gamma^*, \omega, \varepsilon_{ri}^*) \tilde{J}_{xi}(\alpha_m) \\ K_{22}(p,j) &= \sum_{m=1}^{M} \tilde{J}_{zp}^*(\alpha_m) B_{22}(\alpha_m, \gamma^*, \omega, \varepsilon_{ri}^*) \tilde{J}_{zj}(\alpha_m) \end{aligned} \qquad \textbf{II-35}$$

Les entiers n et p varient respectivement de 1 à I et de 1 à J.

Les valeurs propres γ^* (lorsque l'on recherche les caractéristiques de propagation d'une structure) ou la permittivité inconnue d'une couche (si γ^* est connue), sont les solutions du problème et sont obtenues en annulant le déterminant de la matrice carrée K. L'ensemble des vecteurs propres correspondants (A_i, C_j) permet alors de calculer les champs électromagnétiques à l'interface contenant le ruban métallique. L'utilisation des équations de continuité conduit ensuite à la détermination de l'ensemble du champ électromagnétique dans toute la structure.

Les fonctions de base choisies pour décrire les densités de courant $J_X^r(x,0)$ et $J_Z^r(x,0)$ sont construites à partir des polynômes de Tchebyshev $U_n(\omega)$ et $T_n(\omega)$:

$$Jx_i(x,0) = \begin{cases} U_{2i}(\omega) & si\,|x| < w/2 \\ 0 & si\,|x| > w/2 \end{cases} \qquad \textbf{II-36}$$

$$Jz_i(x,0) = \begin{cases} T_{2(j-1)}(\omega)/\sqrt{1-\omega^2} & si\,|x| < w/2 \\ 0 & si\,|x| > w/2 \end{cases} \qquad \textbf{II-37}$$

où i est un nombre entier et $\omega=2x/w$, w étant la largeur du ruban métallique.

Ces fonctions permettent des développements peu étendus pour obtenir la solution physique du problème et prennent en compte les symétries ainsi que les effets de bord par le terme $(1-\omega^2)^{-1/2}$. De plus les transformées de Fourier des polynômes U_n et T_n s'expriment à partir des fonctions de Bessel J_n de première espèce. Cela permet d'obtenir une formulation analytique des densités de courant $\tilde{J}_X^r(\alpha_m,0)$ et $\tilde{J}_Z^r(\alpha_m,0)$ dans l'espace transformé de Fourier :

$$\begin{aligned} \tilde{J}_X^r(\alpha_m,0) &= \sum_{i=1}^{I} A_i\left(\frac{w\pi}{2}\right).\frac{J_{2i}(\alpha_m w/2)}{(-j)^{2i}.\alpha_m} \\ \tilde{J}_Z^r(\alpha_m,0) &= \sum_{i=1}^{J} C_j\left(\frac{w\pi}{2}\right).\frac{J_{2(i-1)}(\alpha_m w/2)}{(-j)^{2(i-1)}} \end{aligned} \qquad \textbf{II-38}$$

avec A_i et C_j : les coefficients de pondération des fonctions de base

I et J : le nombre de fonctions de base suivant chaque direction Ox et Oz

w : la largeur du ruban métallique

- **Permittivité effective**

A partir des caractéristiques de propagation $\gamma^*=\alpha+j\beta$, il est possible de déterminer la permittivité relative effective de la structure de propagation:

$$\varepsilon_{r_{eff}} = \left(\frac{\lambda_0}{\lambda_g}\right)^2 = \frac{c^2\beta^2}{4\pi^2 f^2} \qquad \textbf{II-39}$$

avec λ_0 : la longueur d'onde dans l'espace libre ; λ_g : la longueur d'onde guidée

c : la célérité de la lumière ($3\ 10^8$m s^{-1}) ; β : la constante de phase (en rad m^{-1})

f : la fréquence de travail (en Hz).

➢ Impédance caractéristique

Dans le cadre de l'approximation quasi-TEM, la définition la plus généralement utilisée pour calculer l'impédance caractéristique d'une ligne microruban est l'impédance caractéristique en courant Zc_i^* exprimée sous la forme :

$$Zc_i^* = \frac{2P^*}{I.I^*} \qquad \textbf{II-40}$$

P^* représente le flux de la puissance transportée par le mode de propagation considéré (ici le mode fondamental de nature quasi-TEM). Le flux de puissance traversant la section droite de la structure étudiée a pour expression :

$$P^* = \frac{1}{2}\int_s (\vec{E} \wedge \vec{H}^*)d\vec{s} = \frac{1}{2}\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\frac{L_T}{2}}^{\frac{L_T}{2}} \left[Ex_i(x,y)Hy_i^*(x,y) - Ey_i(x,y)Hx_i^*(x,y)\right]dxdy \qquad \textbf{II-41}$$

où S représente la section droite de la structure et 'i' l'indice de la région considérée.

Cette quantité peut être calculée dans le domaine transformé de Fourier où elle s'exprime sous la forme :

$$P^* = \frac{1}{2.L_T}.\sum_{m=1}^{M}\int_{-\infty}^{+\infty}\left[\tilde{E}x_i(\alpha_m,y)\tilde{H}y_i^*(\alpha_m,y) - \tilde{E}y_i(\alpha_m,y)\tilde{H}x_i^*(\alpha_m,y)\right]dy \qquad \textbf{II-42}$$

Le courant direct I correspond à la circulation de la composante H_x sur le ruban métallique dans la section droite de la structure :

$$I = \int_{-\frac{w}{2}}^{\frac{w}{2}}\left[Hx_1(x,0) - Hx_2(x,0)\right]dx \qquad \textbf{II-43}$$

Après avoir présenté les développements essentiels de la méthode nous abordons dans le paragraphe suivant les essais de validation de celle-ci.

II.2.2 Validation de la méthode à partir de simulations électromagnétiques

Avant de passer à l'étape expérimentale, nous avons d'abord testé par des simulations électromagnétiques la faisabilité de la détermination de la constante de propagation d'un tronçon de ligne microruban sur lequel est déposé un matériau diélectrique placé dans un porte-échantillon.

Dans un premier temps nous avons calculé les paramètres S des 2 cellules (présentées sur la **Figure II-2**) à l'aide du simulateur électromagnétique 3D HFSS **[ANS 10]**. L'étude de la structure en 3 dimensions permet de tenir compte des discontinuités. La constante de propagation est ensuite déterminée à partir des paramètres S calculés en appliquant la méthode proposée par Bianco et Parodi. Les résultats obtenus ont été comparés à ceux tirés d'une modélisation bidimensionnelle de la structure (correspondant au plan orthogonal à la direction de propagation pour le tronçon de ligne de longueur ΔL) à partir du logiciel HFSS et du code de calcul basé sur l'Approche dans le Domaine Spectral (SDA).

Les comparaisons ont été effectuées pour 3 configurations:

- lignes microrubans à vide sans porte-échantillon,
- lignes microrubans à vide avec porte-échantillon,
- lignes microrubans avec porte-échantillon contenant un matériau.

II.2.2.1 Lignes microrubans à vide sans porte-échantillon

Les simulations ont été effectuées en considérant la gamme de fréquences : 0,1 GHz à 6 GHz. Nous nous sommes limités à cette bande de fréquences car compte-tenu des dimensions des cellules les simulations avec HFSS nécessitent des tailles mémoires trop importantes. La **Figure II-4** présente les deux structures modélisées avec le logiciel HFSS. Nous avons considéré 2 lignes microrubans de longueur L_1= 76 mm et L_2= 101,5 mm gravées sur un substrat diélectrique RT Duroid 5880 qui présente une épaisseur de 0,508 mm et une permittivité ε^*_r = 2,2-j.0,00198. Elles ont une largeur égale à 1,54 mm afin d'obtenir une

impédance caractéristique de 50 Ω (à vide), l'épaisseur de métallisation est de 17,5 µm et la largeur du substrat diélectrique est de 50 mm.

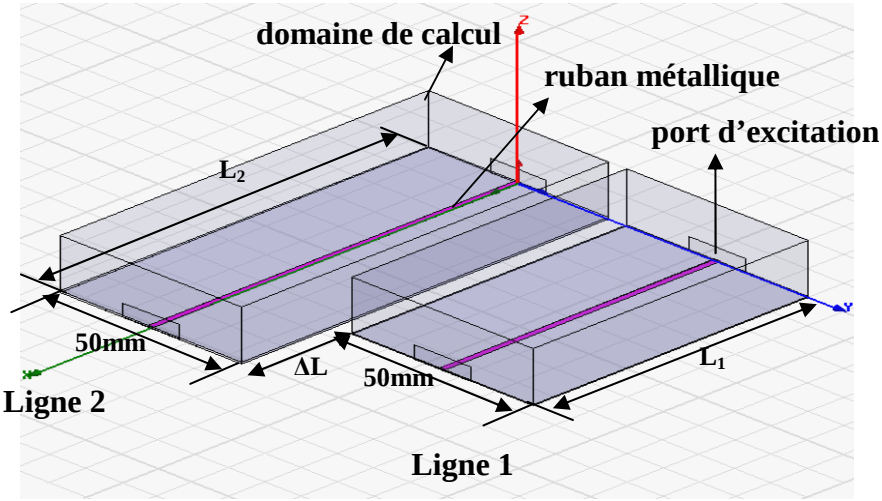


Figure II-4. Modélisation des lignes microrubans à vide.

Les résultats obtenus (α et β) sont donnés sur les **Figures II-5** et **II-6**.

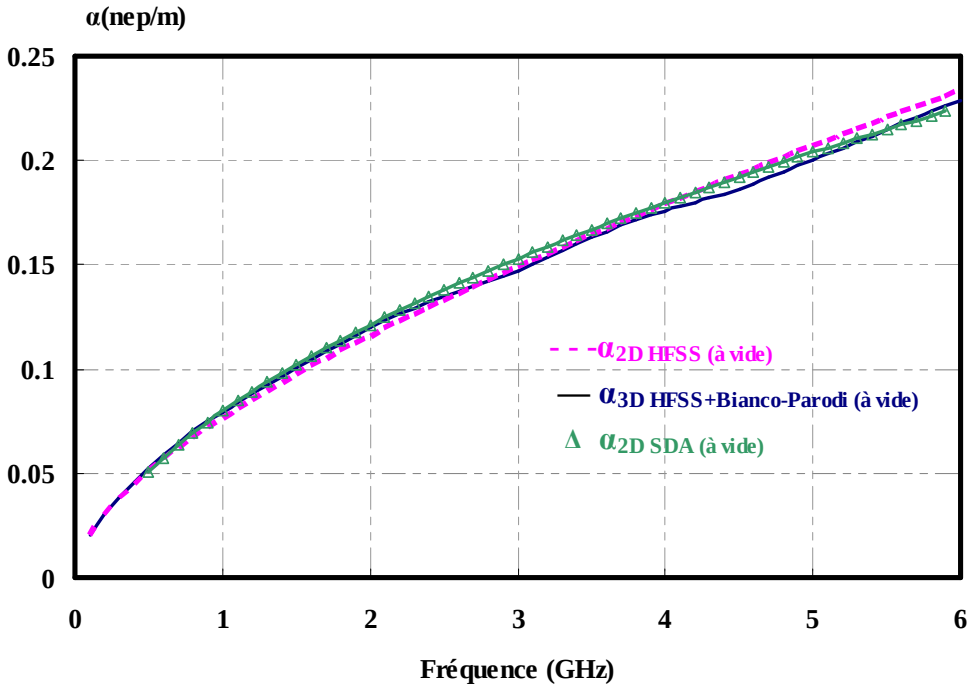


Figure II-5. Simulation de l'atténuation α obtenue avec HFSS (modèle 3D) associé avec la méthode de Bianco-Parodi, avec HFSS (modèle 2D), et avec la SDA. (ligne à vide sans porte-échantillon)

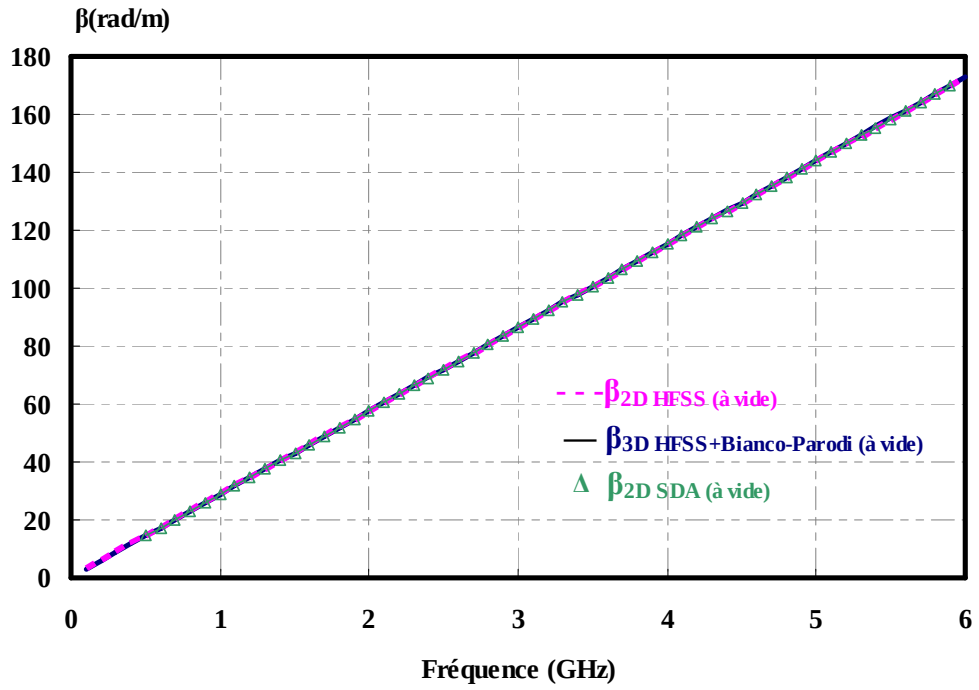


Figure II-6. Simulation de la constante de phase β obtenue avec HFSS (modèle 3D) associé avec la méthode de Bianco-Parodi, avec HFSS (modèle 2D), et avec la SDA. (ligne à vide sans porte-échantillon)

Nous observons un bon accord entre les 3 modèles utilisés sur toute la bande des fréquences considérées.

II.2.2.2 Lignes microrubans à vide avec porte-échantillon

Compte-tenu de la nature pulvérulente des matériaux que nous désirons caractériser, la solution la plus simple consiste à déposer la poudre sur une partie des lignes microrubans à l'intérieur d'un porte-échantillon. Ce dernier se présente sous la forme d'un cadre rectangulaire dont les parois présentent une épaisseur de 5mm et une hauteur de 5mm. L'ouverture destinée à recevoir l'échantillon est de 30mm × 36mm pour la ligne 1 et 30 mm × 61,5 mm pour la ligne 2 (**Figure II-7**). Le matériau choisi est du Plexiglass de permittivité ε_r^*=2,5-j0,005 qui présente de faibles pertes. Avant d'aller plus loin nous avons d'abord vérifié que la méthode de Bianco-Parodi permettait de s'affaranchir de sa présence et que nous retrouvions les résultats précédents (paragraphe *II.2.2.1*). Nous avons donc recalculé les paramètres S des deux lignes en présence du porte-échantillon, puis nous avons extrait la constante de propagation du tronçon de ligne (de longueur ΔL=25,5mm) avec la méthode de Bianco-Parodi.

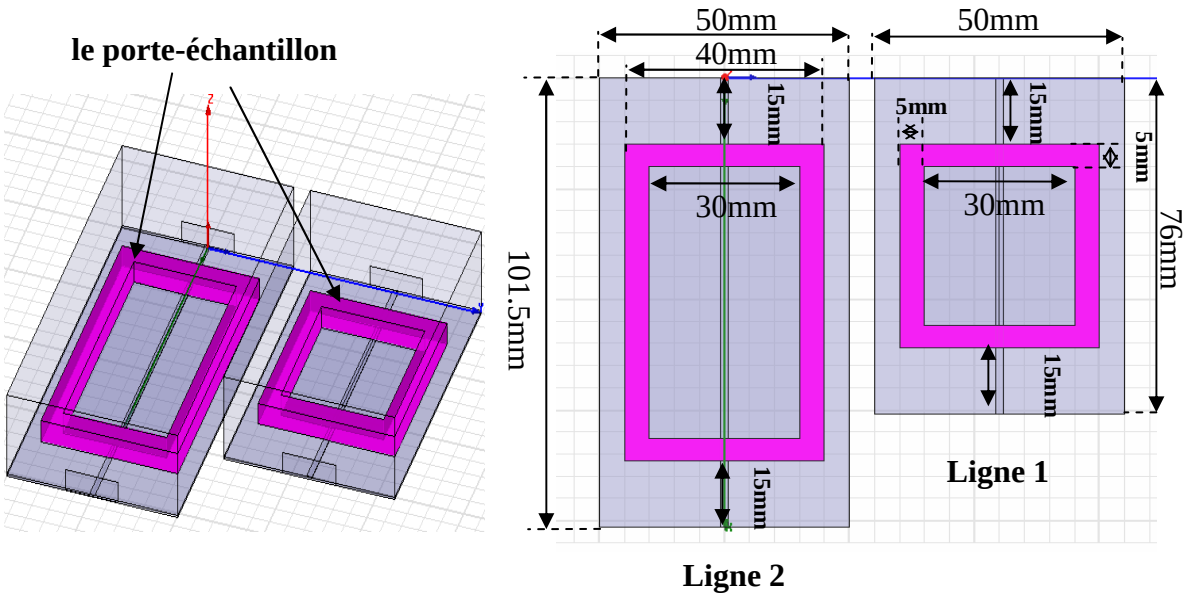


Figure II-7. Modélisation des lignes microrubans à vide avec porte-échantillon.

Les **Figures II-8** et **II-9**, donnent les résultats obtenus pour α et β.

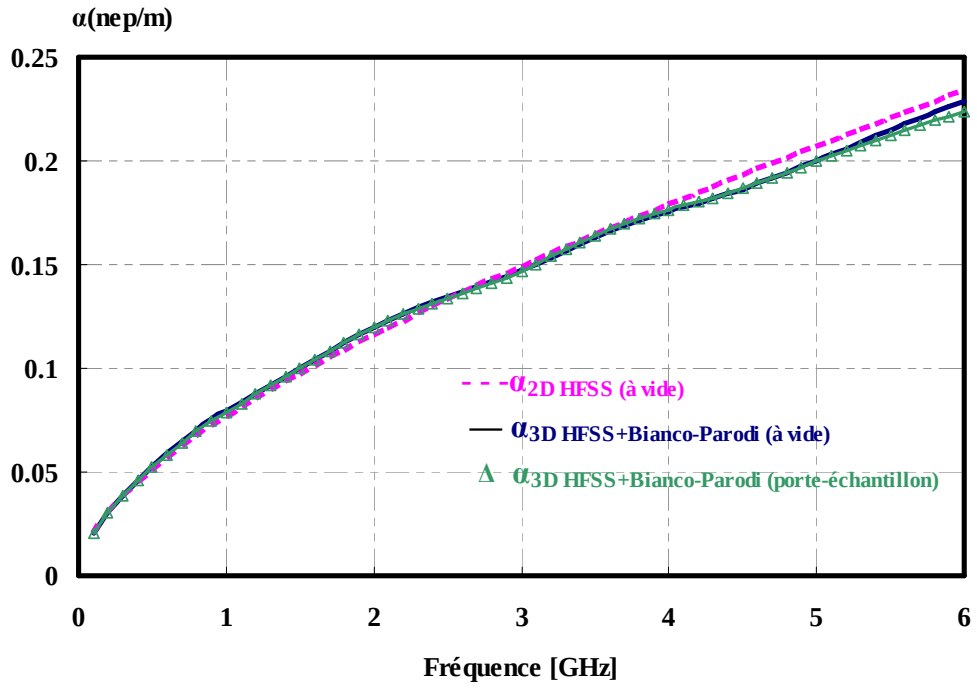


Figure II-8. Simulation de l'atténuation α obtenue avec et sans porte-échantillon. Calculs effectués avec HFSS (modèle 3D) associé avec la méthode de Bianco-Parodi. (ligne à vide avec porte-échantillon)

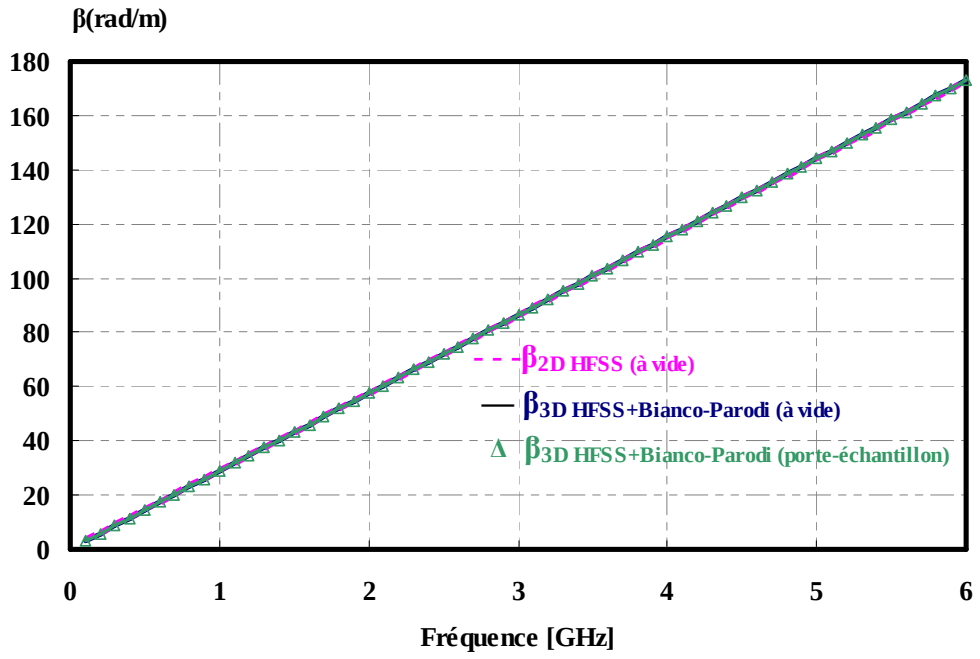


Figure II-9. Simulation de la constante de phase β obtenue avec et sans porte-échantillon.Calculs effectués avec HFSS (modèle 3D) associé avec la méthode de Bianco-Parodi. (ligne à vide avec porte-échantillon)

Nous constatons que la présence du porte-échantillon ne perturbe pas les résultats. Nous avons utilisé un porte-échantillon dont la largeur intérieure est égale à 30 mm ceci afin de respecter les hypothèses simplificatrices qui ont été utilisées pour la mise en œuvre du modèle basé sur la SDA. Ainsi les parois du porte-échantillon sont suffisamment éloignées du ruban métallique pour ne pas perturber la configuration du champ électromagnétique dans son voisinage.

II.2.2.3 Lignes microrubans partiellement couvertes par un matériau

Nous avons ensuite simulé la présence d'un matériau qui occupe tout le volume intérieur du porte-échantillon (**Figure II-10)**. Les résultats obtenus, présentés sur les **Figures II-11** et **II-12**, correspondent au cas d'un matériau de 5 mm d'épaisseur et de permittivité ε^*_r= 8-j0,8 (ordre de grandeur de la permittivité d'une poudre SiC) considérée constante sur toute la bande de fréquences.

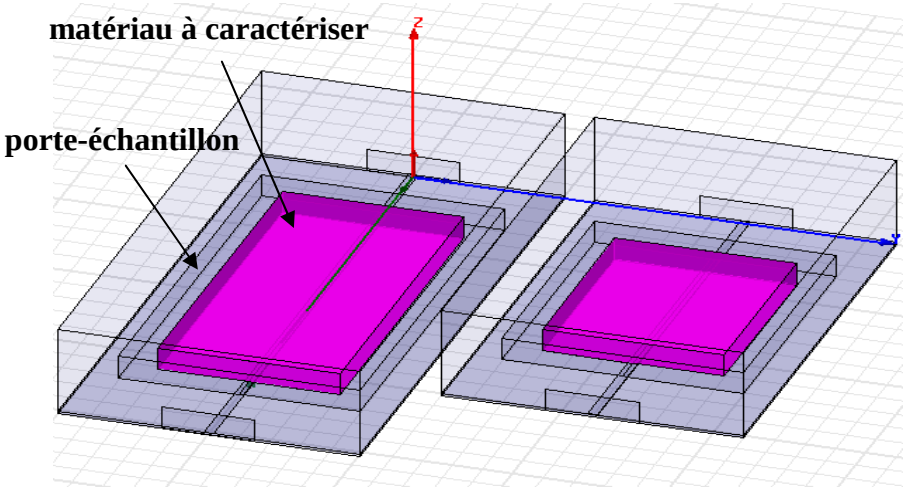


Figure II-10. Modélisation des lignes partiellement recouvertes d'un matériau placé dans le porte-échantillon.

