

## SPECTRE DIELECTRIQUE DU COMPOSE $Ba_{0,86}Sr_{0,14}TiO_3$ POLYCRISTALLIN

H. ZANGAR et M.S. HAOUAT

Faculté des Sciences - Département de Physique

Campus Universitaire - Belvédère - Tunis

RESUME : La permittivité complexe du composé  $Ba_{0,86}Sr_{0,14}TiO_3$  polycristallin a été déterminée en fonction de la fréquence dans la bande 0,01 - 5 GHz. Un phénomène d'absorption-dispersion a été mis en évidence à 1,9 GHz et sommairement interprété.

### I - INTRODUCTION :

Les propriétés diélectriques des composés ferro-électriques à structure pérovskite simple tels que  $BaTiO_3$  ;  $SrTiO_3$  et certains composés mixtes du type  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  ont fait l'objet de plusieurs études [1 ; 2 ; 3 ; 4 ; 5]. Ainsi  $BaTiO_3$  se prête particulièrement bien, tant aux investigations expérimentales qu'aux interprétations théoriques et joue un rôle fondamental dans la connaissance de l'état solide. Par ailleurs, ses propriétés ferroélectriques lui confèrent un grand intérêt pratique et il entre dans la fabrication de nombreux composants électroniques frittés (condensateurs, céramiques ultrasonores, etc. . . [1]). Le travail que nous nous proposons de communiquer est une contribution à ces recherches. Il nous a paru intéressant d'établir le spectre diélectrique du composé mixte  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  ( $x = 0,86$ ) polycristallin, pour une gamme de fréquence couvrant le domaine 0,01 - 5 GHz. Nous avons déduit les termes de dispersion  $\epsilon' = f_1(\omega)$  ; d'absorption  $\epsilon'' = f_2(\omega)$  et de pertes  $tg \delta = f_3(\omega)$  à température ambiante.

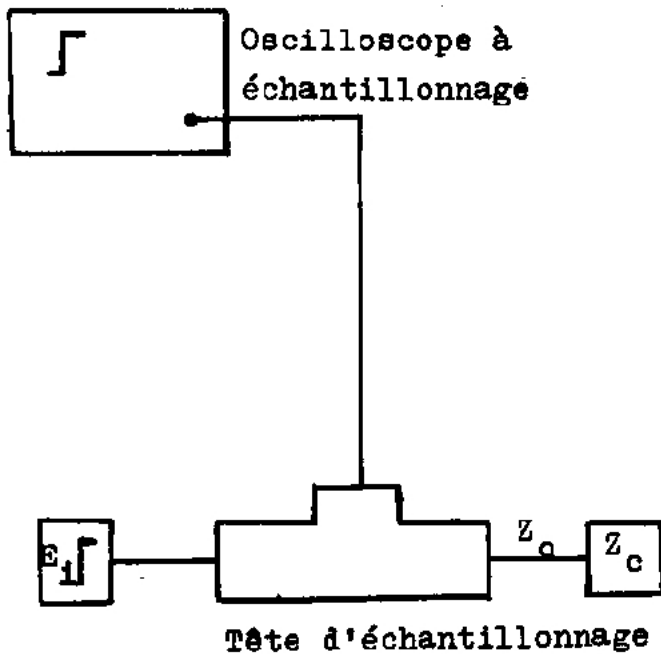
### II - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

Notre étude a porté sur la substance  $Ba_{0,86}Sr_{0,14}TiO_3$  frittée. Pour obtenir cette céramique nous avons utilisé le même composé, sous forme de poudre, que nous avons broyé et passé au tamis, afin d'obtenir des grains de diamètre inférieur à 50 $\mu$ . La finesse des grains augmente la qualité de la céramique en diminuant sa porosité.

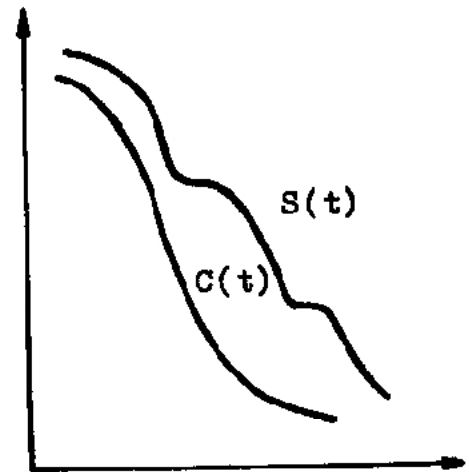
La poudre est mélangée à un liant très fluide au collodion puis séchée à nouveau. La compression est effectuée dans une matrice de diamètre 7 mm ; (ce qui convient à notre ligne de mesure), avec une pression de l'ordre de  $4 \times 10^7$  Pascal. Le frittage est obtenu par chauffage à 1400°C pendant 1h30mn. L'échantillon fritté est de couleur foncé, et par recuit à 1000°C il devient jaune paille. Afin de réaliser nos mesures sur une ligne coaxiale notre échantillon a été percé suivant un diamètre de 3,05 mm à l'aide d'une perceuse ultrason.