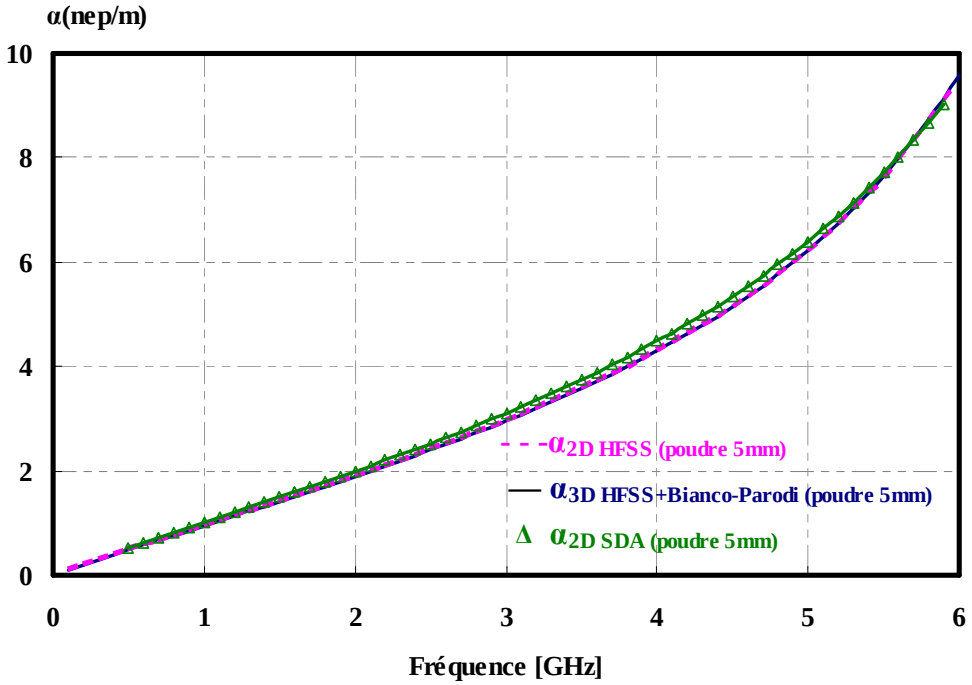


Figure II-11. Simulation de l'atténuation α obtenue avec HFSS (modèle 3D) associé avec la méthode de Bianco-Parodi, avec HFSS (modèle 2D), et avec la SDA. (ligne partiellement couverte par un matériau)

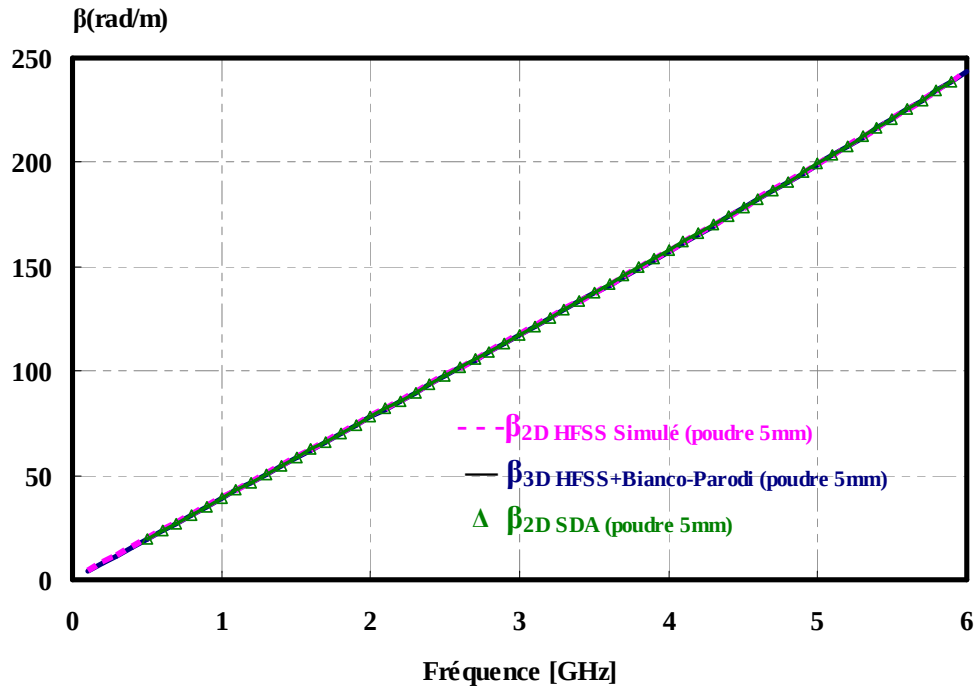


Figure II-12. Simulation de la constante de phase β obtenue avec HFSS (modèle 3D) associé avec la méthode de Bianco-Parodi, avec HFSS (modèle 2D), et avec la SDA. (ligne partiellement couverte par un matériau)

Nous retrouvons à nouveau un bon accord entre les résultats obtenus à partir des 3 méthodes utilisées. La présence du matériau a entraîné une augmentation du terme β mais aussi de l'atténuation α due aux pertes diélectriques.

A ce stade, nous avons donc vérifié par des simulations que la méthode de Bianco-Parodi appliquée à notre problème permet bien de déterminer la constante de propagation d'une ligne microruban recouverte d'un matériau diélectrique de quelques millimètres d'épaisseur. Nous avons également constaté que le code de calcul basé sur la SDA donne des résultats quasiment similaires à ceux obtenus avec le logiciel HFSS.

II.2.2.4 Détermination de la permittivité complexe d'un matériau

L'étape suivante schématisée sur la **Figure II-13** a consisté à simuler l'extraction, à l'aide du modèle basé sur la SDA, de la permittivité diélectrique du substrat (ε^*_r= 2,2-j.0,00198) sur lequel sont gravées les lignes microrubans ; puis celle d'un matériau (ε^*_r= 8-j.0,8) placé dans le porte-échantillon. Comme précédemment, les paramètres S des deux cellules ont été calculés à partir d'une modélisation 3D avec HFSS puis la constante de propagation en est déduite à partir de l'expression **II-8**. Cette grandeur devient alors une

donnée pour le code d'extraction de la permittivité (basé sur la SDA) de l'une des couches (substrat ou matériau déposé sur la ligne) du modèle de la structure de propagation étudiée (**Figure II-13**).

Les **Figures II-14** et **II-15** présentent les évolutions fréquentielles (jusqu'à 6 GHz) de la permittivité ε'_r et du facteur de pertes tanδ déterminées à partir du modèle basé sur la SDA, puis à partir d'une modélisation 2D sous HFSS à titre de comparaison. Pour ce dernier point la modélisation est associée à une procédure d'optimisation qui permet d'ajuster la valeur de la permittivité complexe recherchée afin de vérifier la valeur de la constante de propagation introduite comme donnée. Dans le cas du modèle basé sur la SDA la recherche de la permittivité dans le plan complexe est beaucoup plus rapide car le code découle d'un développement semi-analytique et non purement numérique. Ainsi le temps de calcul se réduit à quelques secondes au lieu de plusieurs dizaines de minutes sur un micro-ordinateur de bureau.

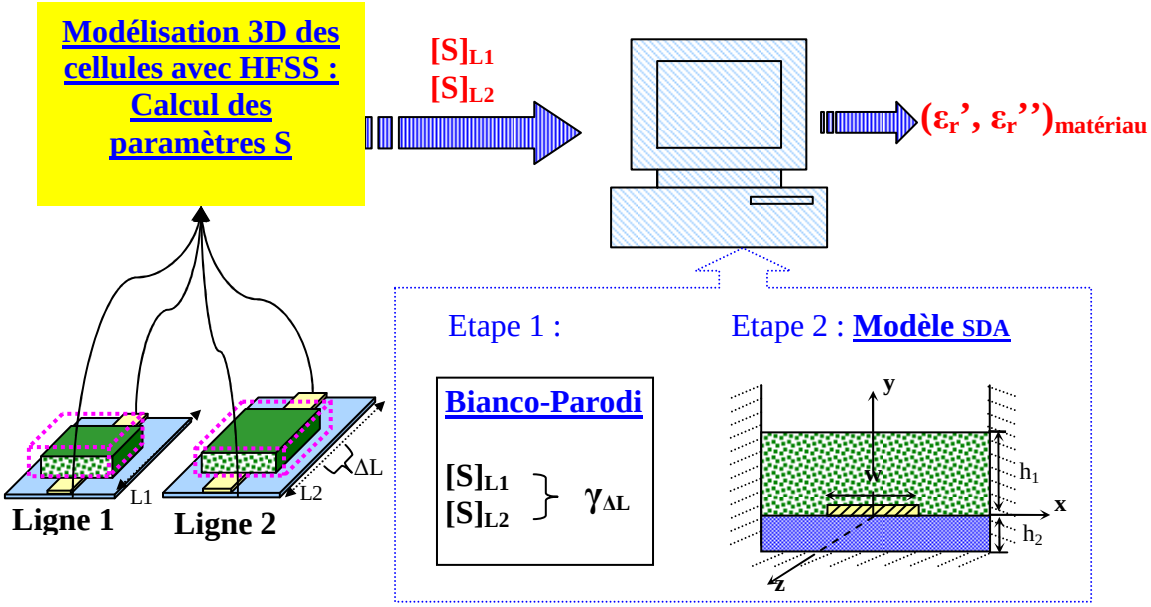


Figure II-13. Mode opératoire (en simulation) pour la détermination de la permittivité d'un matériau.

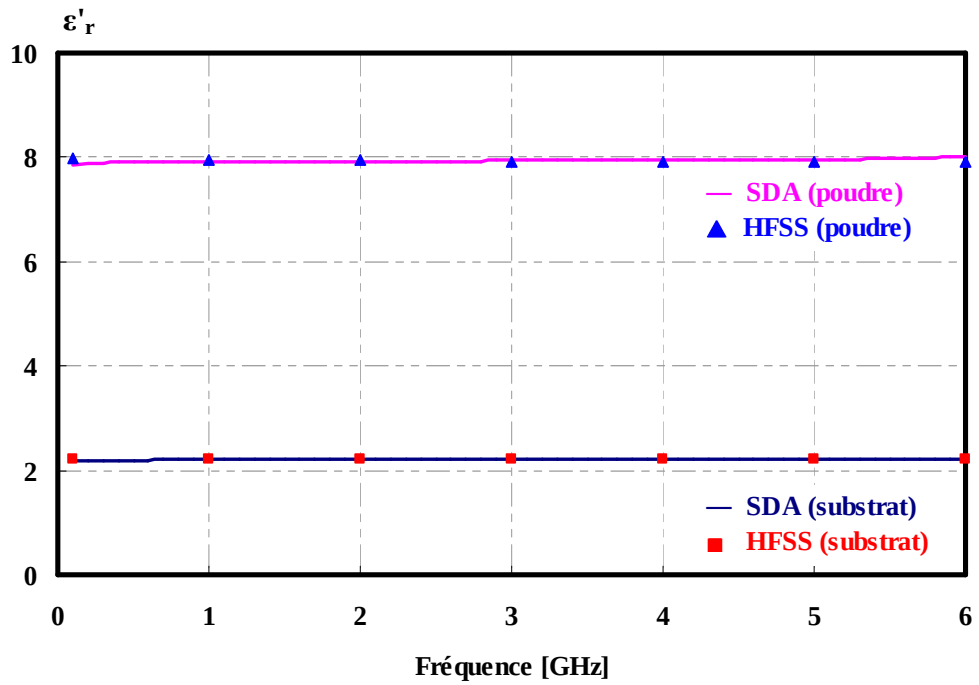


Figure II-14. Test de la procédure d'extraction de la permittivité avec HFSS et le code de calcul basé sur la SDA. Détermination de ε'_r.

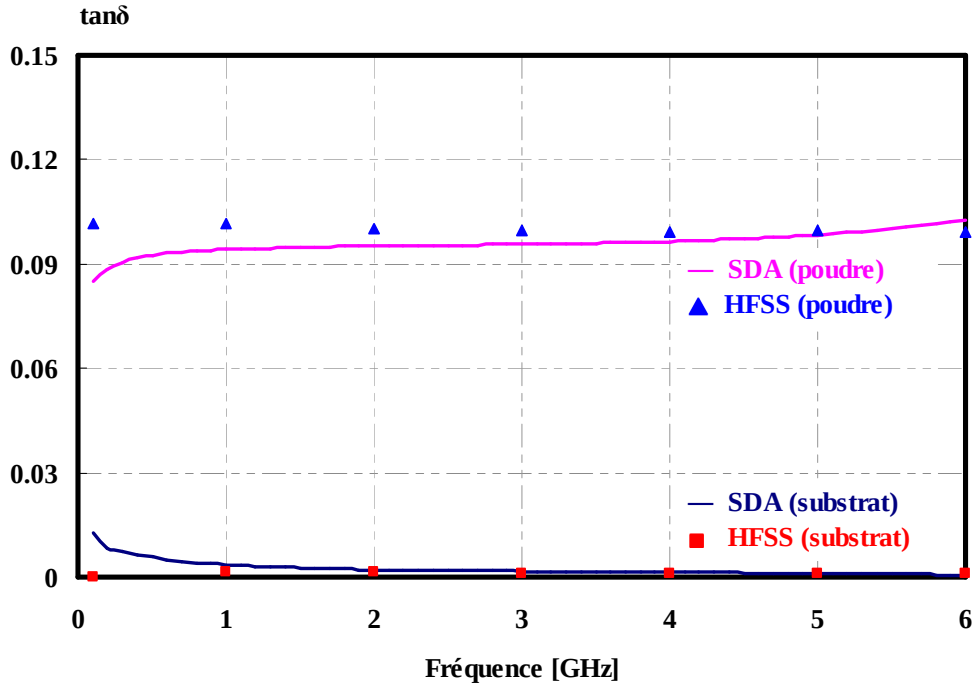


Figure II-15. Test de la procédure d'extraction de la permittivité avec HFSS et le code de calcul basé sur la SDA. Détermination du facteur de pertes.

Nous constatons que les résultats obtenus pour ε'_r sont quasiment identiques pour les 2 méthodes d'extraction et que les valeurs de la permittivité du substrat et du matériau déposé dans les porte-échantillons correspondent bien à celles fixées lors de la modélisation 3D des

cellules avec le logiciel HFSS. En ce qui concerne le facteur de pertes les écarts sont plus importants, principalement en basses fréquences. Cela peut s'expliquer par l'introduction de la notion d'impédance de surface utilisée dans le modèle SDA pour tenir compte des pertes métalliques dans le ruban conducteur. L'expression utilisée (**II-30**) ne permet pas de bien prendre en compte ces pertes dans le domaine des basses fréquences **[PON 07]**. Les résultats obtenus sont toutefois acceptables au-delà de 1 GHz.

Compte-tenu des résultats obtenus en simulation nous avons validé, en théorie, le mode opératoire proposé et avons abordé l'aspect pratique.

II.3 Conclusion

Dans ce chapitre est présentée une méthode de caractérisation diélectrique de matériaux pulvérulents dans le domaine des micro-ondes. Les cellules contenant les matériaux à caractériser sont constituées d'une structure de propagation de type microruban. Afin de s'affranchir des caractéristiques des fiches de connexion et de la présence du porte-échantillon pour la détermination de la constante de propagation de la structure, nous avons appliqué une méthode d'extraction proposée par Bianco et Parodi qui s'appuie sur la mesure des paramètres S de deux structures de propagation identiques dans un plan de section droite, mais de longueurs différentes. Les termes de la constante de propagation ainsi déterminés sont ensuite utilisés comme données dans un modèle bidimensionnel de la structure de propagation étudiée. Ce modèle basé sur l'Approche dans le Domaine Spectral permet d'en déduire très rapidement la permittivité diélectrique du matériau testé qui est directement recherchée dans le plan complexe.

Avant d'aborder la phase pratique, nous avons simulé l'application de cette méthode (les cellules sont modélisées en 3D à l'aide du logiciel HFSS pour le calcul des paramètres S) et nous retrouvons bien la valeur de la permittivité complexe du matériau testé qui a été introduite dans le modèle. Le code d'extraction basé sur la SDA fournit en quelques secondes des résultats identiques à ceux obtenus à partir d'une modélisation 2D de la structure réalisée avec le logiciel HFSS, sauf en basses fréquences (inférieures à 1 GHz) pour le facteur de pertes. Cela est vraisemblablement dû à une description incomplète de l'impédance de surface sur le ruban conducteur utilisée pour la prise en compte des pertes métalliques.

Bibliographie

[ANS 10] ANSYS INC.
HFSS^{TM} Full-wave Electromagnetic Field Simulation
http://www.ansoft.com/products/hf/hfss/

[BER 90] J. BERA
"Contribution à la modélisation numérique et à la caractérisation expérimentale de structures plaquées rayonnantes de type patch par l'approche dans le domaine spectral : applications à hyperthermie microonde"
Thèse de Docteur de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, France, Novembre. 1991.

[BIA 76] B. BIANCO, and M. PARODI
"Determination of the propagation constant of uniform microstrip lines"
Alta Frequenza, vol. 45, pp 107-110, 1976.

[HIN 01] J. HINOJOSA, K. LMIMOUNI, G. SIX, and G. DAMBRINE
"Broadband method for measuring complex permittivity and permeability of film-shaped materials"
Microwave and Optical Technology Letters, vol.30, n°1, pp 65-69, 2001.

[HIN 02] J. HINOJOSA, K. LMIMOUNI, G. SIX, and G. DAMBRINE
"S-parameter broadand measurement of microstrip lines and extraction of the substrate intrinsic properties"
Techonline publication, article n°20324, 2002.

[HUR 91] F. HURET
"Etude comparative de l'approche dans le domaine spectral et de la méthode des équations intégrales supérieures pour la simulation des lignes planaires en technologie monolithique microonde"
Thèse de Docteur de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, France, Décembre. 1991.

[ITO 73] T. ITOH and R. MITTRA
"Spectral domain approach for calculation the dispersion characteristics of microstrip lines"
IEEE Transaction on Microwave and Techniques, vol. MTT-21, pp 496-499, 1973.

[KIN 90] D. KINOWSKI, F. HURET, P. PRIBETICH, and P, KENNIS
"Influence des supraconducteurs sur les caractéristiques de propagation de lignes planaires pour circuits intégrés micro-ondes"
Ann. Télécommun. vol. 45, n° 5-6, pp 334-343, 1990.

[NGH 91] D. NGHIEM, J.T. WILLIAMS, and D.R. JACKSON
"A general analysis of propagation along multiple-layer superconducting stripe line and microstrip transmission lines"
IEEE Trans. MTT, vol. 39, n°9, pp 1553-1565, 1991.

[PAL 92] E. PALECZNY
"Modélisation des pertes métalliques par la méthode du raccordement de modes: Application aux lignes planaires utilisées en technologie monolithique micro-onde"
Thèse de Docteur de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, France, Septembre. 1992.

[PON 07] F. PONCHEL
"ELFI : Calculateur électromagnétique pour l'établis-sement de schémas électriques équivalents aux interconnexions "cuivre"couplées et pour la caractérisation des matériaux"
Thèse de Docteur de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, France, Novembre. 2007.

[PRI 84] P. PRIBETICH
"Contribution à l'étude d'un applicateur microonde de type fente, excité par une ligne microruban"
Thèse de Docteur de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, France, Décembre. 1984.

[QUE 94] P. QUEFFELEC, P. GELIN, J. GIERALTOWSKI, and J. LOAEC
"A microstrip device for the broad band simultaneous measurement of the complex permeability and permittivity"
IEEE Transaction on Magnetics, vol. 30, n°2, pp 224-231, 1994.

[QUE 96] P. QUEFFELEC and P. GELIN
"Influence of higher order modes on the measurements of complex permittivity and permeability of materials using a microstrip discontinuity"
IEEE Transaction on Microwave and Techniques, vol. 44, n° 6, pp 816-824, 1996.

[RIC 06] C. RICARD
"Utilisation des micro-ondes pour la caractérisation et le suivi sans contact de trajectories themiques de poudre métallo-céramiques: Application au contrôle du processus de frittage"
Thèse de Docteur de l'université Lille1, Novembre 2006.

[TEN 03] N. TENTILLIER, B. SPLINGART, J.F. LEGIER, E. PALECZNY, and C. LEGRAND
"Application des cristaux liquides aux circuits microondes accordables"
11ème Colloque Francophone sur les Cristaux Liquides, Dunkerque, 23-25 Septembre. 2003

Chapitre III

Application à la caractérisation diélectrique de matériaux pulvérulents.

Prospectives pour la caractérisation de poudres nanométriques

Chapitre III

Application à la caractérisation diélectrique de matériaux pulvérulents. Prospectives pour la caractérisation de poudres nanométriques

III.1 Introduction ..... - 101 -

III.2 Expérimentations ..... - 104 -

III.2.1 Mode opératoire ..... - 104 -
III.2.2 Mesure des paramètres S ..... - 105 -
III.2.3 Détermination de la constante de propagation ..... - 109 -
III.2.4 Extraction de la permittivité ..... - 110 -

III.3 Caractérisations diélectriques de matériaux pulvérulents dans la bande de fréquences : 50 MHz - 18 GHz ..... - 113 -

III.3.1 Tests sur matériaux solides : substrat Duroid 5880 et Plexiglass ..... - 113 -
III.3.2 Cas de matériaux pulvérulents ..... - 118 -
III.3.2.1 Poudres constituées d'un seul composant : SiC, Al_2O_3 et Al ..... - 118 -
III.3.2.2 Poudres composites SiC/Al_2O_3 et SiC/Al ..... - 123 -

III.4 Caractérisation diélectrique en espace libre ..... - 130 -

III.4.1 Principe ..... - 130 -
III.4.2 Calibrage du banc de mesure ..... - 133 -
III.4.3 Caractérisation de la poudre SiC ..... - 135 -

III.5 Etude de faisabilité pour la caractérisation de nanopoudres ..... - 139 -

III.5.1 Présentation de la structure coplanaire ..... - 139 -
III.5.2 Etude de la permittivité effective ..... - 141 -
III.5.3 Résultats ..... - 142 -

III.6 Conclusion ..... - 145 -

Bibliographie ..... - 146 -

III.1 Introduction

Dans ce chapitre nous présentons l'application pratique de la méthode de caractérisation diélectrique de matériaux que nous avons détaillée au chapitre II et validée par simulation.

Les expérimentations ont d'abord été réalisées sur une bande de fréquences allant de 30 MHz à 6 GHz à l'aide d'un analyseur de réseaux portable. Il est possible de le connecter à un ordinateur portable qui permettra de le piloter et d'effectuer l'extraction de la permittivité complexe des matériaux testés. Cela nous permet de mettre en œuvre un démonstrateur qui servira à effectuer des caractérisations diélectriques sur le terrain (hors Laboratoire).

Les expérimentations ont ensuite été étendues à la bande de fréquences 50 MHz-18 GHz. La méthode a d'abord été testée sur des matériaux massifs dont nous connaissons les caractéristiques: le substrat diélectrique à partir duquel ont été réalisées les cellules de mesure (Duroïd) puis du plexiglass.

Puis, des matériaux pulvérulents, dont la taille des grains est de l'ordre de 100 µm, ont été caractérisés à température ambiante: du Carbure de Silicium (SiC), de l'Alumine (Al_2O_3) et de l'Aluminium(Al) ainsi que des mélanges SiC/Al_2O_3 et SiC/Al avec différents ratios.

Les résultats obtenus ont été comparés, pour partie, à ceux fournis par une autre technique développée dans le Groupe MITEC : la caractérisation sans contact en espace libre. Nous rappelons brièvement le principe de cette technique puis nous présentons les résultats obtenus pour de la poudre SiC.

Finalement, ce chapitre se termine sur une étude théorique de faisabilité pour la caractérisation diélectrique très large bande de petites quantités de nanopoudres.

III.2 Expérimentations

III.2.1 Mode opératoire

Nous avons réalisé 2 cellules qui sont présentées sur la **Figure III-1** et dont les caractéristiques (matériaux et dimensions) sont identiques à celles des cellules modélisées (**Figure II-7**). Les liaisons avec l'analyseur de réseaux sont réalisées par l'intermédiaire de connecteurs coaxiaux SMA.

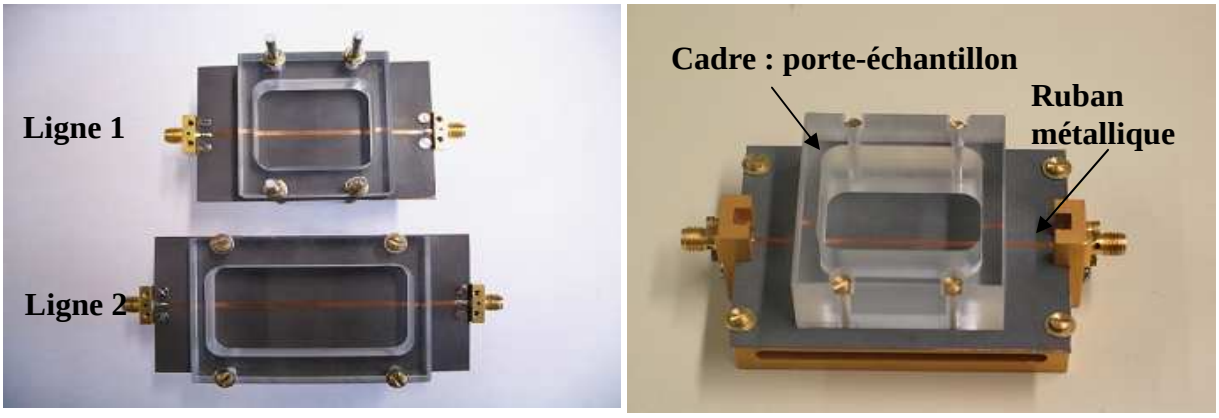


Figure III-1. Photographie des 2 cellules utilisées.

Le mode opératoire utilisé est rappelé sur la **Figure III-2**. Les premiers essais ont été réalisés avec un analyseur de réseaux vectoriel Rohde&Schwarz®ZVL6 qui fonctionne dans la bande de fréquences allant de 9 kHz à 6 GHz (**Figure III-3**). Nous avons utilisé un mode de calibrage SOLT et les mesures des paramètres S des 2 cellules ont été réalisées à température ambiante (entre 20 et 25°C).

Les mesures ont d'abord été effectuées à vide (avec présence du porte-échantillon). Cela nous permet de déterminer la permittivité diélectrique du substrat sur lequel sont gravées les lignes microruban et de les comparer aux données du constructeur. Nous avons ensuite caractérisé du plexiglass (matériau connu) puis de la poudre SiC dont nous avons donné les caractéristiques au chapitre I.

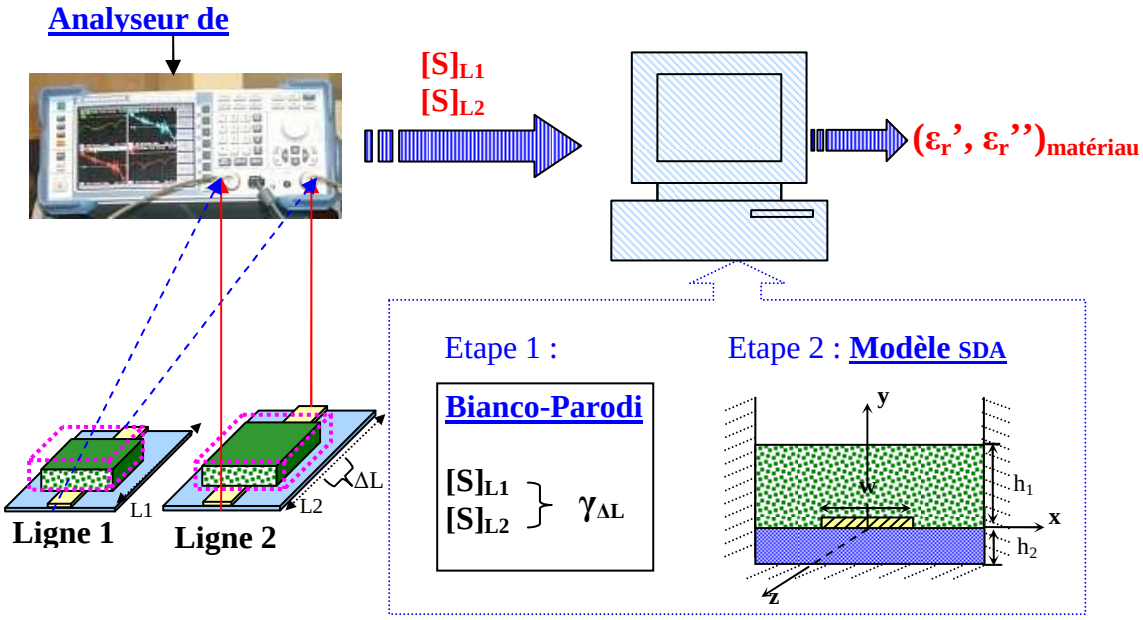


Figure III-2. Mode opératoire utilisé pour la mesure de la permittivité d'un matériau.

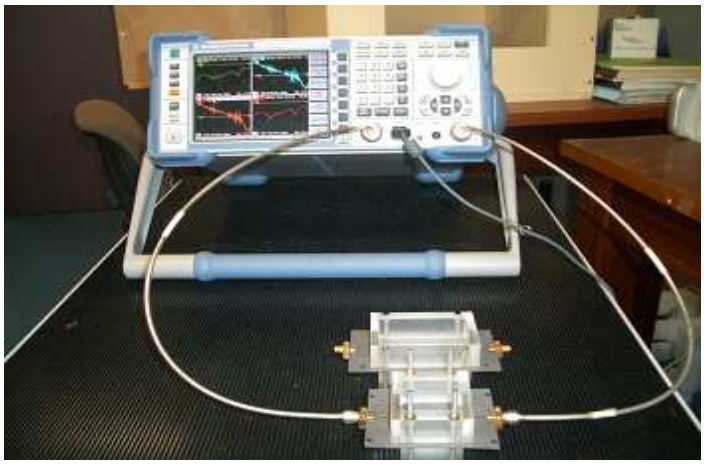


Figure III-3. Banc de mesure des paramètres S.

III.2.2 Mesure des paramètres S

Nous donnons à titre d'exemple quelques relevés des paramètres S, d'abord pour la cellule à vide (**Figure III-4**) ; puis en présence de blocs de plexiglass de mêmes dimensions extérieures que les porte-échantillons (**Figure III-5**) et enfin lorsque l'on rempli les porte-échantillons par la poudre SiC (**Figure III-6**).

➢ *Paramètres S de la ligne L_2 à vide*

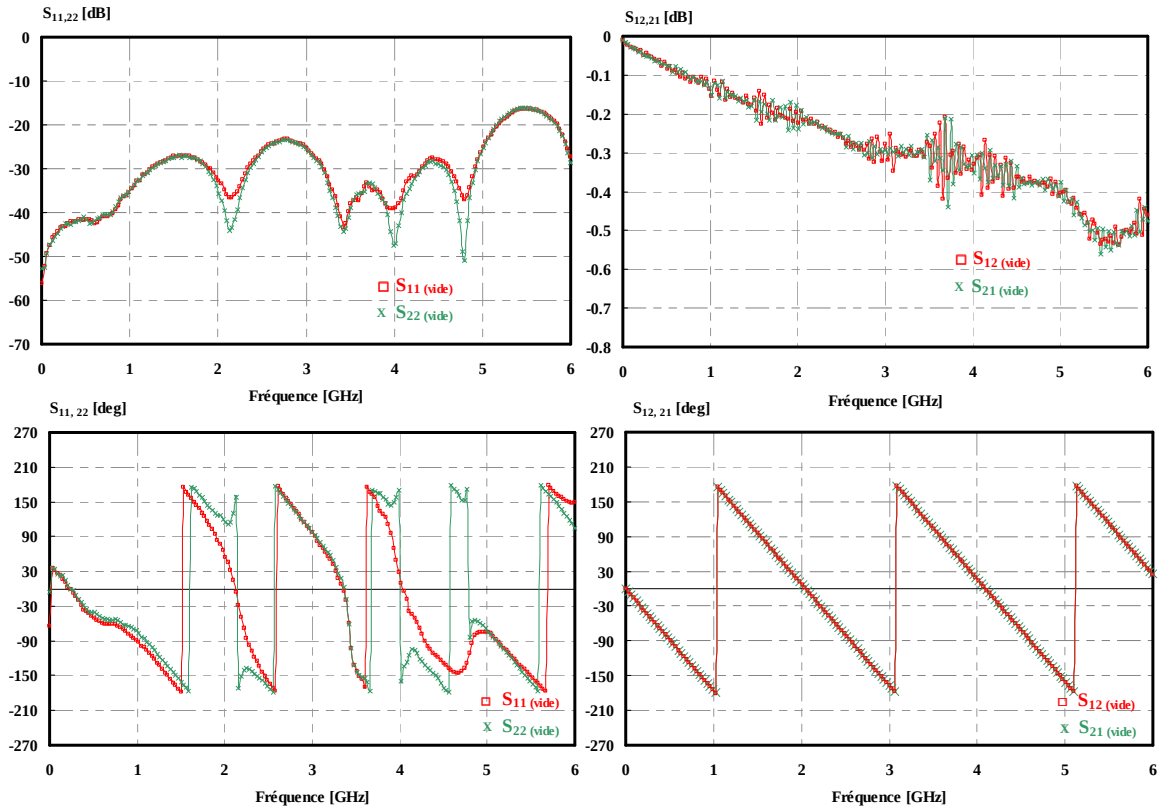


Figure III-4. Relevés des paramètres S de la ligne microruban L_2 à vide.

Les cellules sont en théorie des quadripôles passifs symétriques, si nous supposons que les transitions ligne microruban-connecteur SMA ont été réalisées exactement de la même façon. En pratique le montage des connecteurs va introduire une légère dissymétrie qui risque d'influer sur l'extraction de la constante de propagation lors de l'application de la méthode de Bianco-Parodi. Nous avons donc examiné les termes de la matrice S obtenus lors des mesures à l'analyseur de réseaux vectoriel. Nous constatons que les termes S_{12} et S_{21} sont quasiment identiques en module et en phase (les écarts observés sont de l'ordre de grandeur de la précision des mesures). Par contre nous constatons des écarts plus importants entre les paramètres S_{11} et S_{22} et plus particulièrement sur la phase. Ces écarts peuvent en partie s'expliquer du fait que les niveaux mesurés pour ces paramètres sont ici très faibles (à vide les lignes présentent une impédance caractéristique égale à 50 Ω).

➢ ***Paramètres S de la ligne L_2 chargée par un bloc de plexiglass***

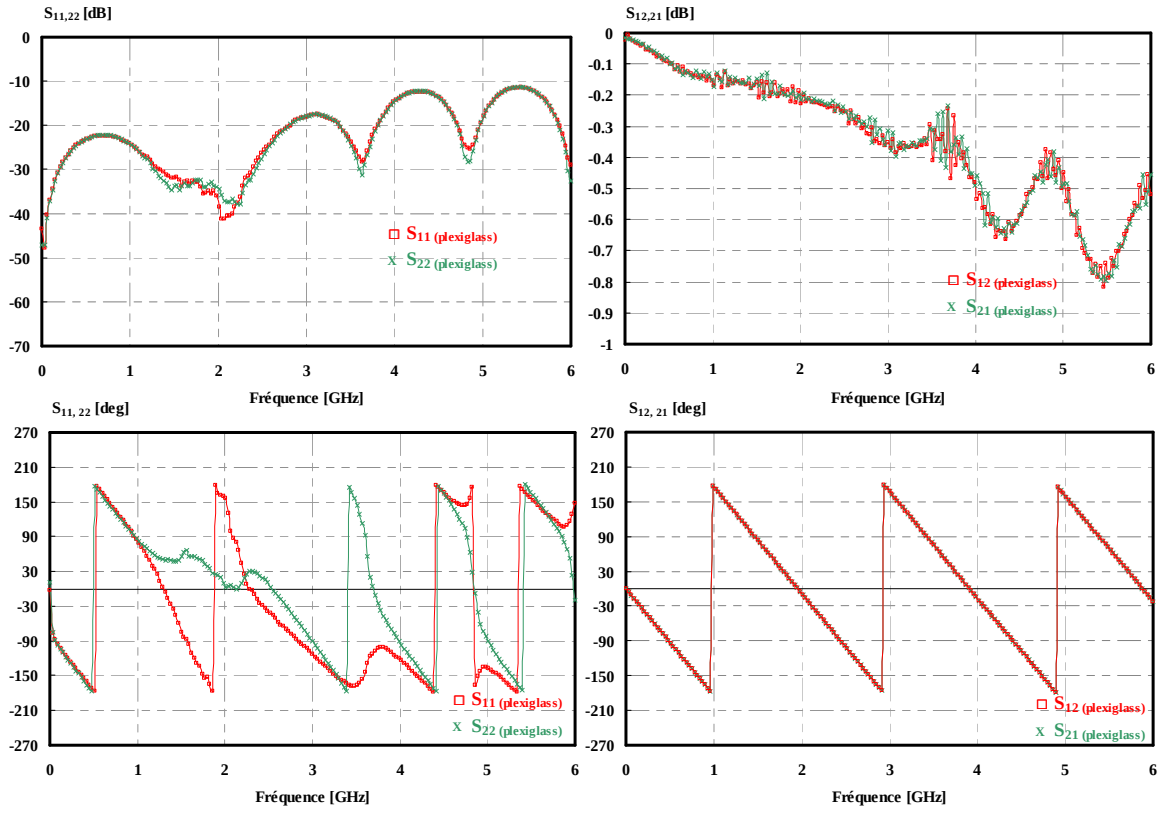


Figure III-5. Relevés des paramètres S de la ligne microruban L_2 en présence de blocs de plexiglass.

Comme dans le cas précédent, nous observons une dissymétrie sur la phase des paramètres S_{11} et S_{22}.

➢ ***Paramètres S de la ligne L_2 en présence de poudre SiC***

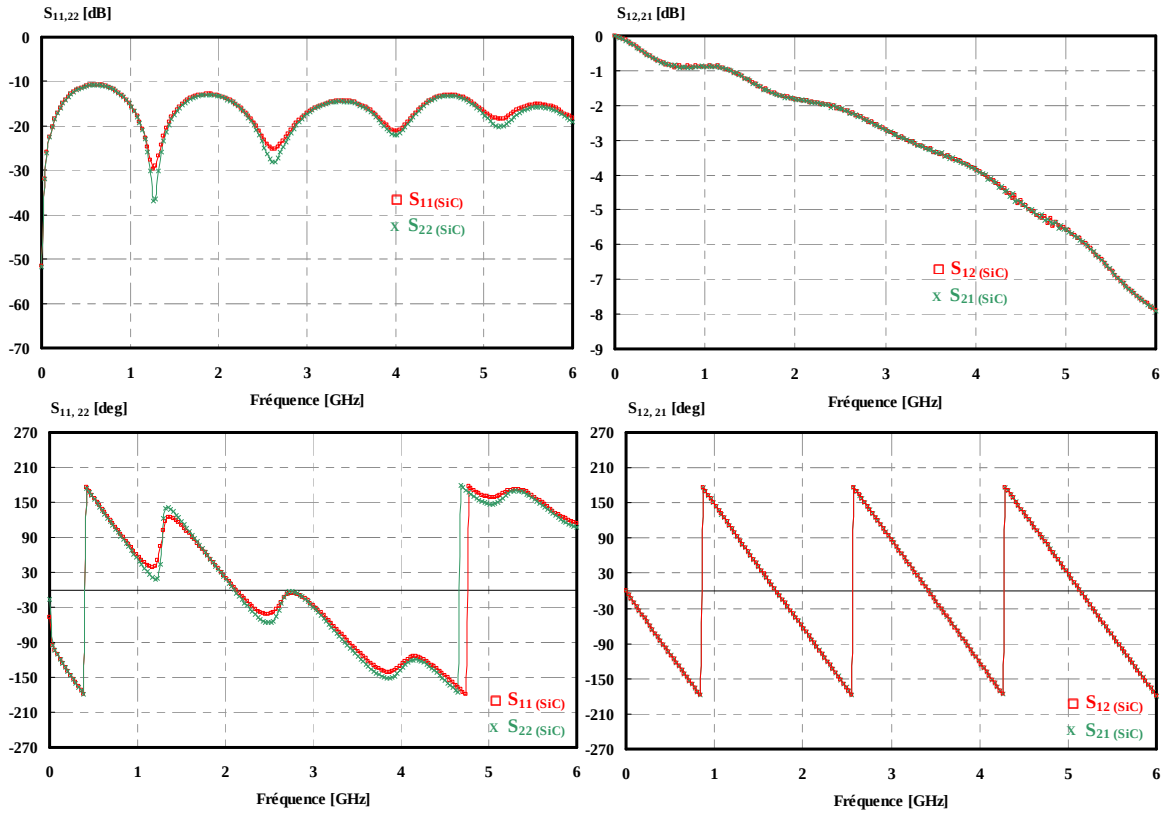


Figure III-6. Relevés des paramètres S de la ligne microruban L_2 avec les porte-échantillons remplis par la poudre SiC.

Cette fois les écarts observés sur la phase des paramètres S_{11} et S_{22} sont beaucoup moins importants compte tenu du fait que les niveaux mesurés pour ces paramètres sont plus élevés.

Nous avons procédé au même type de caractérisation en utilisant la ligne L_1(à vide, avec plexiglass et avec SiC), les conclussions issues de ces mesures sont comparables à celles observées dans le cas de la ligne L_2.

III.2.3 Détermination de la constante de propagation

A partir des relevés des paramètres S des 2 cellules nous avons déterminé l'atténuation et la constante de phase de la structure microruban pour les trois cas étudiés (**Figures III-7** et **III-8**). Notons que nous avons préalablement vérifié que les résultats obtenus à vide avec présence ou non du porte-échantillon sont identiques, ce qui confirme l'efficacité de la méthode de Bianco-Parodi.

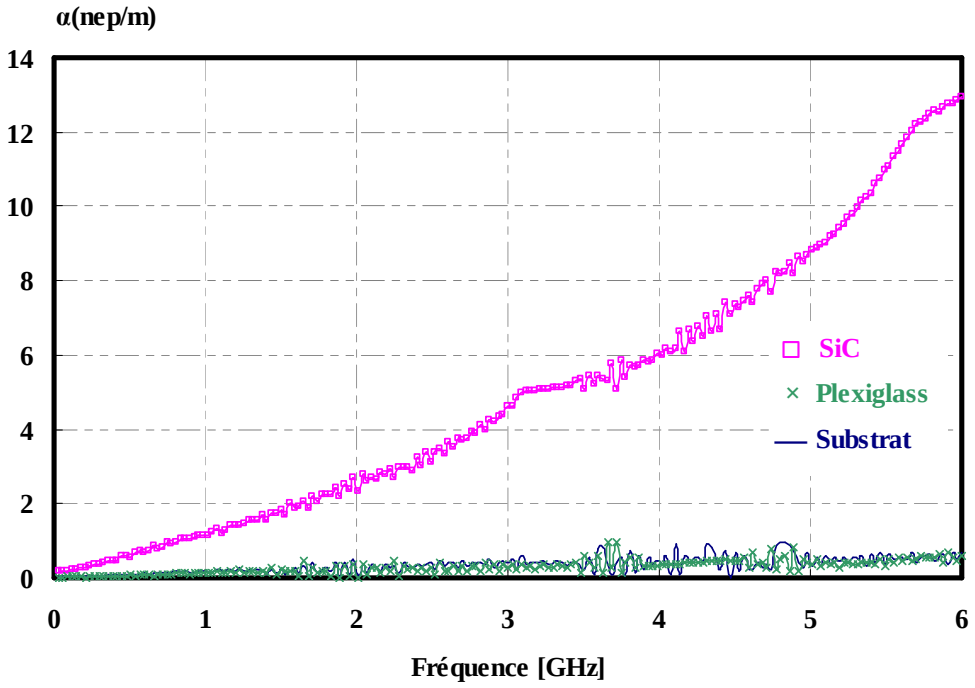


Figure III-7. Evolution fréquentielle de l'affaiblissement linéique α.

Nous observons sur la **Figure III-7** que la présence du plexiglass ne change pas l'atténuation déterminée à vide car ce matériau présente des pertes diélectriques trop faibles pour être mesurables avec notre dispositif. Par contre nous observons bien une influence sur le paramètre β, bien que la valeur de la permittivité du plexiglass (fournie dans la littérature) soit très proche de celle du substrat utilisé pour la fabrication des cellules.

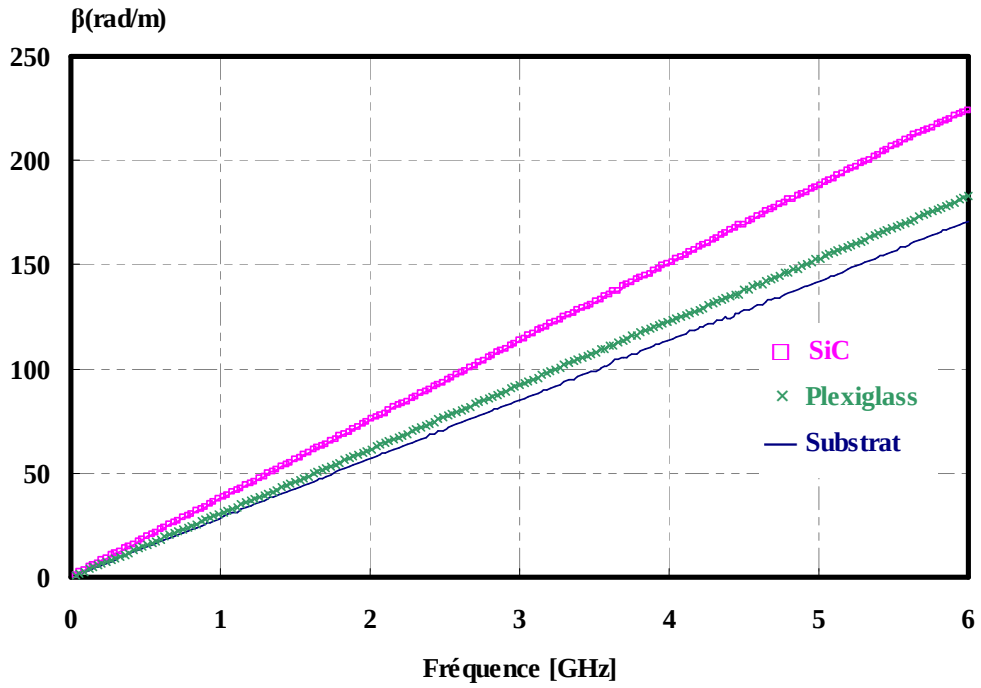


Figure III-8. Evolution fréquentielle de la constante de phase β.

En ce qui concerne les résultats obtenus en présence de la poudre SiC, nous observons bien un changement important de β qui se traduit par une augmentation de la pente de la fonction β(f) et une augmentation de l'atténuation α (compte-tenu de la nature dissipative de ce matériau) qui augmente de façon importante avec la fréquence.

Ces manipulations ont été effectuées plusieurs fois en particulier pour le cas des lignes partiellement chargées par du plexiglass ou par de la poudre SiC et nous avons pu ainsi confirmer la reproductibilité des résultats pour la détermination des constantes de propagation.

III.2.4 Extraction de la permittivité

Nous présentons maintenant l'évolution fréquentielle de la permittivité du substrat ainsi que du plexiglass et de la poudre SiC déterminée à partir de la connaissance de la constante de propagation. Les résultats obtenus avec le code de calcul basé sur la SDA ont été comparés à ceux obtenus à partir d'une modélisation 2D de la structure de propagation avec HFSS **[LU 10]**.

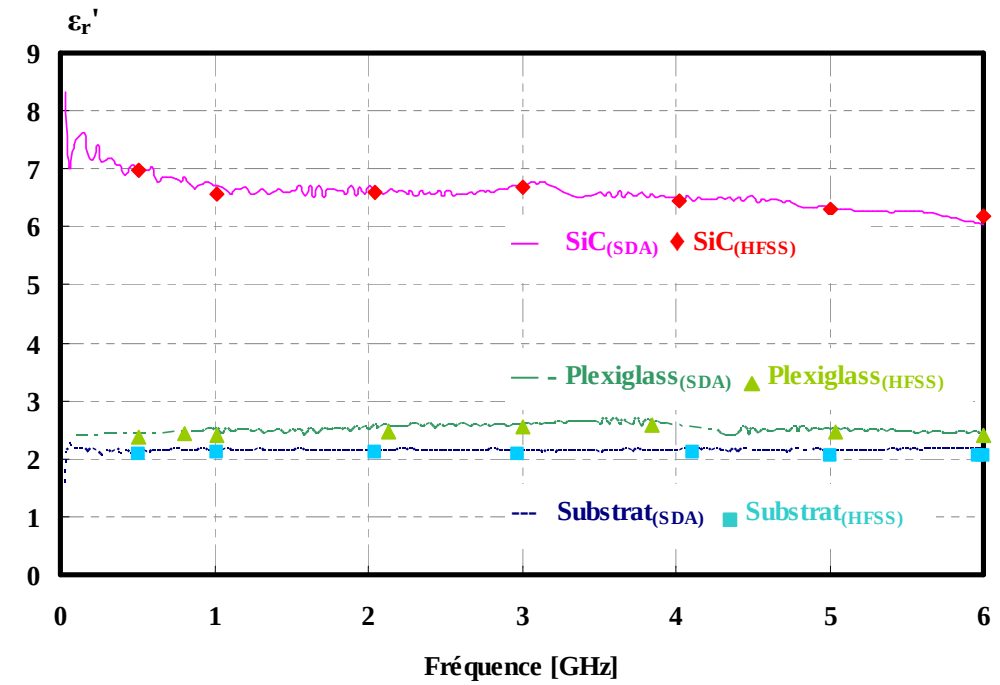


Figure III-9. Permittivité relative ε'_r du substrat, du plexiglass, et de la poudre SiC déterminé avec la SDA et HFSS.

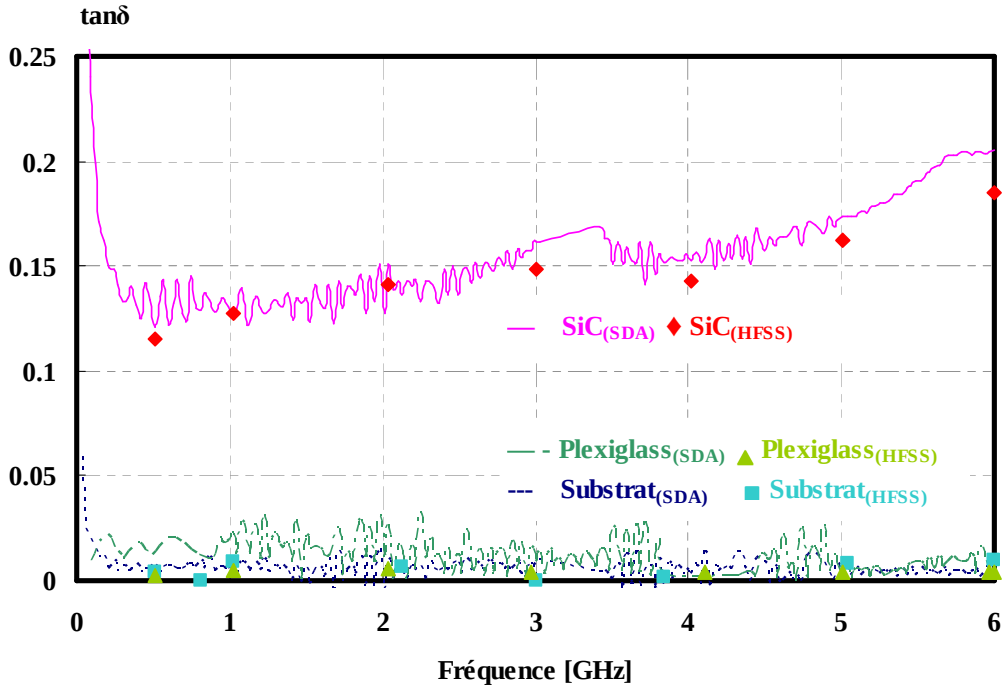


Figure III-10. Facteur de perte du substrat, du plexiglass, et de la poudre SiC déterminé avec la SDA et HFSS.

Nous constatons un bon accord entre les valeurs obtenues à partir des deux modèles de 30 MHz à 6 GHz. Les valeurs obtenues pour le substrat Duroïd5880 ($2,11 < \varepsilon'_r < 2,16$ et $0,001 < \tan\delta < 0,005$) et le matériau Plexiglass ($2,2 < \varepsilon'_r < 2,5$ et $0,005 < \tan\delta < 0,03$) sont conformes aux données de la littérature **[ROG 99, RF]**. Le facteur de pertes est toutefois

surestimé dans le cas de matériaux à faibles pertes, ce qui est peut être dû à l'imprécision des mesures sur les structures à faibles pertes mais aussi à l'utilisation de la notion d'impédance de surface dans les codes de calcul. C'est en effet un moyen qui permet d'approcher la solution si l'on désire tenir compte des pertes métalliques dans le ruban conducteur, mais cet artifice ne semble pas valide en basses fréquences (inférieures à 30 MHz pour notre cas).

Dans le cas de la poudre de SiC, nous observons un accord entre nos permittivités mesurées et les résultats obtenus pour la même matériau par d'autres laboratoires utilisant une technique de caractérisation différente (la technique de la cavité résonante) **[BAE 02]**. Nous constatons que la permittivité diélectrique du SiC diminue légèrement dans la bande de fréquence étudiée. Ainsi, nous estimons pour la poudre de SiC dans cette bande de fréquence les paramère suivants: $\varepsilon'_{r\ SiC} = 6$ à 7, $\tan\delta_{SiC} = 0{,}12$ à 0,2.

III.3 Caractérisations diélectriques de matériaux pulvérulents dans la bande de fréquences : 50 MHz - 18 GHz

La technique de mesure de permittivité large-bande que nous avons développée a ensuite été testée sur une plage de fréquences plus importante. Nous avons effectué les mesures de paramètres S des deux cellules à l'aide d'un analyseur de réseaux vectoriel Agilent HP 8720C qui fonctionne dans la bande de fréquence de 50 MHz à 20 GHz (**Figure III-11**). Toutefois étant donné que les lignes microrubans ont été reliées à des connecteurs SMA, nous avons limité les mesures à la fréquence maximale de 18 GHz. Les premiers tests ont été réalisés d'abord à vide afin d'en déduire la permittivité du substrat RT Duroid 5880 sur lequel sont gravées les lignes puis nous avons caractérisé le plexiglass.

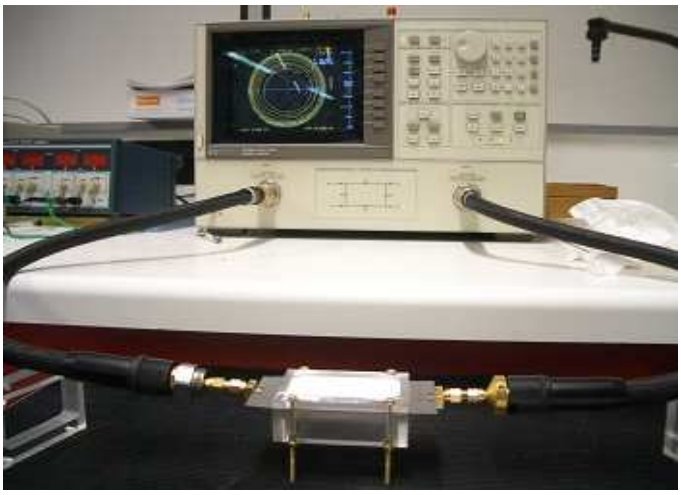


Figure III-11. Banc de mesure 50 MHz – 18 GHz.

III.3.1 Tests sur matériaux solides : substrat Duroid 5880 et Plexiglass

Pour toutes les mesures effectuées à l'analyseur de réseaux nous avons utilisé un calibrage de type SOLT. Nous avons d'abord relevé l'évolution fréquentielle des paramètres S lorsque le porte-échantillon des deux structures était vide; puis en recouvrant partiellement les lignes par les blocs de plexiglass que nous avions déjà utilisés auparavant. Les **Figures III-12** et **III-13** donnent un exemple de relevés des paramètres S (en module et phase) pour ces deux cas.

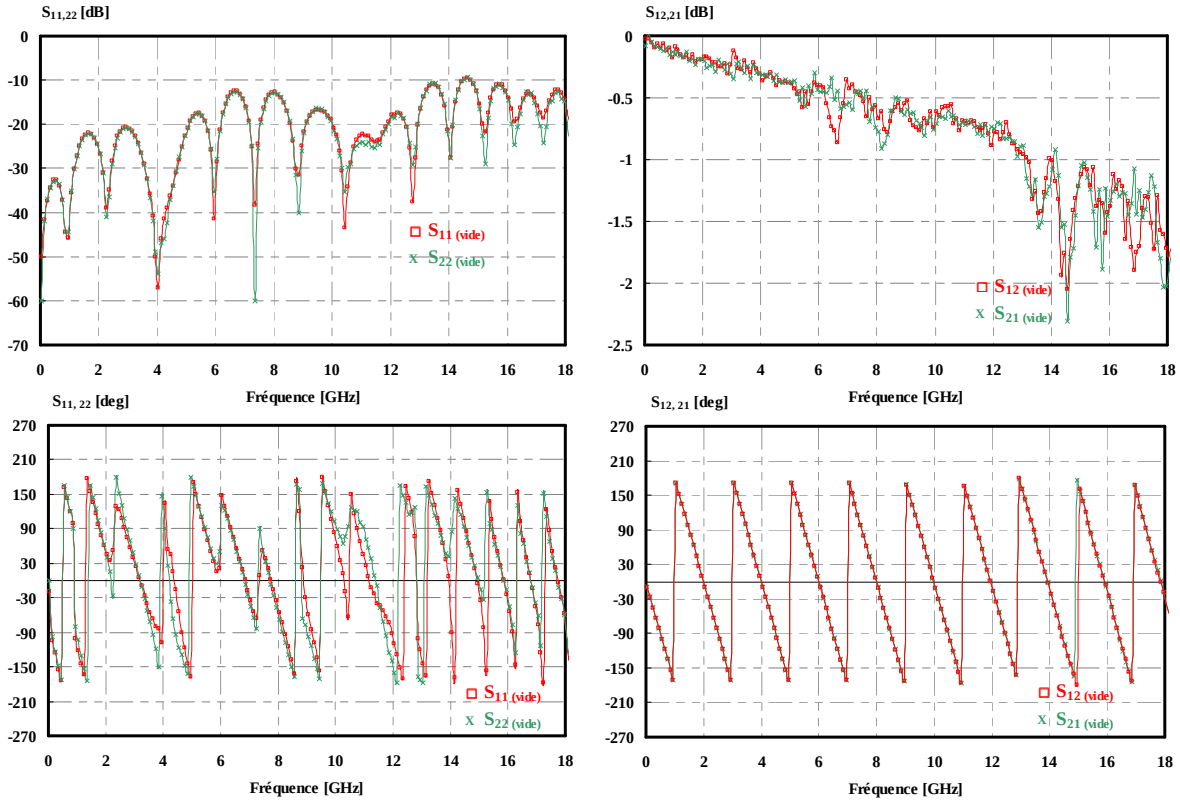


Figure III-12. Relevés des paramètres S de la ligne microruban L_2 à vide.

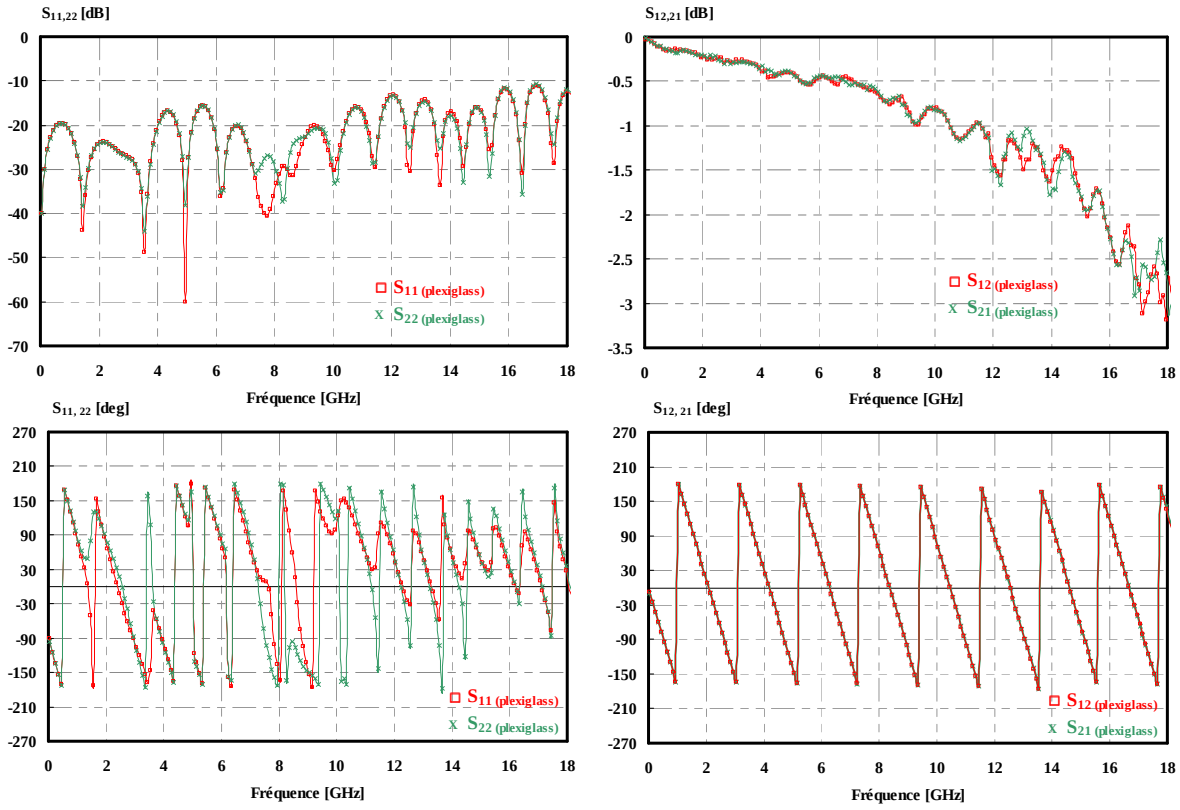


Figure III-13. Relevés des paramètres S de la ligne microruban L_2 en présence de blocs de plexiglass.

Nous constatons à nouveau que les paramètres S_{12} et S_{21} sont égaux (en module et phase) en présence du plexiglass (quadripôle symétrique).

A partir de ces mesures les termes α (**Figure III-14)** et β (**Figure III-15**) de la constante de propagation de la structure étudiée (ligne microruban avec ou sans surcouche diélectrique) ont été calculés en appliquant la méthode de Bianco-Parodi. L'évolution fréquentielle de l'atténuation α montre par contre des fluctuations importantes au-delà de 4 GHz qui vont se répercuter sur l'estimation de la partie imaginaire de la permittivité du matériau sous test (**Figure III-17**). Nous observons une évolution linéaire de la constante de phase β en fonction de la fréquence et une augmentation de la pente en présence du bloc de plexiglass.

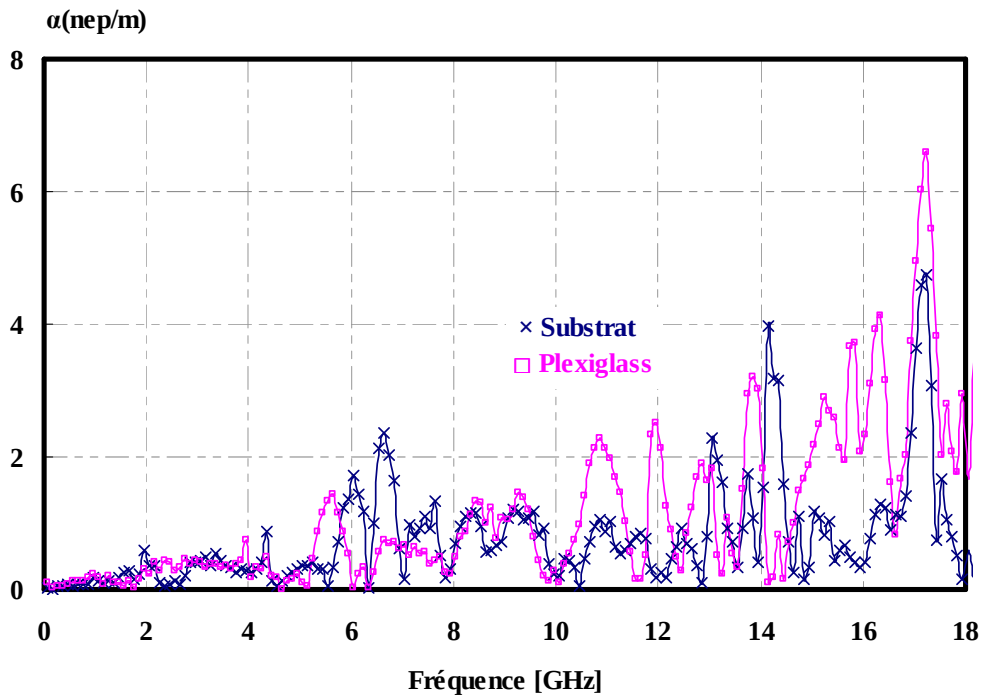


Figure III-14. Evolution fréquentielle de l'affaiblissement linéique α.

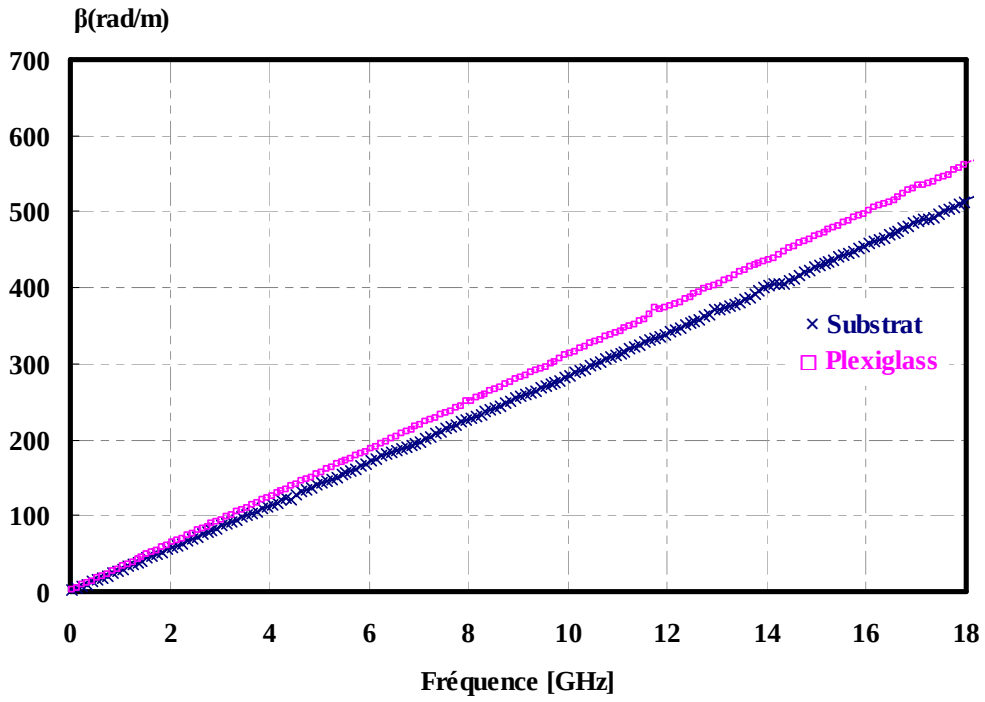


Figure III-15. Evolution fréquentielle de la constante de phase β.

La permittivité ε'_r et le facteur de pertes du plexiglass et du substrat des lignes ont été déduits de la constante de propagation et reportés sur les **Figures III-16 et III-17.** Nous avons extrait ces paramètres à partir du modèle basé sur la SDA et du modèle 2D décrit avec HFSS. Nous observons un bon accord sur toute la bande de fréquences et les valeurs de ε'_r obtenues sont en accord avec les données constructeur et celles de la littérature. Par contre nous observons toujours une surestimation du terme ε''_r qui reste du même ordre de grandeur et qui confirme la difficulté de détermination du facteur de pertes pour les matériaux à très faibles pertes **[LU 11]**.

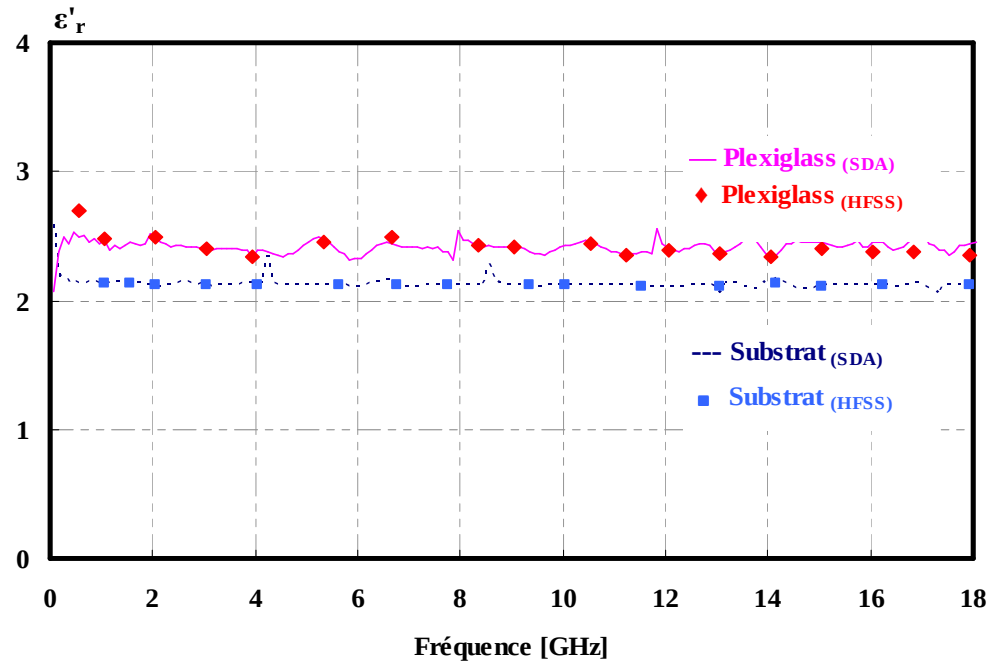


Figure III-16. Permittivité relative ε'r du substrat et du plexiglass déterminée avec la SDA et HFSS.

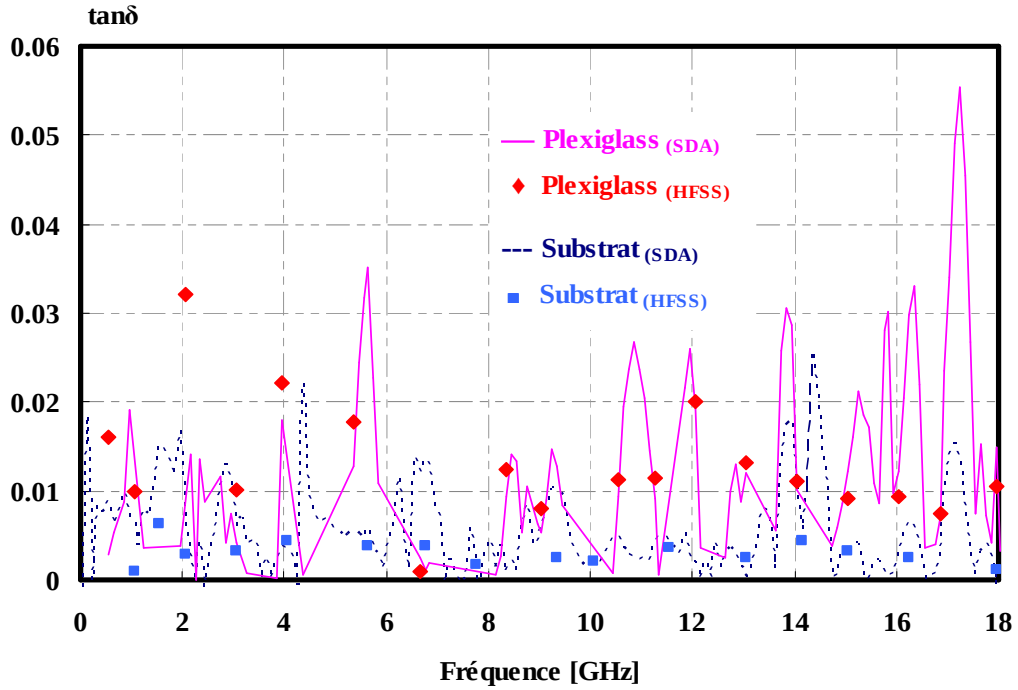


Figure III-17. Facteur de pertes du substrat et du plexiglass déterminé avec la SDA et HFSS.

Après avoir effectué les tests sur des matériaux de permittivité connues et compte-tenu des résultats obtenus nous avons ensuite abordé le cas des matériaux pulvérulents.

III.3.2 Cas de matériaux pulvérulents

Nous avons d'abord recherché la permittivité de matériaux pulvérulents non compactés (dont la taille des grains est de l'ordre de 100 µm) constitués d'un seul composant : le carbure de silicium, l'alumine, puis l'aluminium (**Figure III-18**). Puis nous avons considéré le cas de mélanges à deux composantes. Les mesures des paramètres S ont été réalisées à température ambiante.

SiC **Al_2O_3** **Al**

Figure III-18. Photographie des échantillons de poudres : Carbure de Silicium, Alumine et Aluminium placés dans un porte-échantillon en plexiglass.

III.3.2.1 Poudres constituées d'un seul composant : SiC, Al_2O_3 et Al

Les différentes poudres ont été déposées dans les porte-échantillons en plexiglass afin d'obtenir une couche de 5 mm d'épaisseur sur les lignes microrubans des cellules 1 et 2. Nous donnons à titre d'exemple quelques relevés des paramètres S obtenus lorsque le porte-échantillon de la ligne 2 contient de la poudre SiC, puis de la poudre d'Aluminium (**Figure III-19** et **III-20**).

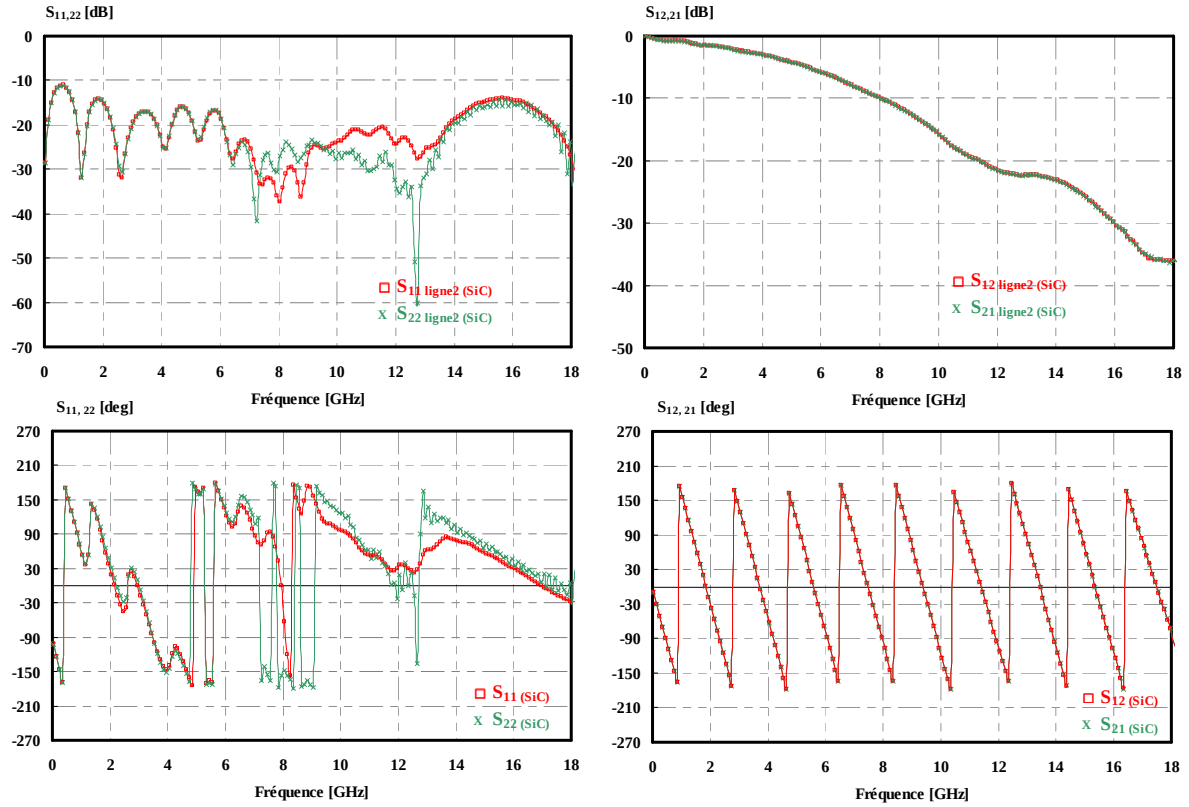


Figure III-19. Relevés des paramètres S de la ligne microruban L_2 avec le porte-échantillon rempli par la poudre SiC.

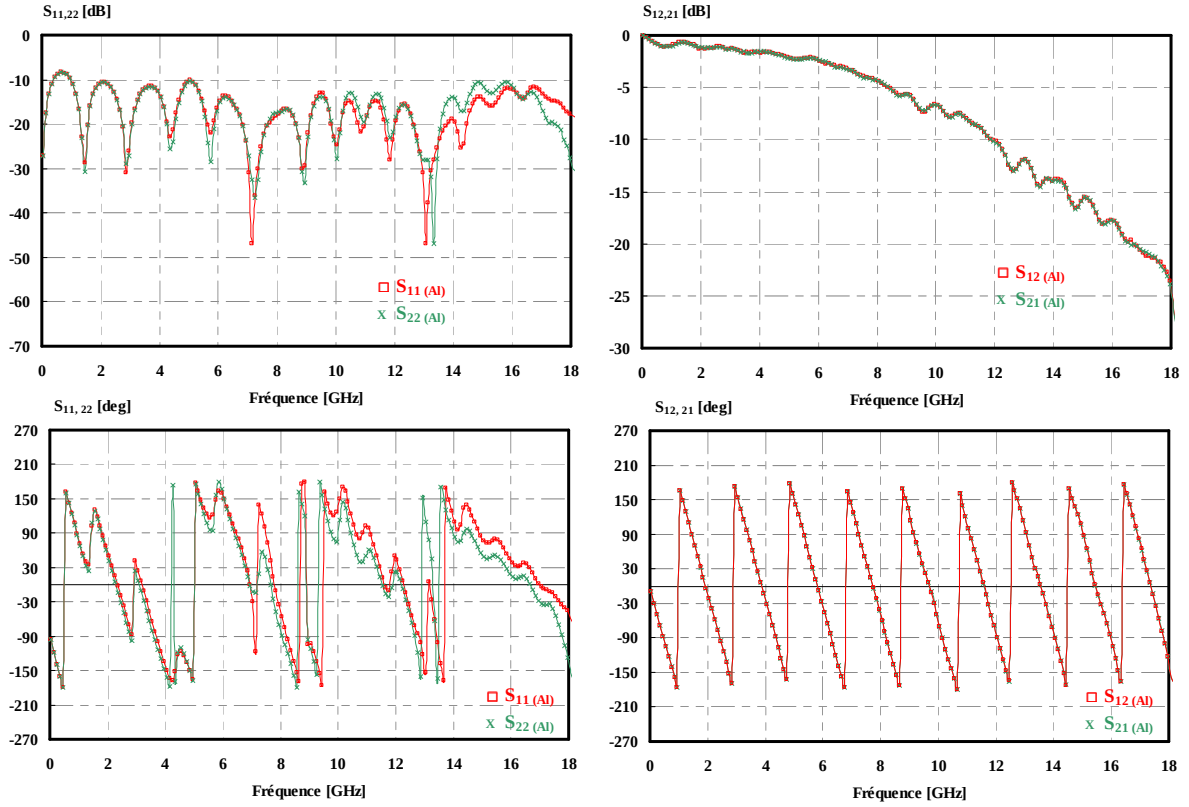


Figure III-20. Relevés des paramètres S de la ligne microruban L_2 avec le porte-échantillon rempli par la poudre d'Aluminium.

Nous observons toujours une dissymétrie entre les paramètres S_{11} et S_{22}, principalement au niveau de la phase. L'affaiblissement linéique α et la constante de phase β de la structure de propagation extraits des paramètres S des deux cellules sont représentés sur les **Figures III-21**, et **III-22**.

Les résultats obtenus montrent que l'atténuation en présence de poudre SiC augmente fortement avec la fréquence ce qui semblait prévisible. Pour la poudre d'Alumine les valeurs sont faibles et semblent peu évoluer avec la fréquence (**Figure III-21**). Nous constatons qu'en présence de poudre d'Aluminium nous obtenons des évolutions fréquentielles de α et β comparables à celles obtenues en présence de poudre SiC, mais avec des fluctuations plus importantes en particulier pour α. La poudre d'Aluminium semble donc se comporter à priori comme un matériau diélectrique.

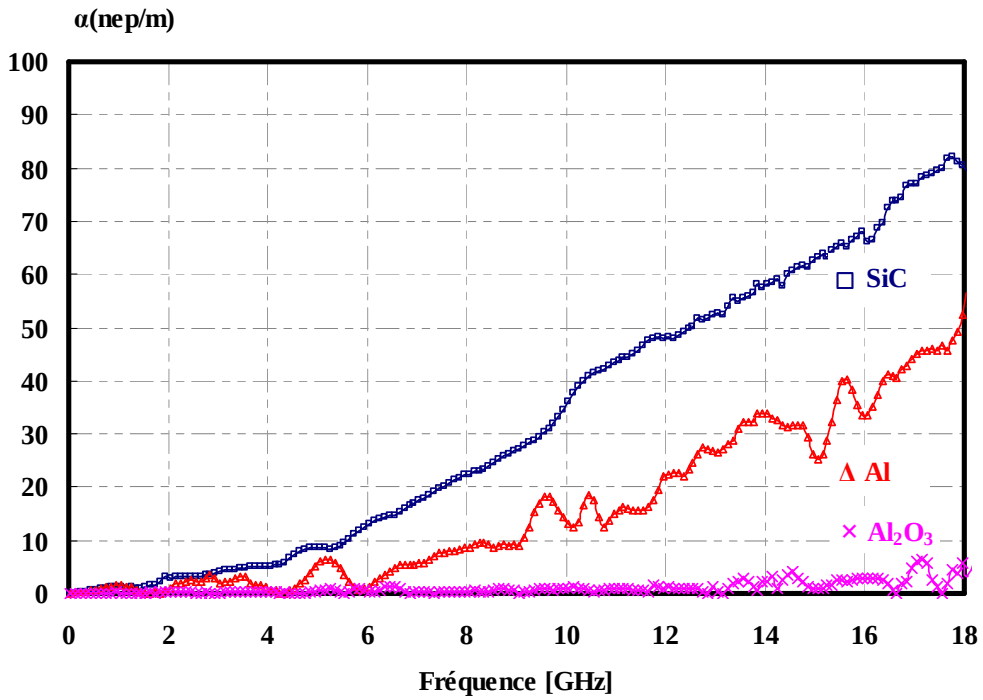


Figure III-21. Evolution fréquentielle de l'affaiblissement linéique α.

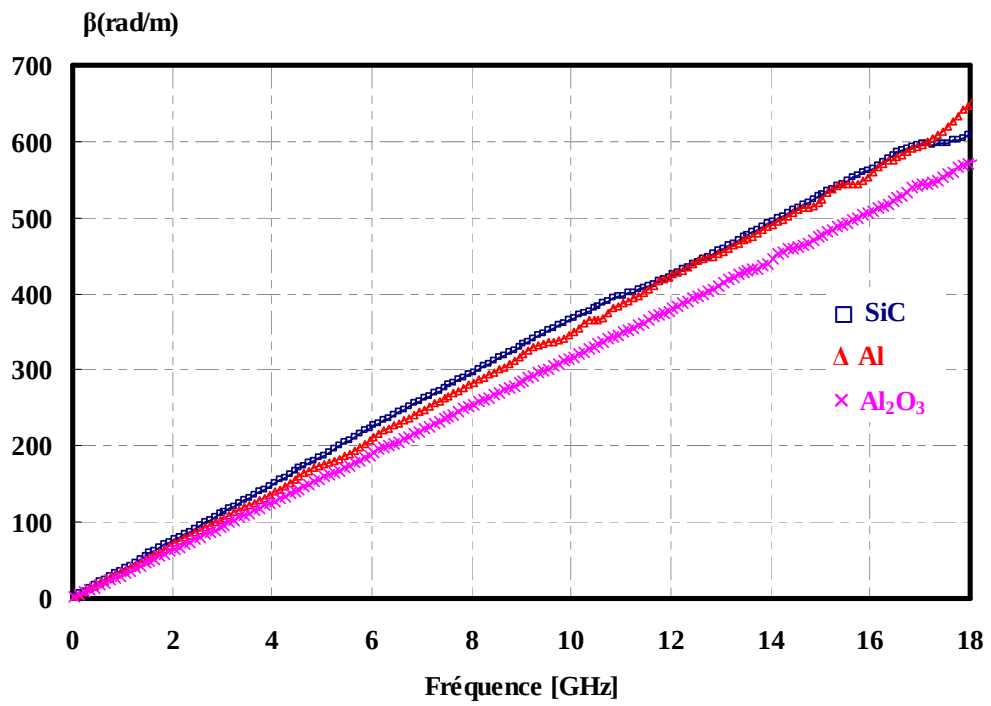


Figure III-22. Evolution fréquentielle de la constante de phase β.

La permittivité diélectrique et le facteur de pertes de ces 3 matériaux sont représentés sur les **Figures III-23** et **III-24**. L'extraction de ces grandeurs a été réalisée à partir du modèle basé sur la SDA et les résultats ont été comparés à ceux obtenus à partir du modèle bidimensionnel décrit avec le logiciel HFSS. Nous constatons que la poudre d'alumine présente une permittivité constante ($\varepsilon'_r \approx 2,7$) sur la bande de fréquence considérée (50 MHz – 18 GHz) et des pertes diélectriques très faibles. Par contre la permittivité de la poudre de carbure de silicium continue à décroître au-delà de 6 GHz ; ε'_r varie de 8 (vers 50 MHz) à 3,4 (vers 18 GHz). Etant donné que le facteur de pertes reste relativement constant (0,15 - 0,2), il en va de même de la partie imaginaire ε''_r ($\varepsilon''_r = \varepsilon'_r \cdot \tan\delta$).

Ces résultats sont cohérents avec ceux présentés par T. A. Baeraky (autour de 20°C) qui a réalisé des mesures de permittivité à l'aide de cavités résonantes dans les fréquences : 0,615 GHz, 1,412 GHz, 2,214 GHz, 3,017 GHz et 3,82 GHz **[BAE 02]**.

Nous nous attendions à rencontrer des difficultés pour extraire les termes de la permittivité de la poudre d'Aluminium. Nous observons en début de bande (entre 50 MHz et 2 GHz) des variations de ε'_r qui tendent rapidement vers une valeur de 4,8 au-delà de 2 GHz. Par contre les valeurs du facteur de pertes oscillent beaucoup entre 0,1 et 0,2 lorsque l'extraction est effectuée avec le modèle basé sur la SDA. La poudre d'Aluminium semble

donc bien se comporter comme un matériau diélectrique auquel il est possible d'attribuer une permittivité complexe effective (qui tient compte du métal, de l'air entre les grains et de la couche d'oxyde : Al_2O_3 qui entoure les grains).

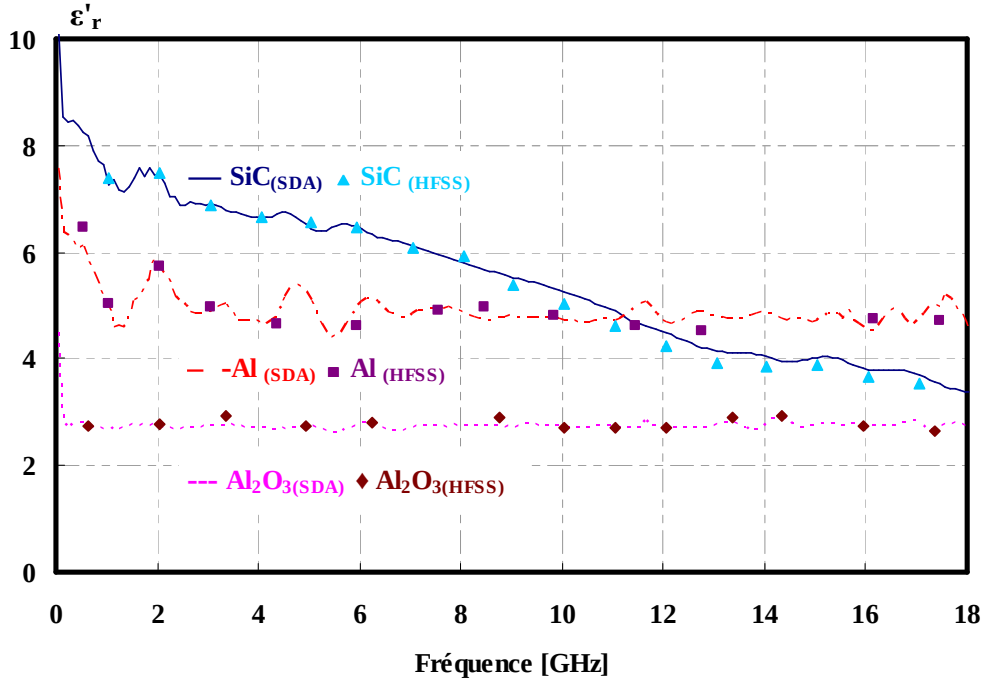


Figure III-23. Permittivité relative ε'r de la poudre SiC, de l'Al et de l'Al_2O_3 déterminée avec la SDA et HFSS.

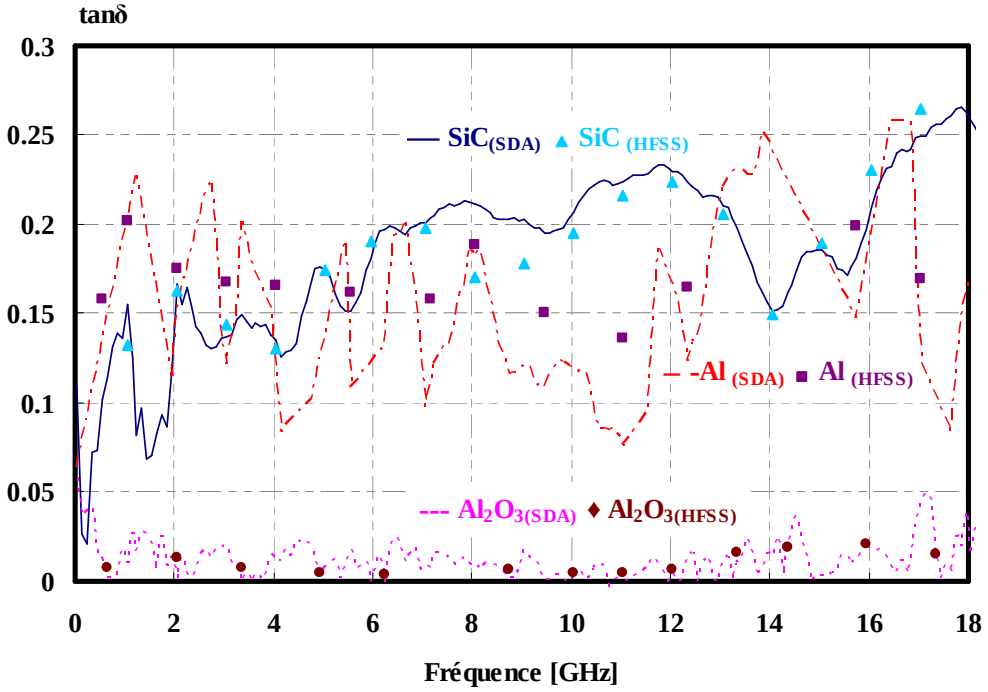


Figure III-24. Facteur de pertes de la poudre SiC, de l'Al et de l'Al_2O_3 déterminé avec la SDA et HFSS.

Pour les matériaux caractérisés nous avons observé un bon accord entre les valeurs extraites à partir des deux modèles (SDA et modèle 2D sous HFSS).

III.3.2.2 Poudres composites SiC/Al_2O_3 et SiC/Al

L'utilisation de matériaux pulvérulents permet également de réaliser facilement des mélanges de plusieurs composants afin de réaliser des pièces mécaniques ayant de nouvelles propriétés **[RHO 90, POU 91, MUZ 97]**.

Nous avons appliqué notre technique de mesure de permittivité aux deux mélanges pluvérulents SiC/Al_2O_3 et SiC/Al. Ces mélanges ont été placés dans les porte-échantillons des deux cellules de façon à réaliser une couche de poudre non compactée de 5 mm d'épaisseur sur les tronçons de ligne microruban. Toutes les mesures de paramètres S ont été réalisées à température ambiante (au voisinage de 20°C).

Pour le composite SiC/Al_2O_3 la quantité d'alumine a été fixée à 20 %, 40 %, 60 %, et 80 % en volume. Les résultats relatifs à la constante de propagation de la ligne microruban recouverte par cette poudre sont présentés sur les **Figures III-25 et III-26**. La permittivité diélectrique complexe a ensuite été déterminée uniquement avec le modèle basé sur la SDA (car l'extraction de la permittivité est beaucoup plus rapide). L'évolution fréquentielle de ε'_r et du facteur de pertes est présentée sur les **Figures III-27 et III-28**. Nous avons également indiqué sur ces relevés les résultats correspondant à la poudre SiC seule et à la poudre d'Alumine seule**[LU 11]**.

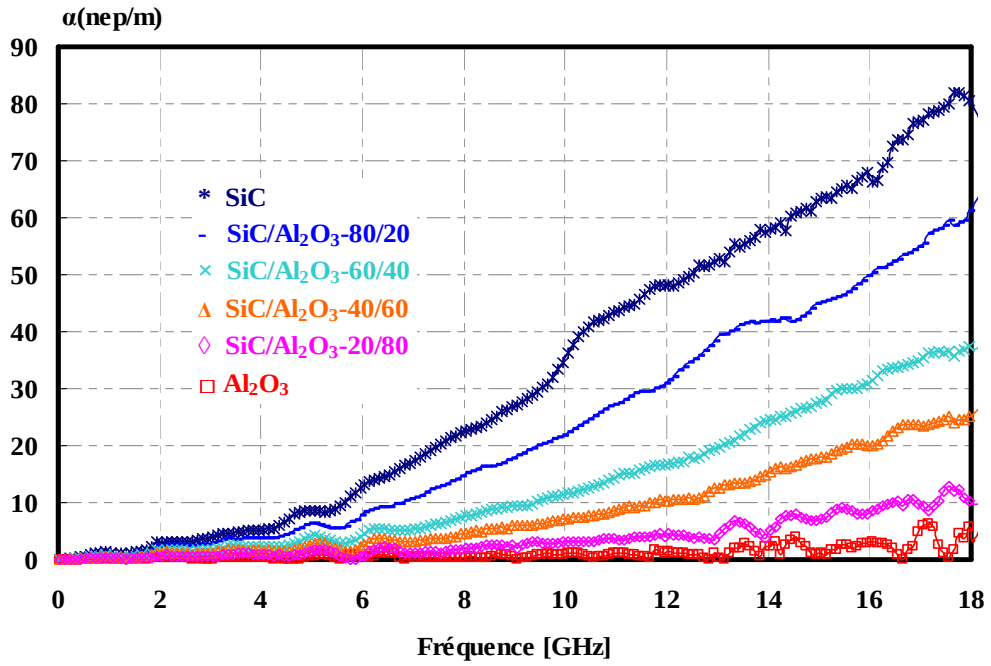


Figure III-25. Evolution fréquentielle de l'affaiblissement linéique α pour des mélanges SiC/Al_2O_3.

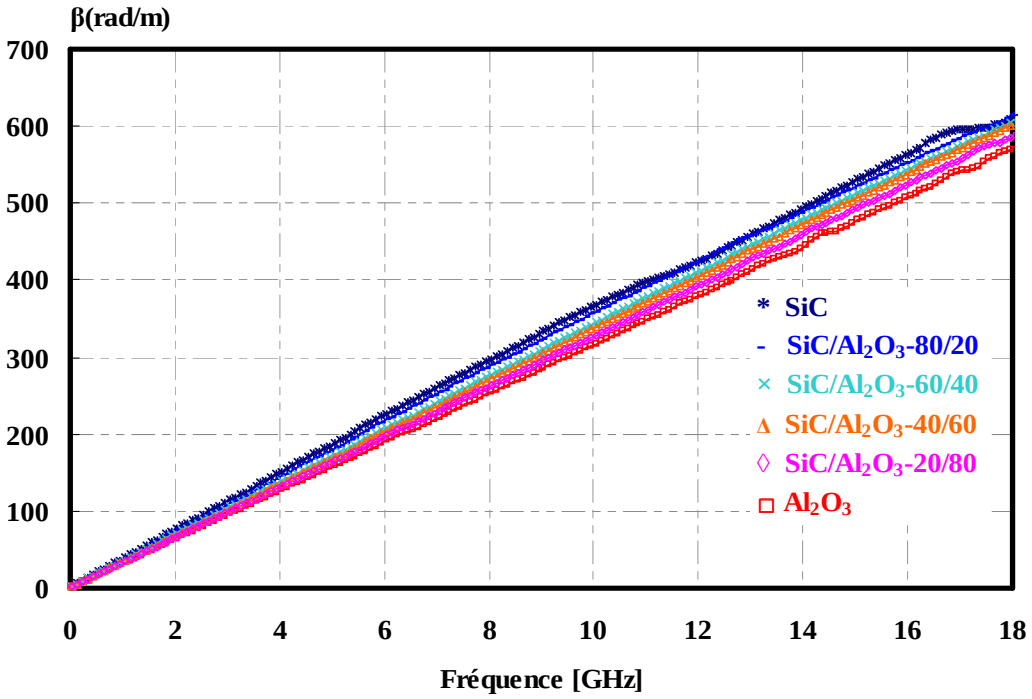


Figure III-26. Evolution fréquentielle de la constante de phase β pour des mélanges SiC/Al_2O_3.

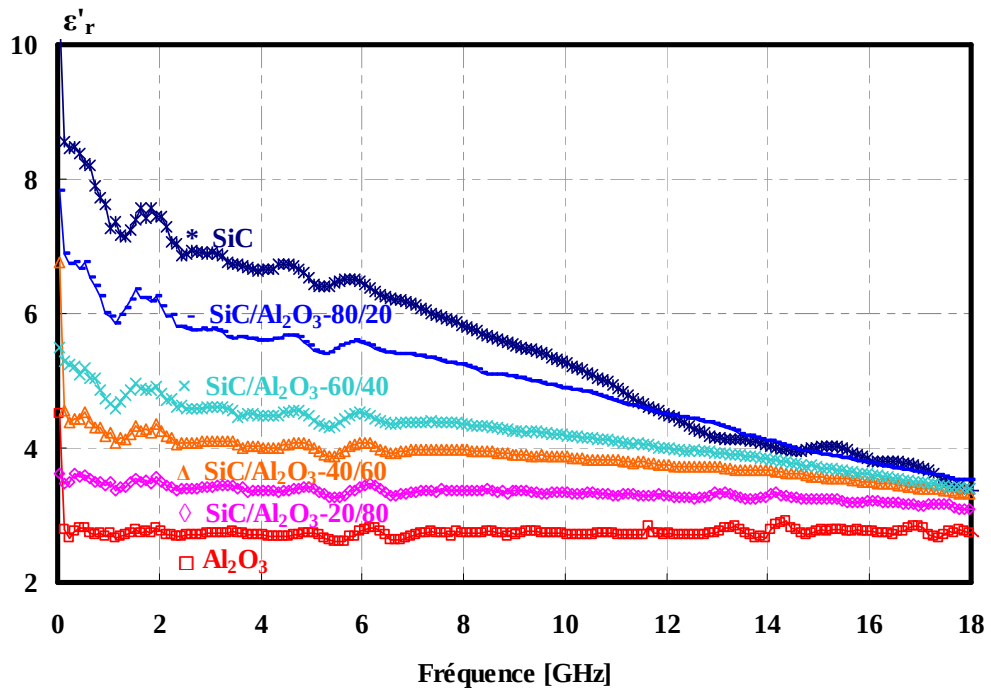


Figure III-27. Permittivité relative ε'$_r$ des poudres SiC, Al_2O_3 et des mélanges SiC/Al_2O_3 à 20%, 40%, 60%, et 80% (en volume) déterminée à partir de la SDA.

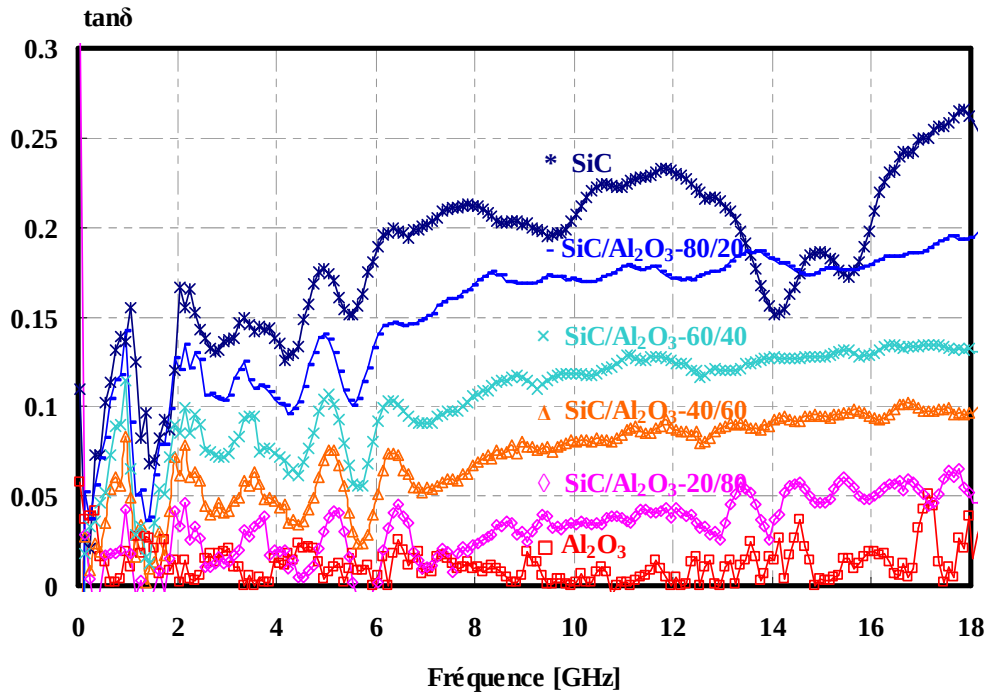


Figure III-28. Facteur de pertes des poudres SiC, Al, et des mélanges SiC/Al_2O_3 à 20%, 40%, 60%, et 80% (en volume) déterminé à partir de la SDA.

Nous observons que les valeurs des caractéristiques diélectriques des différents mélanges sont situées entre les celles de la poudre SiC pure et de la poudre Al_2O_3 pure.

L'introduction de grains d'alumine entraîne une diminution de la permittivité ainsi que du facteur de pertes. L'effet sur la permittivité ε'_r est beaucoup plus marqué en « basses fréquences » à cause de la diminution de la permittivité de la poudre SiC lorsque la fréquence augmente.

Le composite pulvérulent SiC/Al a été caractérisé avec les proportions suivantes : 10%, 20% et 50% en volume. Les résultats relatifs à la constante de propagation de la ligne microruban recouverte par cette poudre sont présentés sur les **Figures III-29 et III-30**. La permittivité diélectrique complexe déduite de la constante de propagation est présentée sur les **Figures III-31 (** ε'_r **) et III-32** (facteur de pertes). Comme dans le cas précédent nous avons également indiqué sur ces relevés les résultats correspondant à la poudre SiC et à la poudre d'Aluminium.

Nous observons les mêmes effets que lors de l'introduction de poudre d'alumine à savoir une diminution de la valeur de la permittivité et du facteur de pertes lorsque la proportion de grains d'aluminium augmente. Toutefois au-delà de 11 GHz la permittivité ε'_r des mélanges composites semble suivre celle de la poudre SiC, les grains d'aluminium semblent ne plus avoir d'influence. Est-ce lié à la taille des grains ? Il serait donc intéressant d'étudier ce type de mélanges avec diverses tailles de grain d'Aluminium et de SiC pour essayer de comprendre ce phénomène.

Une autre hypothèse concerne la validité du modèle utilisé pour l'extraction de la permittivité. Nous assimilons l'échantillon pulvérulent SiC/Al à un matériau diélectrique équivalent dont nous recherchons la permittivité effective du point de vue macroscopique. Mais peut-être apparaît-il des interactions entres les grains métalliques et les grains de SiC qui ne sont pas prises en compte dans le modèle. Enfin, les cellules utilisées pour la mesure des paramètres S au-delà de 10 GHz sont peut être mal adaptées pour ce type de composites. L'évolution de l'affaiblissement linéique est en effet difficile à interpréter pour les fréquences supérieures à 10 GHz (**Figures III-29**). Nous envisageons donc pour le futur de caractériser ce type de composite à l'aide d'une autre méthode qui ne soit plus basée sur une structure de propagation afin de vérifier si nous observons les mêmes phénomènes.

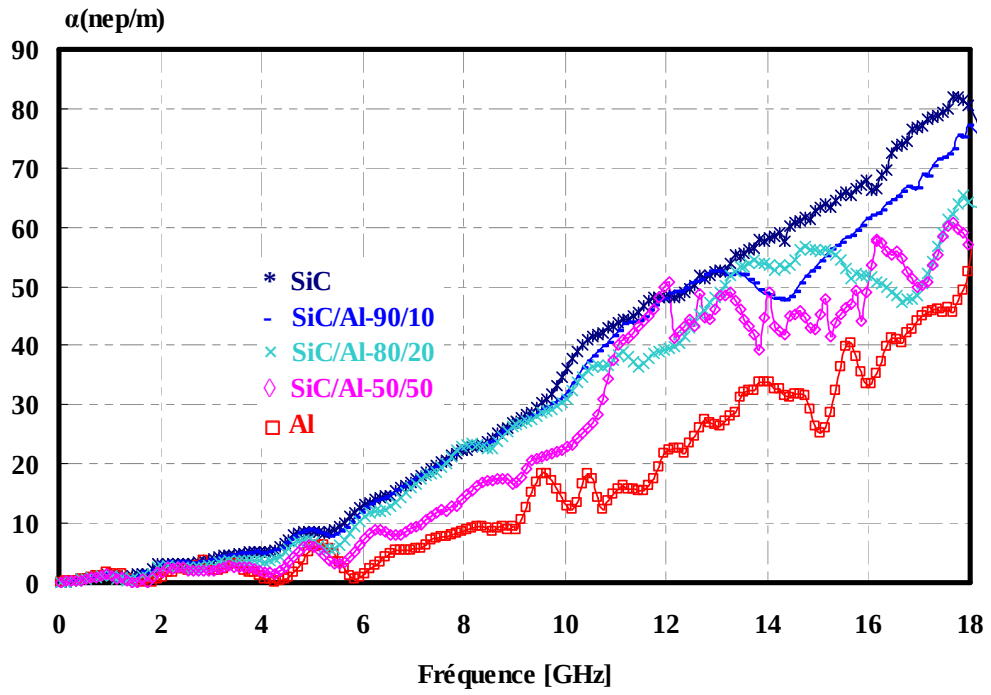


Figure III-29. Evolution fréquentielle de l'affaiblissement linéique α pour des mélanges SiC/Al.

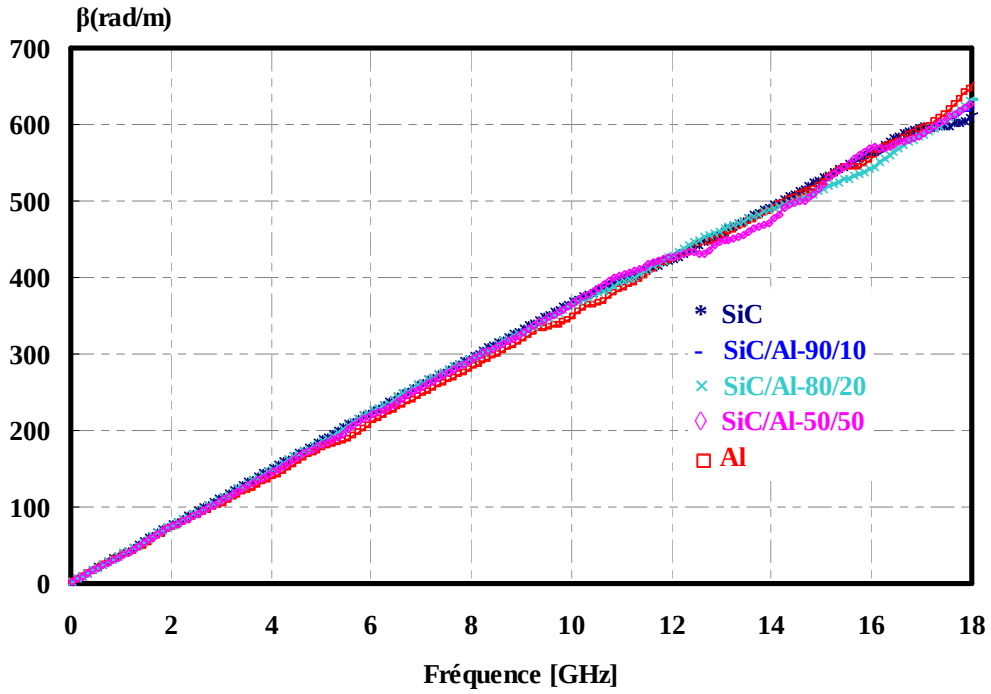


Figure III-30. Evolution fréquentielle de la constante de phase β pour des mélanges SiC/Al.

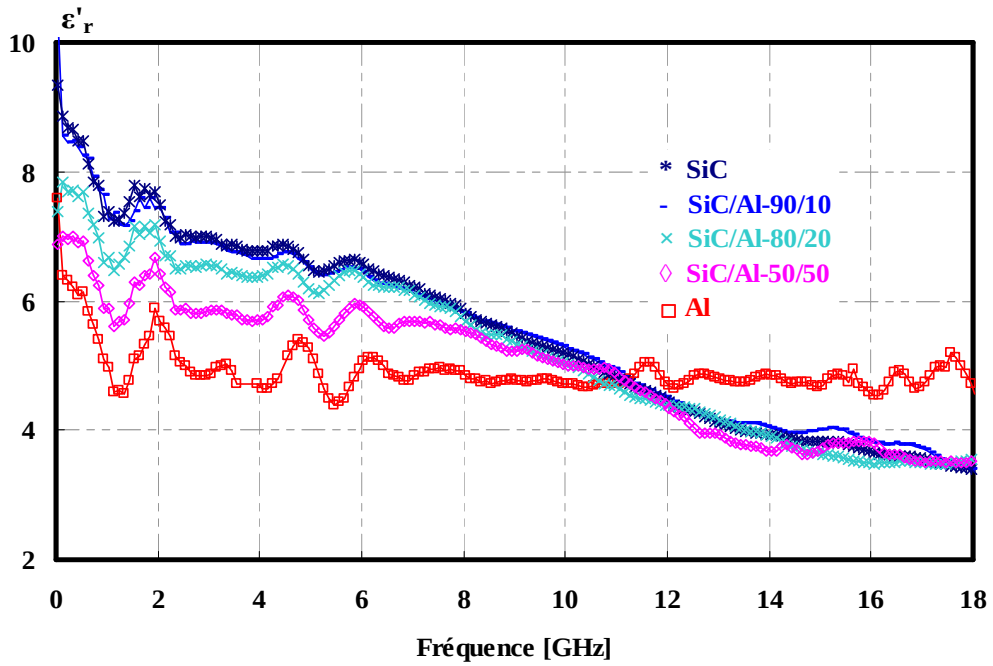


Figure III-31. Permittivité relative ε'r des poudres SiC, Al, et des mélanges SiC/Al à 10%, 20% et 50% (en volume) déterminée à partir de la SDA.

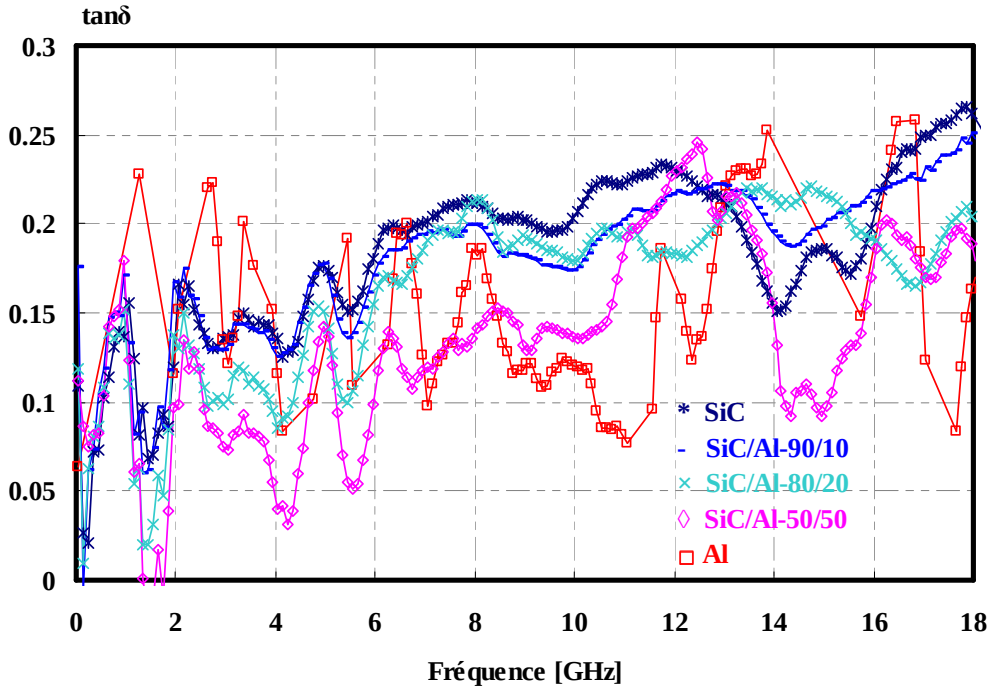


Figure III-32. Facteur de pertes des poudres SiC, Al, et des mélanges SiC/Al à 10%, 20% et 50% (en volume) déterminé à partir de la SDA.

Bien que la poudre d'aluminium semble présenter un comportement qui s'apparente à celui d'un diélectrique, il subsiste de nombreuses questions sans réponses en particulier pour les mélanges pulvérulents céramique/métal et il semble donc intéressant de poursuivre cette étude.

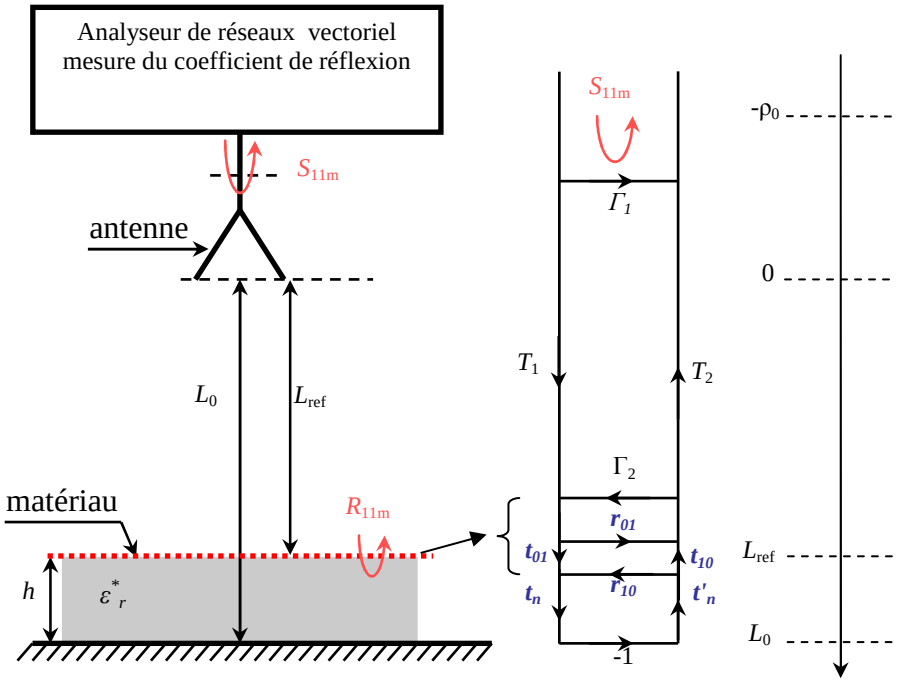
Les articles relatifs aux mesures de permittivité de poudres métalliques sont rares et traitent dans la majorité des cas de matériaux composites constitués d'une matrice en polymère (généralement de l'époxy) dans laquelle des particules métalliques (aluminium ou acier) sont dispersées **[ACH 99, SIN 03, BRO 04, CHE 05, GAL 10]**.

III.4 Caractérisation diélectrique en espace libre

Une technique de caractérisation diélectrique sans contact 'la méthode en espace libre' a également été développée dans le Groupe MITEC **[HAD 07]**. Les résultats relatifs à la poudre SiC présentés précédemment ont été comparés à ceux obtenus en utilisant cette technique. Nous n'avons pas pu faire les essais avec les autres matériaux pulvérulents car aux fréquences considérées il est nécessaire de travailler avec un volume de matériau suffisamment important que nous n'avions pas à notre disposition.

III.4.1 Principe

Le principe de la mesure est représenté par le synoptique donné en **Figure III-33**. Dans cette configuration, un analyseur de réseaux vectoriel est utilisé pour mesurer le coefficient de réflexion S_{11m} d'une antenne cornet placée à une distance L_0 d'une plaque métallique sur laquelle est déposé le matériau sous test. C'est une configuration de mesure en réflexion, dite monostatique, la présence de la plaque métallique permet de n'utiliser qu'une seule antenne fonctionnant à la fois en émission et en réception.



(a) Banc de mesure **(b) Graphe de fluence**

Figure III-33 : Synoptique du banc de mesure et graphe de fluence associé.

Nous faisons également apparaître, sur cette figure, le graphe de fluence représentant

l'interaction entre l'antenne et le matériau (**Figure III-33(b)**). Nous donnons ci-dessous quelques précisions:

- La permittivité complexe de l'échantillon sous test est définie par :

$$\varepsilon^*_r = \varepsilon'_r - j\varepsilon''_r \qquad \textbf{III-1}$$

- Γ_1, Γ_2, T_1, T_2 représentent respectivement les coefficients de réflexion et de transmission du quadripôle qui prend en compte d'une part l'antenne dans son environnement et d'autre part la zone de champ proche comprise entre l'antenne et le plan de mesure du matériau (distance L_{ref}),

- r_{01}, r_{10} et t_{01}, t_{10} représentent respectivement les coefficients de réflexion et de transmission des dioptres air-matériau (matériau-air), situés à une distance $r=L_{ref}$ de l'antenne. En appliquant les conditions aux limites à l'interface air-échantillon, les paramètres du dioptre air-matériau (matériau-air) s'écrivent :

$$r_{01} = -r_{10} = 1 + t_{10} = 1 - t_{01} = \frac{1-\sqrt{\varepsilon^*_r}}{1+\sqrt{\varepsilon^*_r}} \qquad \textbf{III-2}$$

- t_n et t'_n représentent les coefficients de transmission dans le matériau testé.

- le coefficient de réflexion R_{11m} calculé dans le plan $r = L_{ref}$, correspond à la contribution de toutes les ondes émergentes de ce plan dues au phénomène de réflexions multiples.

Dans le cas usuel, la distance entre l'antenne et le matériau est choisie suffisamment grande afin de négliger le facteur de divergence (qui traduit la diminution de l'amplitude de l'onde au cours de sa propagation dû au fait que le faisceau n'est pas paraxial : divergence géométrique). Dans notre cas, nous avons volontairement opéré à une distance antenne-matériau relativement proche afin de minimiser les effets de diffraction sur les bords de l'échantillon, de ce fait, nous prenons donc en compte ce facteur de divergence dans la modélisation. Nous considérons donc une onde sphérique plutôt qu'une onde plane se propageant dans le matériau. Ainsi, le rapport entre les champs électriques $\vec{E}(0)$ (au point de référence r=0) et $\vec{E}(P)$ (en un point d'observation P situé à une distance r du point de référence) est donné par l'expression suivante:

$$\frac{\left|\vec{E}(P)\right|}{\left|\vec{E}(0)\right|} = \frac{\rho_0}{\rho_0 + r} e^{-\gamma r} \qquad \textbf{III-3}$$

ρ_0 est le rayon de courbure de la surface d'onde au point de référence r=0, et le terme $\frac{\rho_0}{\rho_0 + r}$ est le facteur de divergence qui traduit la conservation de l'énergie durant la propagation d'une onde sphérique. L'amplitude de l'onde s'atténue donc au fur et à mesure qu'elle se propage, à cause du facteur de divergence. Nous utilisons donc un formalisme basé sur les règles de Mason, où sont ajoutés des éléments nouveaux pour tenir compte de cette atténuation **[HAD 09]**.

Les coefficients de transmission t_n et t'_n dans le matériau sous test s'expriment alors sous la forme :

$$t_n = \frac{E(\rho_0 + L_{ref} + 2nh)}{E(\rho_0 + L_{ref} + (2n+1)h)} = \frac{\rho_0 + L_{ref} + 2nh}{\rho_0 + L_{ref} + (2n+1)h} e^{-\gamma h}$$
$$t'_n = \frac{E(\rho_0 + L_{ref} + (2n+1)h)}{E(\rho_0 + L_{ref} + (2n+2)h)} = \frac{\rho_0 + L_{ref} + (2n+1)h}{\rho_0 + L_{ref} + (2n+2)h} e^{-\gamma h} \qquad \textbf{III-4}$$

où le nombre entier 'n' représente le nombre de trajets (dûs aux réflexions multiples) entre les deux interfaces et γ est la constante de propagation de l'onde dans le matériau sous test qui est liée à sa permittivité par la relation suivante :

$$\gamma = \alpha + j\beta \qquad \textbf{III-5}$$

avec $\alpha = \frac{2\pi}{\lambda_0}\sqrt{\frac{1}{2}\left(\left|\varepsilon^*_r\right| - \varepsilon'_r\right)}$ et $\beta = \frac{2\pi}{\lambda_0}\sqrt{\frac{1}{2}\left(\left|\varepsilon^*_r\right| + \varepsilon'_r\right)}$

La mise en équation du graphe de fluence correspondant au dispositif en présence du matériau à caractériser permet d'obtenir l'expression du coefficient de réflexion S_{11m} mesuré:

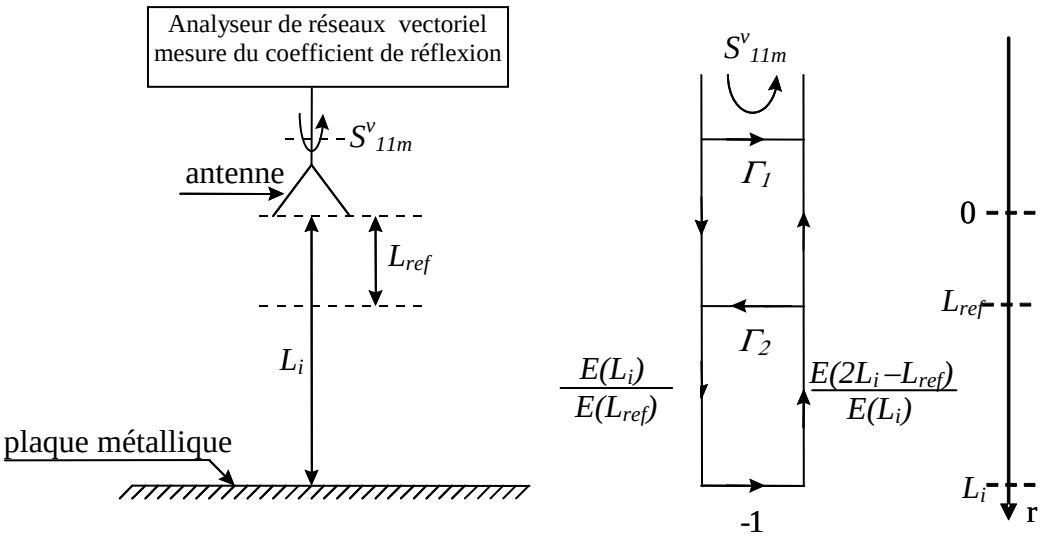
$$S_{11m} = \Gamma_1 - T_1 T_2 R_{11m} \quad \text{avec} \quad R_{11m} = f(h, \varepsilon^*_r, L_{ref}, L_0, \rho_0, \Gamma_2) \qquad \textbf{III-6}$$

L'équation **III-6** définit la relation entre la permittivité complexe ε^*_r et le coefficient de réflexion S_{11m} mesuré avec l'analyseur de réseaux. Ainsi, par inversion de cette équation, nous sommes capables, connaissant l'épaisseur h du matériau, d'en déterminer sa permittivité relative ε^*_r. L'inversion de l'équation **III-6** ne peut se faire de façon analytique puisque la

grandeur R_{11m} est une fonction non linéaire aussi bien de la permittivité que de l'épaisseur du matériau. Nous utilisons donc une technique numérique basée sur la méthode de Newton-Raphson **[ANG 72]** pour déterminer la permittivité relative complexe du matériau sous test à partir de la mesure du coefficient de réflexion S_{11m}.

III.4.2 Calibrage du banc de mesure

Avant de réaliser les mesures du coefficient de réflexion de l'antenne en présence du matériau sous test, nous considérons le cas à vide (**Figure III-34**) dans le but de réaliser un calibrage du banc. Cette technique de calibrage détaillée dans la thèse de Monsieur Haddadi **[HAD 07]**, doit être effectuée afin de déterminer les trois termes complexes, Γ_1, Γ_2, et T_1T_2 ainsi que le terme réel ρ_0.



(a) Banc de mesure. **(b) Graphe de fluence.**

Figure III-34 : Synoptique et graphe de fluence correspondant à la procédure d'étalonnage du banc de mesure.

L'établissement du graphe de fluence de la structure à vide permet de calculer le coefficient de réflexion S^v_{11m} (l'exposant 'v' indiquant une mesure à vide):

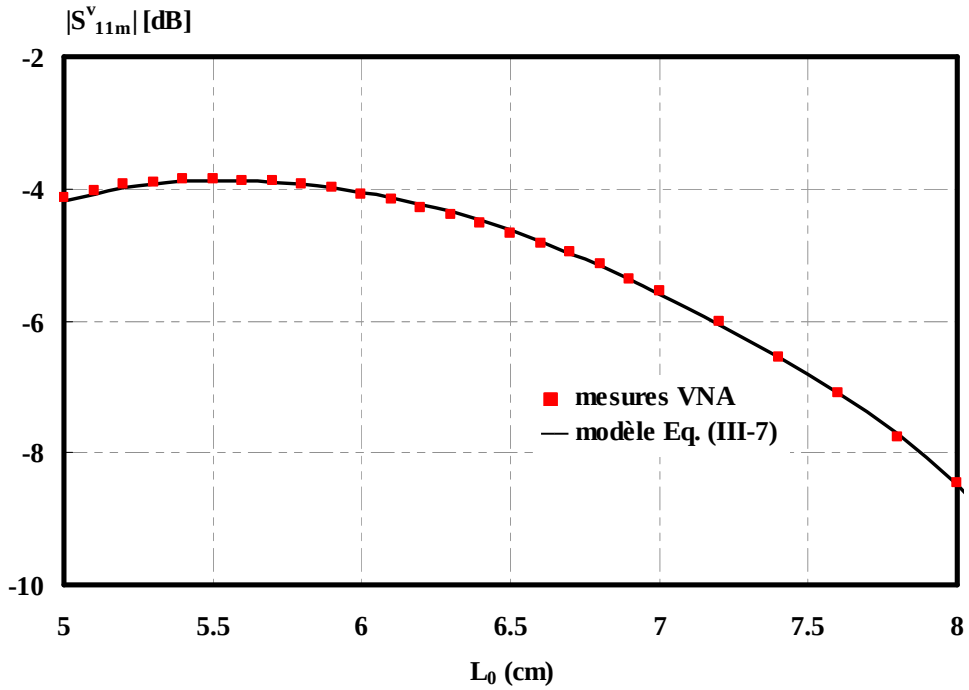
$$S^v_{11m} = \Gamma_1 - T_1T_2\sum_{n=1}^{\infty}(-1)^n(\Gamma_2)^{n-1}\frac{\rho_0 + L_{ref}}{\rho_0 + 2nL_0 - (2n-1)L_{ref}}e^{-2n\pi\gamma_0(L_0 - L_{ref})} \qquad \textbf{III-7}$$

où $\gamma_0 = j2\pi/\lambda_0$ représente la constante de propagation dans l'air.

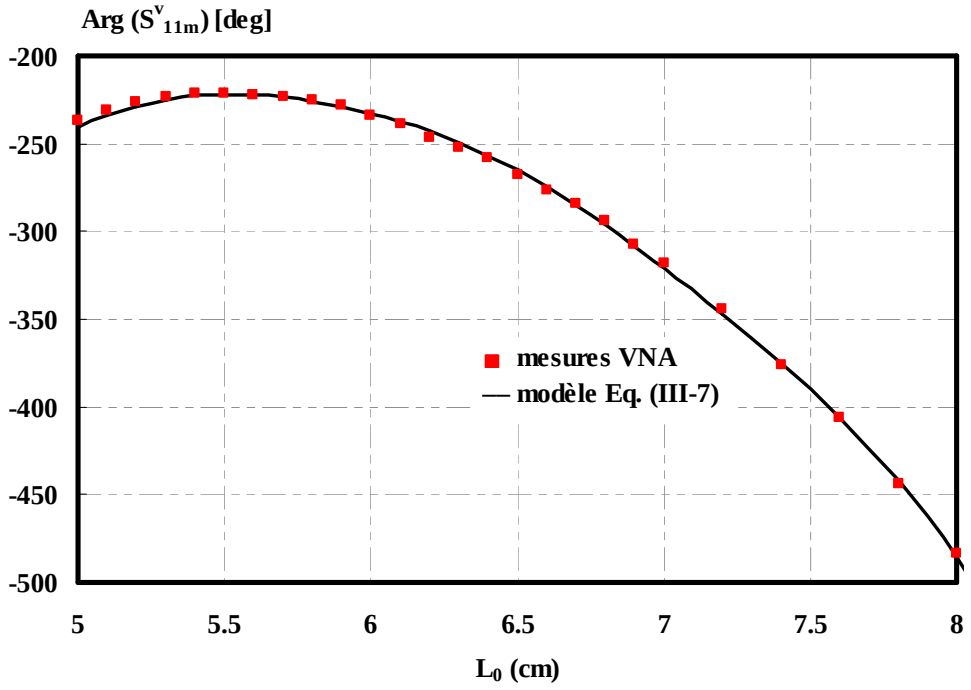
Compte tenu de la nature transcendante de l'équation **III-7**, le développement de S^{v}_{11m} est limité à l'ordre n = 3. Dans le cadre des applications abordées cet ordre est généralement suffisant pour rendre compte de manière satisfaisante de la grandeur mesurée **[HAD 07, HAD 09]**.

Afin de réaliser le calibrage, un moyen d'opérer est d'effectuer la mesure du coefficient de réflexion de l'antenne à vide pour quatre positions distinctes L_i (i = 1,..,4) de la plaque métallique de façon à procéder au calcul des quatre inconnues Γ_1, Γ_2, le produit T_1T_2 et ρ_0. Compte-tenu de l'expression **III-7** le système d'équations obtenu à partir des quatre mesures doit être résolu numériquement. Cependant, afin d'augmenter la précision sur la détermination des quatre inconnues pour la plage d'excursion [L_{ref}, $L_{i\ max}$] nous considérons *n* mesures du coefficient de réflexion pour *n* positions de la plaque métallique. Le système d'équations obtenu est ensuite résolu en utilisant la méthode des moindres carrés.

Un exemple d'ajustement est donné sur la **Figure III-35** à la fréquence de 2,45 GHz lors de l'utilisation d'une antenne cornet large-bande (2 - 18 GHz) dont les dimensions de l'ouverture rectangulaire sont : 8,2 cm×12,6 cm. Les valeurs des paramètres ajustés sont : Γ_1=-9,7 dB/-120,5° ,Γ_2=-13,4 dB/89,6° T_1T_2=-6 dB/89,6° *et* ρ_0=0,33 cm.



(a) Evolution du module du coefficient de réflexion S^{v}_{11m} en fonction de la distance L_0 entre l'antenne et la plaque métallique (à vide)



(b) Evolution de la phase du coefficient de réflexion S^{v}_{11m} en fonction de la distance L_0 entre l'antenne et la plaque métallique (à vide)

Figure III-35 : Ajustement des quatre termes Γ_1 ,Γ_2, le produit T_1T_2 et ρ_0 à partir de l'expression III-7 (avec n=3) en utilisant la méthode des moindres carrés.

III.4.3 Caractérisation de la poudre SiC

Après avoir calibré la structure à vide en utilisant la démarche décrite précédemment, nous avons caractérisé la poudre SiC (**Figure III-36**). Les quantités des autres produits n'étaient pas suffisantes pour pouvoir négliger les phénomènes de diffraction sur les bords de l'échantillon. Cela a permis de comparer les résultats obtenus précédemment (cf. paragraphe III.3.2.1) avec ceux donnés par une technique de caractérisation très différente.

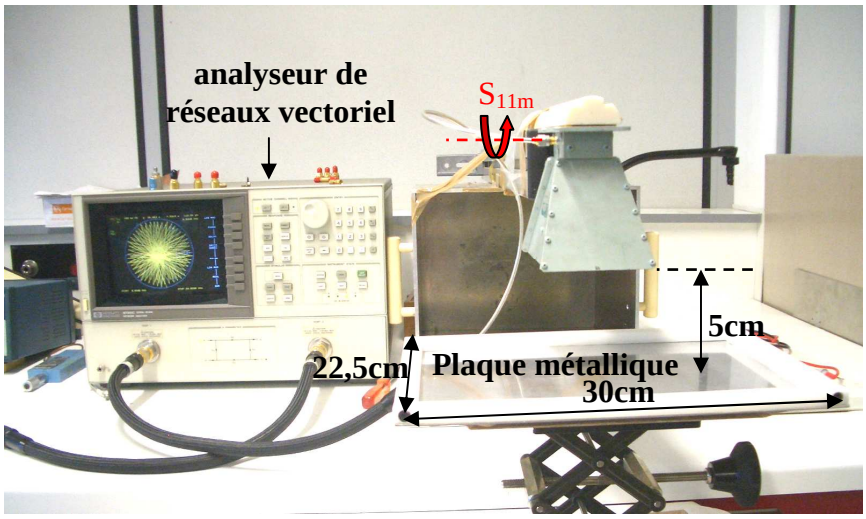


Figure III-36 : Banc de mesure en espace libre pour caractériser la poudre SiC.

Un analyseur de réseaux vectoriel Agilent HP 8720C fonctionnant dans la bande (50 MHz à 20,05 GHz) a été connecté à une antenne cornet (AEL Industries model H-1498) placée face à une couche de poudre SiC de 1 cm d'épaisseur déposée sur une plaque métallique. L'antenne a été placée à une distance de l'ordre de 5 cm au-dessus du matériau présentant une surface de 22,5 x 30 cm^2 ceci afin que la majorité du lobe de rayonnement intercepte le matériau pour minimiser l'influence des diffractions lors du calcul de la permittivité.

Après avoir procédé au calibrage du banc (effectué pour chaque fréquence de mesure), la permittivité diélectrique complexe ε^*_r de la poudre SiC a été déduite du coefficient de réflexion S_{11m} mesuré à l'entrée de l'antenne dans une bande de fréquences allant de 2 à 10 GHz. Les résultats obtenus sont présentés sur les **Figures III-37 et III-38** et comparés à ceux obtenus à partir des mesures effectuées avec les lignes microruban.

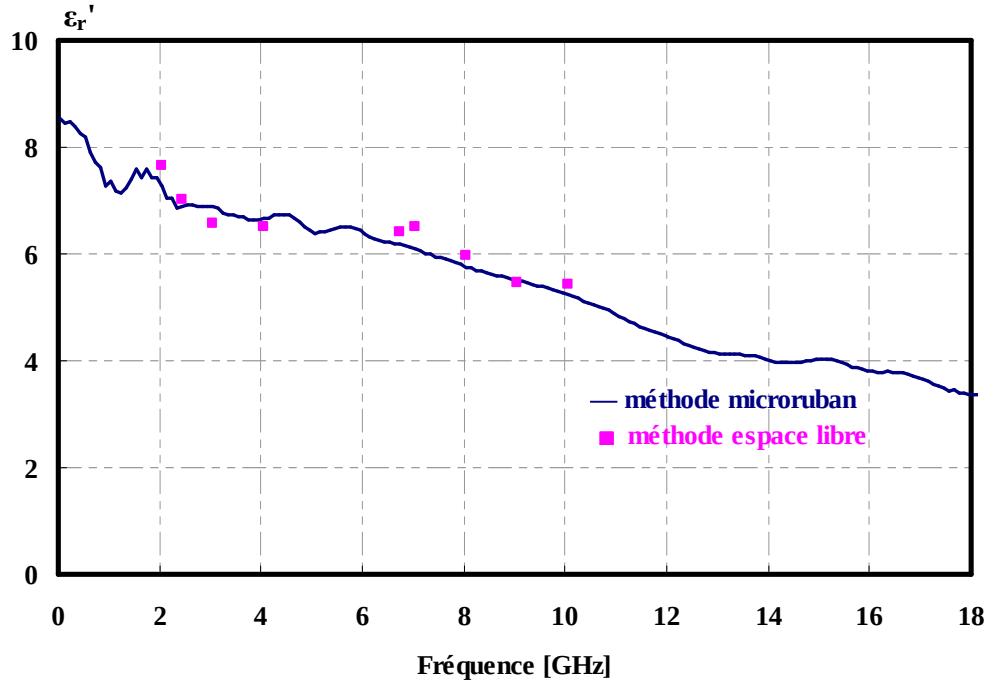


Figure III-37. Permittivité relative ε'$_r$ de la poudre SiC déterminée avec la technique en espace libre.

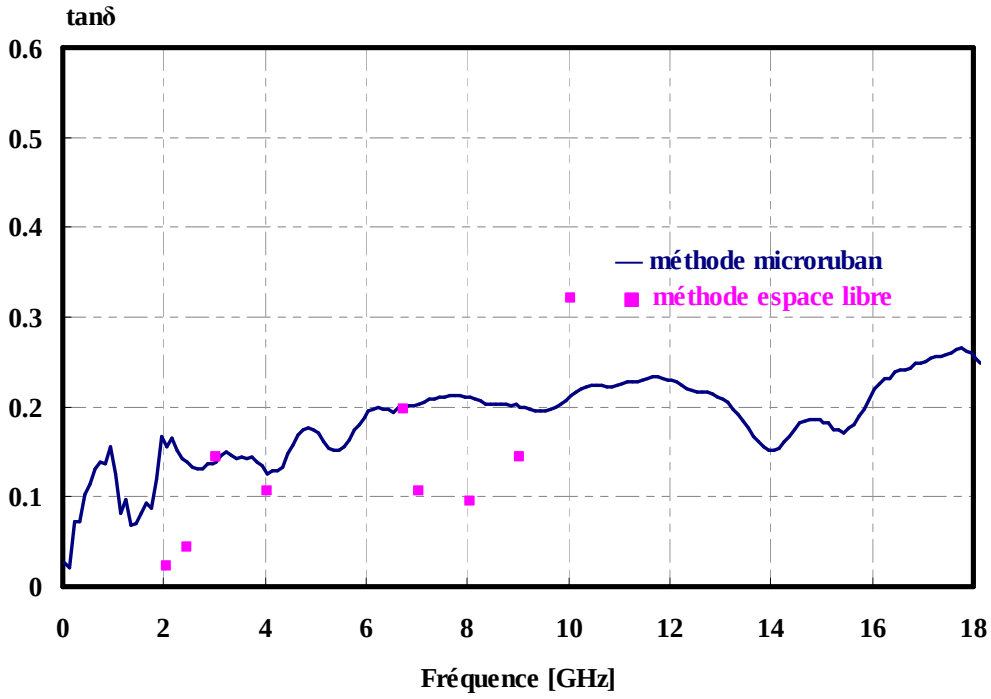


Figure III-38. Facteur de pertes diélectriques de la poudre SiC déterminé avec la technique espace libre.

Les comparaisons ont été limitées à la bande de fréquences 2 GHz - 10 GHz car le cornet ne fonctionne qu'à partir de 2 GHz et au-delà de 10 GHz le dispositif utilisé ne permettait pas d'avoir une précision suffisante pour les mesures de position ce qui rend

difficile l'estimation des 4 termes recherchés. De plus il était très difficile de garantir l'épaisseur de poudre à mieux que 1 mm.

Nous observons globalement un bon accord sur les permittivités déterminées à partir des deux techniques. Des disparités apparaissent néanmoins sur l'estimation des pertes diélectriques. Une étude de sensibilité a montré que la mesure en espace libre dépend fortement de l'épaisseur du dépôt de poudre. En pratique, il était très difficile de maintenir une épaisseur constante à mieux que 1 mm. Ces mesures nous ont toutefois permis de conforter les résultats relatifs à la poudre SiC obtenus avec l'utilisation des cellules en technologie microruban.

III.5 Etude de faisabilité pour la caractérisation de nanopoudres

Les résultats présentés jusqu'ici sont relatifs à des matériaux massifs ou pulvérulents dont la taille des grains est de l'ordre de 100 micromètres. Les cellules de mesures réalisées nous ont permis de montrer la faisabilité de la méthode proposée pour caractériser du point de vue diélectrique sur une large bande de fréquences des poudres classiques utilisées pour la réalisation de pièces mécaniques par frittage.

L'utilisation de poudres dont la taille des grains est inférieure au micromètre semble apporter en particulier un renforcement des caractéristiques mécaniques. Il devient donc intéressant d'étudier les propriétés diélectriques de poudres nanométriques qui vont interagir avec un champ électromagnétique comme par exemple lors d'un frittage sous micro-ondes.

Le travail présenté dans cette partie est une étude de faisabilité pour la caractérisation diélectrique de poudres nanométriques à partir d'une structure de propagation coplanaire.

III.5.1 Présentation de la structure coplanaire

La manipulation de poudres nanométriques est dangereuse et doit être effectuée dans un environnement contrôlé qui n'expose pas le manipulateur à ces particules. Il est donc absolument nécessaire de confiner ces poudres dans un contenant étanche que l'on pourra ensuite manipuler sans risques. Il n'est donc plus possible de travailler avec les cellules que nous avons présenté précédemment.

L'idée que nous avons retenue est de placer de faibles quantités de nanopoudres à l'intérieur de tubes rectangulaires (de très faibles dimensions dans un plan de section droite) en borosilicate (**Figures-39**) ayant une longueur de 5 cm sur lesquels seront déposées des lignes coplanaires. Ce matériau peut être utilisé jusqu'à une température de 500 °C, il présente une permittivité $\varepsilon'_r = 4{,}7$ et un facteur de pertes $\tan\delta = 0{,}0055$. Afin de confiner la poudre à l'intérieur des tubes les extrémités seront scellées par pincement à chaud ou bouchées par une résine.

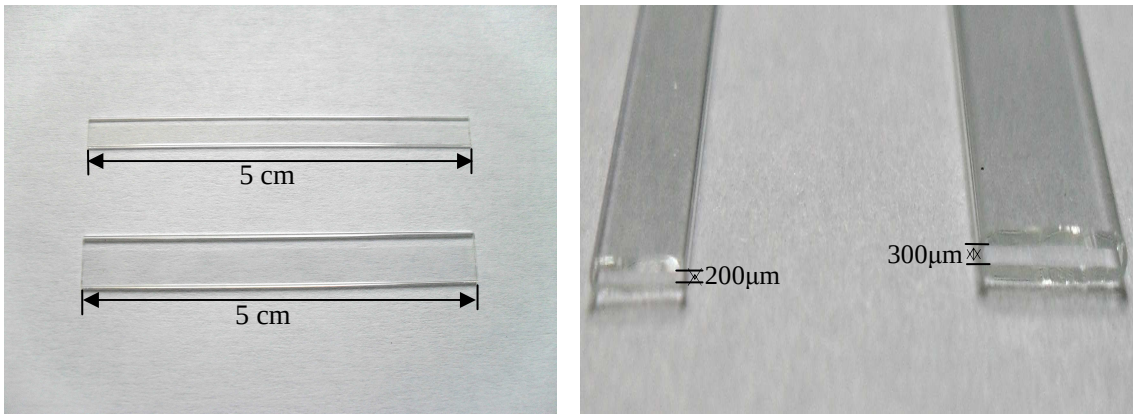


Figure III-39. Photographie des structures de ligne coplanaire.

Pour réaliser les mesures sur une très large bande de fréquences (100 MHz à 60 GHz) tout en restant mono-mode (utilisation du mode fondamental) les ouvertures doivent être de l'ordre d'une centaine de micromètres or le champ électrique doit pénétrer suffisamment dans le matériau à caractériser. L'épaisseur des tubes ne doit donc pas être trop importante.

Vu les dimensions mises en jeu, la mesure des paramètres S sera réalisée à l'aide d'une station sous pointes ce qui permettra d'éliminer les problèmes liés à la connexion des fiches.

Afin de vérifier si l'utilisation d'une structure de propagation coplanaire réalisée à partir de ces tubes était suffisamment sensible pour extraire la permittivité inconnue du matériau placé à l'intérieur, nous avons calculé la permittivité diélectrique effective de la structure de propagation en fonction de la fréquence. (**Figure III-40**).

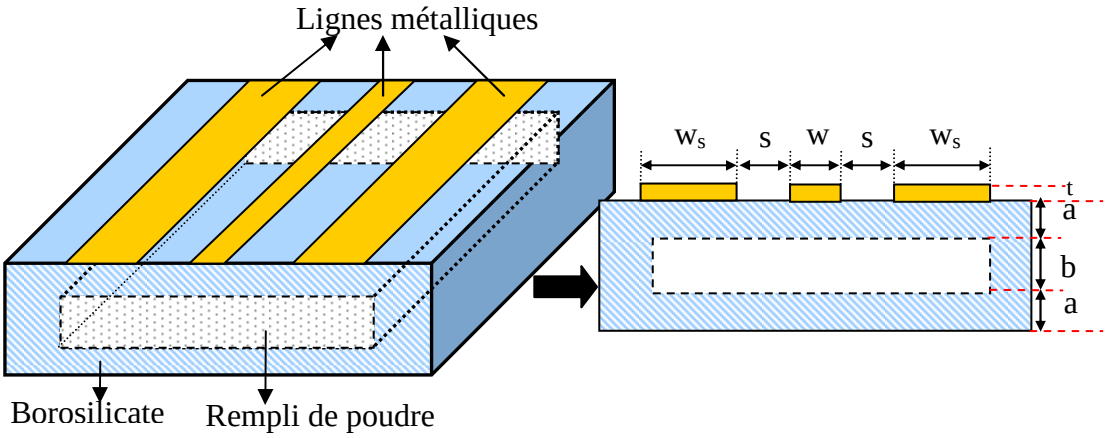


Figure III-40. Cellule de mesure constituée d'une structure de propagation coplanaire.

Les calculs ont été réalisés avec les paramètres suivants :

- longueur des lignes L=10 mm ;
- épaisseur de métallisation t=1 μm ;
- largeur des métallisations : w_s=1000 μm, w=200 μm, s=175 μm.

Nous avons considéré 4 types de tubes en borosilicate disponibles sur le marché :

- Tube 1 : a=200 μm ; b=200 μm.
- Tube 2 : a=300 μm ; b=300 μm.
- Tube 3 : a=400 μm ; b=400 μm.
- Tube 4 : a=1500 μm ; b=3000 μm.

III.5.2 Etude de la permittivité effective

Cette étude a été réalisée à l'aide du logiciel HFSS sur une plage de fréquences allant de 0,5 GHz à 20 GHz. Nous nous sommes intéressés à la permittivité diélectrique effective car ce paramètre est lié aux lignes de champ électriques qui traversent le substrat (ici la paroi des tubes) mais également l'air (au-dessus des lignes) et en particulier le matériau placé à l'intérieur des tubes. Si les lignes de champ électriques pénètrent suffisamment à l'intérieur du tube (dans le matériau) alors les caractéristiques de propagation de la structure subiront une modification (par rapport à celles observées lorsque les tubes sont vides) que l'on pourra déceler lors de la mesure des paramètres S et la permittivité effective de la structure de propagation en sera alors affectée.

Le modèle utilisé pour les calculs est présenté sur la **Figure III-41**.

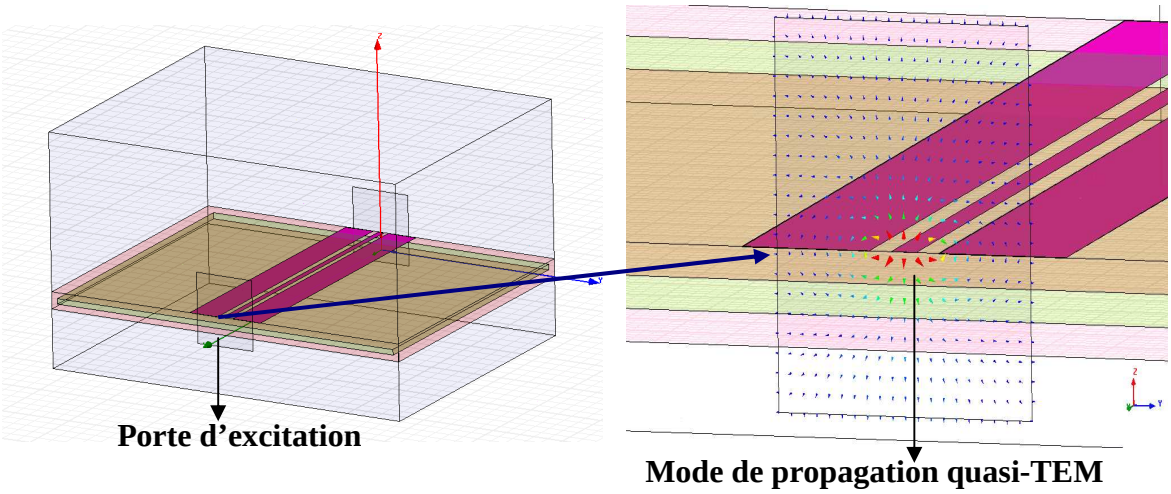
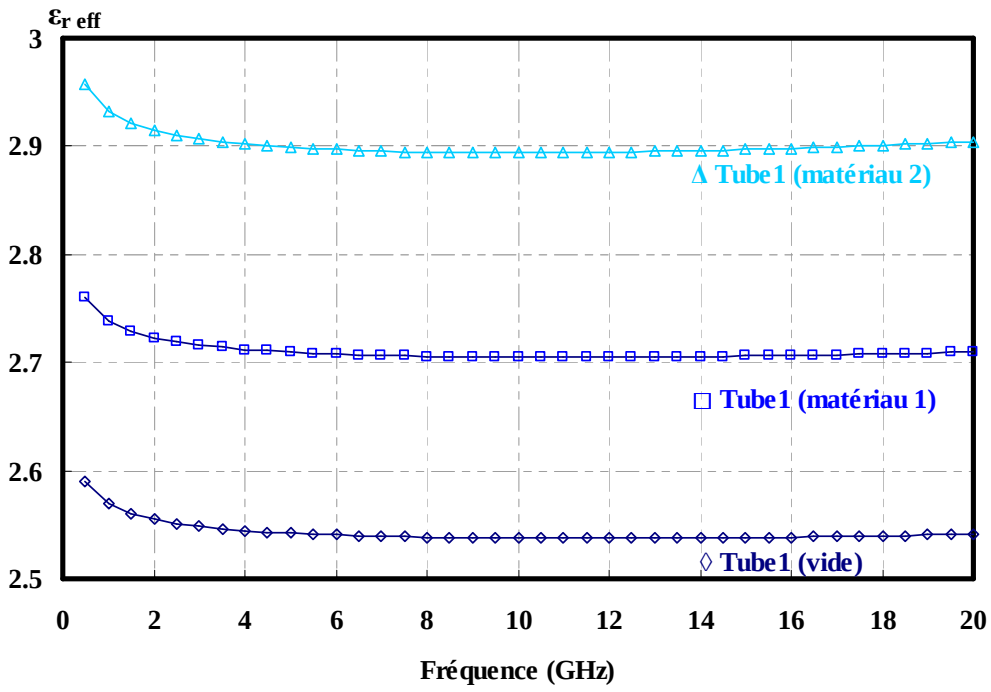


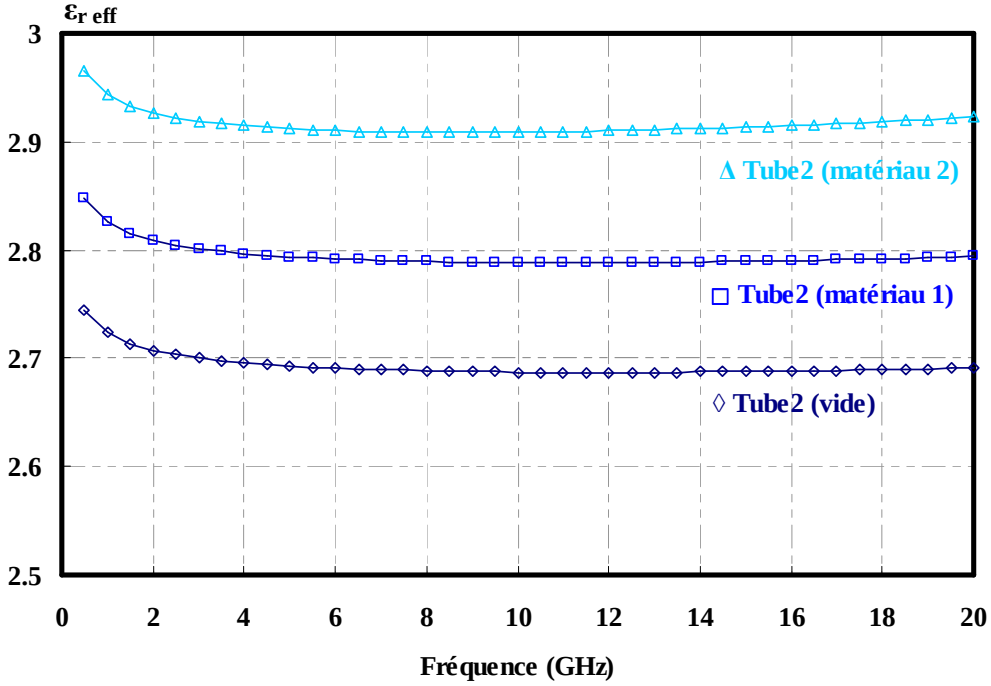
Figure III-41. Modélisation d'une ligne coplanaire déposée sur un tube.

III.5.3 Résultats

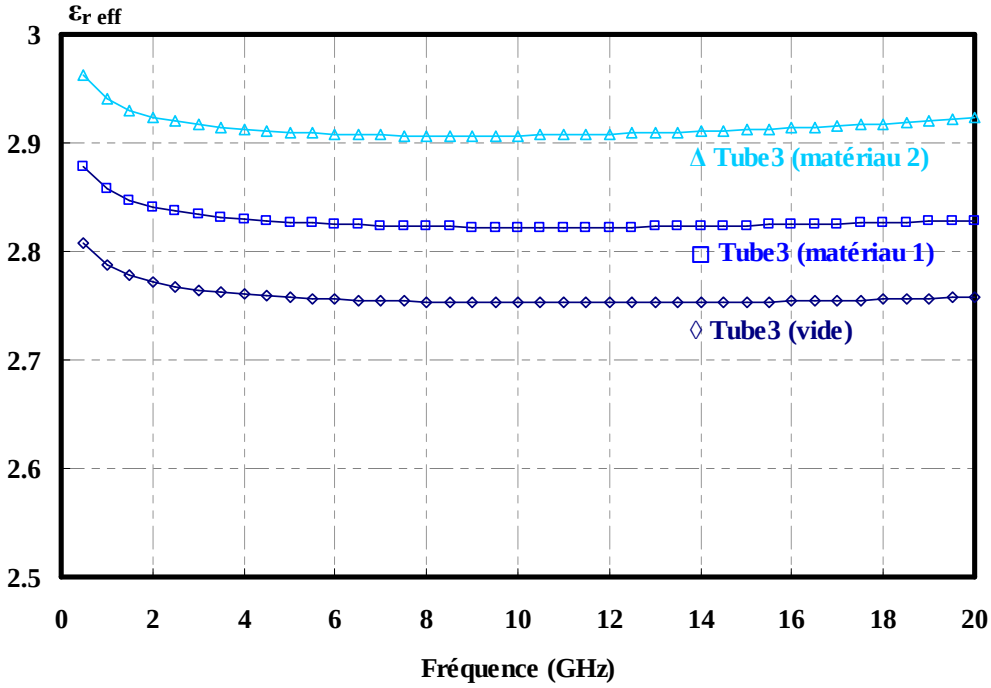
La permittivité effective a été calculée pour 3 situations : lorsque les tubes sont vides, en présence d'un matériau (noté 1) de permittivité ε^*_r =3-j.0,3 ; puis en présence d'un matériau (noté 2) de permittivité ε^*_r= 8-j.0,8. Les évolutions fréquentielles de $\varepsilon_{r\ eff}$ pour les différents cas considérés sont présentées sur les **Figures III-42** a,b,c et d.



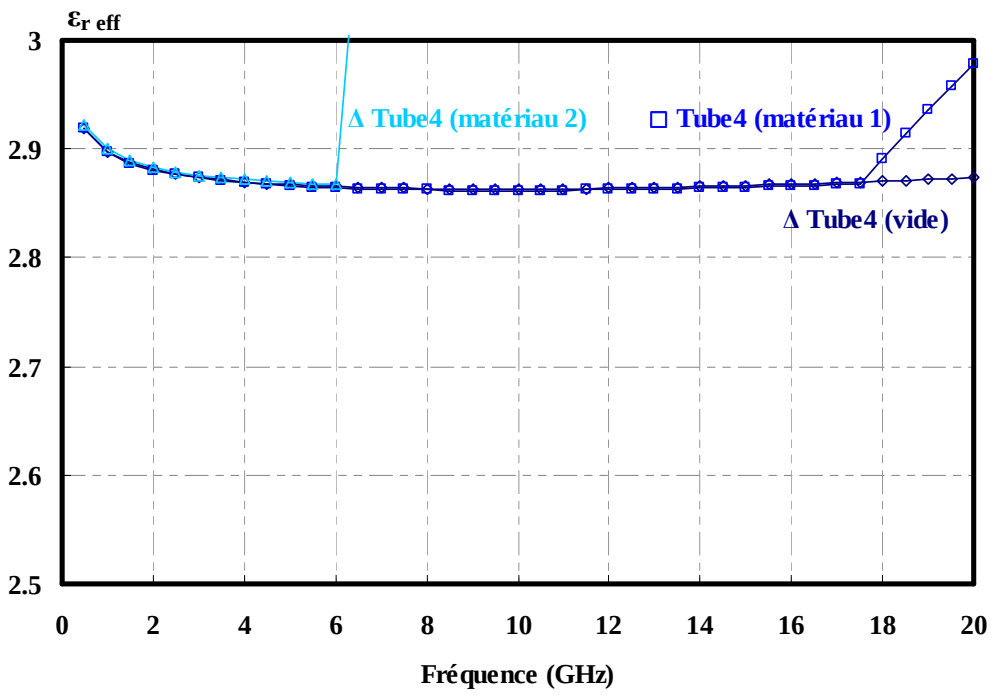
(a)


εr eff
3
2.9
2.8
2.7
2.6
2.5
0
2
4
6
8
10
12
14
16
18
20
Fréquence (GHz)
Δ Tube2 (matériau 2)
□ Tube2 (matériau 1)
◊ Tube2 (vide)

(b)


εr eff
3
2.9
2.8
2.7
2.6
2.5
0
2
4
6
8
10
12
14
16
18
20
Fréquence (GHz)
Δ Tube3 (matériau 2)
□ Tube3 (matériau 1)
◊ Tube3 (vide)

(c)



(d)

Figure III-42. Paramètres $\varepsilon_{r\ eff}$ obtenus à partir d'une modélisation avec HFSS.

Nous observons bien une différence de la valeur de la permittivité effective en fonction de la nature du matériau placé à l'intérieur des tubes 1, 2 et 3. Par contre l'utilisation du tube 4 (compte-tenu des dimensions transversales de la ligne coplanaire considérée) ne permet pas de déceler la différence de permittivité du matériau. L'épaisseur des parois du tube est trop importante et le champ électrique est confiné quai-totalement dans la paroi supérieure sur laquelle est gravée la ligne.

Nous constatons que la cellule de mesure sera d'autant plus sensible que la paroi du tube sera faible. Pour la suite des ces travaux, nous avons donc choisi de travailler avec les tubes 1 et 2.

III.6 Conclusion

La méthode de caractérisation diélectrique que nous avons développée à été mise en pratique sur une large bande de fréquences allant de 30 MHz à 18 GHz. Les expérimentations réalisées d'abord avec des matériaux de permittivité connue (substrat Duroïd 5880 et plexiglass) ont donné des résultats tout à fait corrects, toutefois la détermination des pertes diélectriques (facteur de pertes ou partie imaginaire de la permittivité complexe) reste difficile pour le cas des matériaux à faibles pertes. Il serait possible d'améliorer ce point d'une part en testant d'autres cellules de mesures réalisées à partir de structures de propagation différentes (par exemple coplanaires ou microfentes) et d'autre part en améliorant la prise en compte des pertes métalliques de la structure de propagation dans le modèle d'extraction basé sur la SDA.

Les tests réalisés sur des matériaux pulvérulents ont donné des résultats qui semblent cohérents avec les données de la littérature et nous avons constaté en particulier que nous pouvions affecter une permittivité complexe effective à la poudre d'Aluminium dont la valeur est proche de celle de la poudre de SiC. Cela expliquerait du point de vue macroscopique les observations faites lors des expérimentations de frittage de poudres d'Aluminium par micro-ondes ainsi que les trajectoires thermiques enregistrées par radiométrie micro-onde. Les résultats obtenus pour la poudre SiC ont été confirmés à partir d'une méthode de caractérisation totalement différente (méthode en espace libre).

Les nouveaux matériaux et en particulier les matériaux composites présentent des propriétés intéressantes lorsqu'ils sont réalisés à partir de poudres nanométriques. Nous avons donc envisagé la mise en œuvre de cellules de caractérisation diélectrique de nanopoudres sur une large bande de fréquence en utilisant des micro-tubes en borosilicate. Des simulations électromagnétiques ont permis de faire un choix parmi les différentes géométries et dimensions disponibles sur le marché. Les premiers tests de réalisations de cellules de mesures sont en cours.

Bibliographie

[ACH 99] M.E. ACHOUR, M.EL MALHI, J.L. MIANE, F. CARMONA, and F. LAHJOMRI
"Microwave properties of Carbon Black-Epoxy resin composites and their simulation by means of mixture laws"
Journal of Applied Polymer Science, vol. 73, pp 969-973, 1999.

[ANG 72] A. ANGOT
"Compléments de mathématiques à l'usage des ingénieurs de l'électrotechnique et des télécommunications"
Masson & Cie, Paris, 1972.

[BAE 02] T. A. BAERAKY
"Microwave measurements of the dielectric properties of silicon carbide at high temperature"
Egyptian Journal of Solids, vol. 25, pp. 263-273, 2002.

[BRO 04] C. BROSSEAU, and P. TALBOT
"Effective permittivity of nanocomposite Powder Compacts"
IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, vol. 11, n° 5, pp 819-832, 2004.

[CHE 05] P. CHEN, R.X. WU, T. ZHAO, F. YANG, and J.Q. XIAO
"Complex permittivity and permeability of metallic magnetic granular composites at microwave frequencies"
Journal of Physics D: Applied Physics, vol. 38, pp 2302-2305, 2005.

[GAL 10] T. GALEK, K. PORATH, E. BURKEL and U. VAN. RIENEN
"Extraction of effective permittivity and permeability of metallic powders in the microwave range"
Modelling and simulation in materials science and engineering, 2010.

[HAD 07] K. HADDADI
"Systèmes a base de six-port en gammes micro-onde et millimétrique et techniques de calibrage associées: application à l'analyse de réseaux, aux télécommunications et contrôle non destructif "
Thèse de Docteur de l'université, Lille, Décembre 2007.

[HAD 09] K. HADDADI, MM. WANG, O. BENZAIM, D. GLAY and T. LASRI
"Contactless microwave technique based on a spread-loss model for dielectric materials characterization"
IEEE Microwave and Wireless Components Letters, vol. 19, n°1, pp 33-35, January 2009.

[LU 10] Q. LU, L. DUBOIS, E. PALECZNY, J-F. LEGIER, P-Y. CRESSON, and T. LASRI,
"New Method for Dielectric Properties Characterization of Powder Materials: Application to Silicon Carbide"
40th European Microwave Week, CNIT, Paris, France, 26 Sept-1 Oct, 2010.

[LU 11] Q. LU, L. DUBOIS, E. PALECZNY, J-F. LEGIER, P-Y. CRESSON, and T. LASRI,
"Détermination large bande de la permittivité diélectrique de matériaux pulvérulents"
17ièmes Journées Nationales Micro-ondes (JNM 2011), Brest, Mai 2011.

[MUZ 97] F.J. MUZZIO, P. ROBINSON, C. WIGHTMAN, and D. BRONE
"Sampling practices in powder blending"
Int. J. Pharm., Vol. 155, pp. 153–178, 1997.

[POU 91] M. POUX, P. FAYOLLE, J. BERTRAND, D. BRIDOUX and J. BOUSQUETM
"Powder mixing: some practical rules applied to agitated systems"
Powder Technology, Vol. 68, pp. 213–234, 1991.

[RF] The RF Cafe's website.
http://www.rfcafe.com/references/electrical/dielectric-constants-strengths.htm

[RHO 90] M.J. RHODES
"Principles of Powder Technology"
Chichester, England, John Wiley and Sons, 1990.

[ROG 99] Roger Corporation
RT/Duroid®5880 Glass Microfiber Reinforced Polytetraf oethylene Composite
http://psas.pdx.edu/AntennaConstructionLV2/RT-Duroid_5880_Properties.pdf

[SIN 03] V. SINGH, A.R. KULKARNI, T.R. MOHAN
"Dielectric properties of Aluminium-Epoxy composites"
Journal of Applied Polymer Science, vol. 90, pp 3602-3608, 2003.

Conclusion générale et perspectives

Le chauffage par micro-ondes de matériaux composites présente de gros avantages par rapport aux techniques de chauffage traditionnelles. En particulier, il permet l'obtention de pièces fortement agglomérées présentant de meilleures propriétés mécaniques. Cependant, l'un des problèmes dans le cas de l'utilisation des micro-ondes réside dans le risque d'emballement thermique. Ainsi, une collaboration entre l'EMPA et l'IEMN a été entreprise dans le but d'étudier le contrôle de température par radiométrie micro-onde. Des essais de suivis de trajectoires thermiques de nombreux matériaux sous forme pulvérulente (diélectriques, semi-conducteurs, métaux) ont été réalisés en utilisant un dispositif radiométrique fonctionnant autour de 3,3 GHz implanté sur un four micro-onde instrumenté (de type industriel). Nous avons constaté au cours des divers essais réalisés que les matériaux pulvérulents réagissent différemment en fonction de leur nature lorsqu'ils sont soumis à un rayonnement micro-onde. Le paramètre qui caractérise l'interaction 'essentiellement' avec le champ électrique (en ce qui concerne les matériaux testés) est la permittivité diélectrique. De même la trajectoire thermique obtenue par radiométrie micro-onde va non seulement dépendre de la température réelle atteinte au sein du matériau mais aussi de son émissivité liée également à la permittivité diélectrique. Les poudres que nous désirons caractériser sont destinées à la réalisation de matériaux composites à partir d'une opération de frittage par micro-ondes. Aussi, le but à long terme consiste à développer une méthode de détermination large bande de la permittivité diélectrique de matériaux pulvérulents.

Au travers d'un bref état de l'art, nous avons d'abord présenté les principales techniques de mesure de permittivités diélectriques de matériaux pulvérulents puis nous avons mis en œuvre trois méthodes de caractérisation disponibles à l'IEMN. Nous avons mis en avant deux verrous de ces techniques que sont d'une part l'exploitation sur une plus large gamme de fréquences, et d'autre part les limitations de l'extraction de la permittivité : la rapidité de calcul, le volume de matériaux en poudre... Afin de palier au problème de détermination de la permittivité diélectrique sur une large gamme de fréquences, des travaux relatifs au développement d'une méthode de caractérisation basée sur la mesure des paramètres S de deux lignes microruban ont été décrits. Celle-ci est principalement utilisée pour la caractérisation de matériaux pulvérulents utilisés lors des opérations de frittage par micro-ondes.

Cette technique comporte deux étapes principales :

- Détermination de la constante de propagation par une méthode habile : méthode Bianco-Parodi pour extraire la constante de propagation d'un tronçon de ligne basée sur la mesure des paramètres S de deux lignes microruban. En s'inspirant de cette méthode et des travaux de E. Paleczny et I. Huynen, nous avons montré la possibilité d'extraire la valeur de la constante de propagation du tronçon de ligne de longueur ΔL chargé par une certaine quantité d'un matériau sous test.

- Détermination de la permittivité diélectrique : nous avons développé un code de calcul basé sur l'Analyse dans le Domaine Spectral (SDA) de la ligne microruban sur laquelle est déposée la couche de matériau dont nous recherchons la valeur de la permittivité dans le plan complexe. La permittivité complexe de la couche de poudre constitue alors la valeur propre à rechercher connaissant la constante de propagation du mode fondamental de la structure préalablement déterminée expérimentalement à partir de la méthode de Bianco-Parodi. Le code de calcul réalisé permet de déterminer la permittivité d'une couche en quelques secondes par point de fréquence.

Nous avons validé cette méthode par des simulations électromagnétiques à l'aide du simulateur électromagnétique 3D HFSS. Les comparaisons ont été effectuées pour trois configurations: lignes microrubans à vide sans porte-échantillon ; lignes microrubans à vide avec porte-échantillon ; lignes microrubans avec porte-échantillon contenant un matériau. Nous avons pu ainsi vérifier que la présence du porte-échantillon ne perturbe pas les résultats. Les différents relevés ont montré que le code de calcul basé sur la SDA donne des résultats quasiment similaires à ceux obtenus avec le logiciel HFSS.

Les essais de mesure de permittivité diélectrique en utilisant la méthode microruban ont été réalisés dans deux bandes fréquences : 30 MHz-6GHz (Rohde&Schwarz ZVL6) et 50MHz-18GHz (Agilent HP 8720C). Cette étude a permis de valider la possibilité de caractérisation diélectrique large bande de SiC pulvérulent, d'Al_2O_3 pulvérulent et d'Al pulvérulent, mais également de mélanges de poudres SiC/Al_2O_3, SiC/Al et aussi de matériaux solides (substrat et plexiglass). Notons qu'une autre technique de caractérisation diélectrique sans contact 'la méthode en espace libre' a également été mise en oeuvre. Les résultats relatifs à la poudre SiC présentés précédemment ont ainsi été comparés à ceux obtenus en utilisant

cette technique. Nous observons globalement un bon accord sur les permittivités déterminées à partir des deux techniques. Ces mesures nous ont ainsi permis de conforter les résultats relatifs à la poudre SiC obtenus avec l'utilisation des cellules en technologie microruban.

Dans le cas des études réalisées à partir de structures microruban, pour les composites pulvérulents SiC/Al_2O_3, SiC/Al nous trouvons que les valeurs des caractéristiques diélectriques des différents mélanges sont situées entre celles de la poudre SiC pure et celles de la poudre Al_2O_3 ou Al pure. Pour les mélanges contenant de la poudre d'aluminium, nous observons les mêmes effets que lors de l'introduction de poudre d'alumine à savoir une diminution de la valeur de la permittivité et du facteur de pertes lorsque la proportion de grains d'aluminium augmente. Toutefois au-delà de 11 GHz la permittivité ε'_r des mélanges composites semble suivre celle de la poudre SiC, les grains d'aluminium semblent ne plus avoir d'influence. Est-ce lié à la taille des grains ? Apparaît-il des interactions entres les grains métalliques et les grains de SiC qui ne sont pas prises en compte dans le modèle SDA ? Pour répondre à ces questions, nous envisageons donc pour le futur de caractériser ce type de composites à l'aide d'une structure de propagation différente afin de vérifier si nous observons les mêmes phénomènes.

Pour l'étude de l'influence de la taille des grains, et dans le but de caractériser des poudres nanométriques, nous proposons le développement de structures coplanaires.

De manière plus générale, des études en fonction de la température, de la taille des grains (jusqu'à quelques nanomètres), du degré de compaction, ainsi que de la nature des mélanges pourraient être envisagées. Une modélisation de l'interaction des micro-ondes avec les matériaux pulvérulents métalliques (ou contenant une fraction de particules métalliques) en considérant les dimensions micrométriques voire nanométriques ainsi que l'aspect aléatoire des arrangements des grains serait un outil précieux pour la poursuite de ces travaux.

Enfin, l'objectif final est la mise à disposition d'un démonstrateur portable pour la détermination des grandeurs diélectriques des matériaux sur une large bande de fréquences dont la vocation est de sortir des laboratoires pour être mis en œuvre sur les sites d'opérations.

RESUME en français :

L'industrie a besoin de nouveaux matériaux dont la complexité et la fonctionnalité sont de plus en plus grandes et nécessite l'élaboration de structures composites. Afin d'optimiser leur élaboration, il est important d'évaluer leurs propriétés physiques en particulier du point de vue électromagnétique à travers la notion de permittivité électrique et perméabilité magnétique.

La nature des matériaux de base utilisés pour la conception de ces composites, la taille des grains, leur forme, l'arrangement, le degré de compaction ainsi que la procédure de frittage utilisée vont en effet conditionner les propriétés du matériau final (solidité, état de surface, conductivité, densité,..). Ces paramètres vont influer en particulier sur la permittivité diélectrique et peu d'informations sont actuellement disponibles à ce sujet. Pourtant elles présentent un vif intérêt pour de nombreux secteurs industriels (céramiques, polymères, industrie du verre,…).

Dans ce travail de thèse, nous présentons les cellules de mesure réalisées à partir de lignes microruban. La méthode de caractérisation, les simulations, le mode opératoire et des résultats relatifs à des matériaux solides et pulvérulents sont décrits. Les travaux menés s'inscrivent dans la volonté de proposer un démonstrateur intégrant les ressources matérielles et logicielles.

Les potentialités de cette méthode sont illustrées au travers de la mise en œuvre de bancs de mesure permettant d'effectuer des relevés sur une large bande de fréquence (50MHz à 18GHz) de la constante diélectrique de matériaux pulvérulents utilisés lors des opérations de frittage par micro-ondes. Du point de vue expérimental, cette technique de caractérisation diélectrique, simple et rapide, est utilisable sur tous types d'échantillons (solides, pulvérulents, liquides,…). Elle peut également être utilisée pour la caractérisation de couches minces.

MOTS-CLES :
Permittivité diélectrique, matériaux pulvérulents, caractérisation micro-ondes, frittage micro-ondes, modélisation électromagnétique, ligne microruban

TITRE en anglais :
Broadband microwave dielectric characterization of powder materials

RESUME en anglais :

New materials of composite structures with high complexity, functionality and flexibility are more and more required for industry. In order to optimize their fabrication, it is important to evaluate their physical properties in particular in terms of dielectric permittivity and magnetic permeability.

The exact knowledge of material permittivity is essential in the study of physical phenomena that govern interactions between electromagnetic waves and the tested material. But, a lack of papers currently dealing with the field of powder materials characterization is observed.

In this work, we propose a reflection/transmission method, which has the significant advantage of being operable in a wide frequency band. The theory, the simulation tests and the measurement cells using microstrip lines for broad-band dielectric characterization of solid materials as well as for powder materials are presented. The work performed provides a demonstrator integrating hardware and software resources for materials characterization.

Compared to the data found in the literature, our study provides dielectric permittivity values in a large frequency band. From the experimental point of view, our measurements method is fast and easy to implement. The measurement process repeatability has been checked and has shown a high level of confidence. This characterization method that is valid for a very large class of powder materials is also well suited for solid materials (thick or thin).

KEYWORDS :
Dielectric permittivity, powder materials, microwave characterization, sintering, electromagnetic modeling, microstrip line

DISCIPLINE :
MICRO ET NANO TECHNOLOGIES, ACOUSTIQUE ET TELECOMMUNICATIONS

ADRESSE : Institut d'Electronique de Microélectronique et de Nanotechnologie, Avenue Poincaré, BP 60069, Cité Scientifique, 59652 Villeneuve d'Ascq.