Pour couvrir la bande de fréquence 0,01 - 5 GHz nous avons utilisé la technique de la réflectométrie et spectroscopie temporelle (T.D.R. ou T.D.S time domain reflectometry spectroscopy) [6, 7, 8, 9, 10]. Les mesures ont été effectuées sur le montage de l'équipe du Docteur A.M. BOTTREAU [11] que nous remercions vivement. Ainsi le réflectomètre en domaine temporel peut être schématisé comme indiqué sur la figure ci-après : [12]

Les techniques temporelles consistent à analyser la réflexion d'un échelon de tension envoyé par un générateur sur une ligne coaxiale d'impédance caractéristique  $Z_0$ . Si on ferme la ligne sur une charge  $Z_c$  le coefficient de réflexion est :  $\Gamma = \frac{Z_c - Z_0}{Z_c + Z_0}$  Le signal réfléchi se superpose au signal incident ;



- Schéma du Réflectomètre



- Signal Réfléchi  
 S(t) : signal relatif à la charge.  
 C(t) : signal relatif à l'étalon.

la tête d'échantillonnage permet l'analyse de ce phénomène. Ainsi le signal obtenu est traité soit directement dans le domaine du temps, soit après transformation de Fourier dans le domaine des fréquences [13].

On montre que le signal résultant S(t) est donné par le produit de convolution du coefficient de réflexion  $\rho(t)$  par la fonction d'appareil A(t) :

$$S(t) = \rho(t) \otimes A(t)$$

Pour déterminer A(t) nous remplaçons la charge par un court-circuit qui joue le rôle d'une charge étalon, car sa réponse en domaine fréquentiel est  $\rho(\omega) = -1$ .

$$C(t) = -A(t) \otimes \delta(t=0)$$

En utilisant les propriétés des transformées de Fourier :

$$S(t) = A(t) \otimes \rho(t) \xrightarrow{TF} S(\omega) = A(\omega) \cdot \rho(\omega)$$

$$C(t) = -A(t) \otimes \delta(t=0) \xrightarrow{TF} C(\omega) = -A(\omega)$$

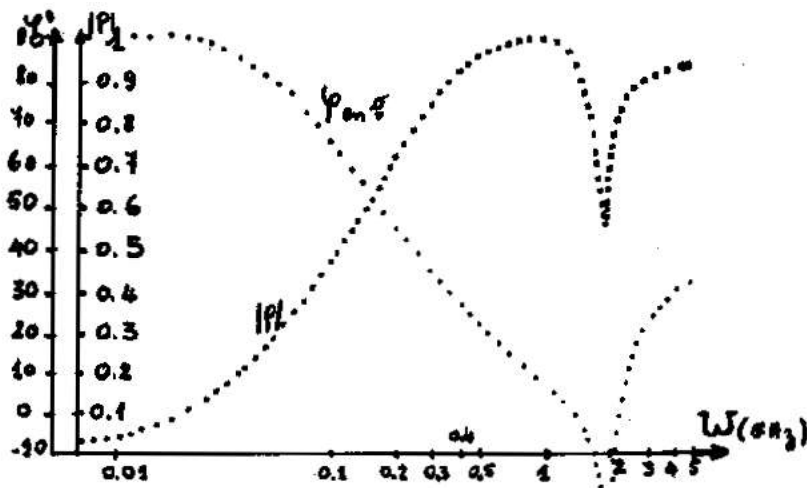
On tire :

$$\rho(\omega) = -\frac{S(\omega)}{C(\omega)} \quad (1)$$

La formule (1) est très générale ; elle peut être appliquée sous diverses conditions expérimentales :

III - CONDITIONS ET RESULTATS DES MESURES :

Notre substance ferroélectrique se trouve placée dans une ligne coaxiale, soumise à une propagation T. E. M des ondes hyperfréquences. Le coefficient de propagation d'un tel diélectrique  $\gamma = \alpha + j\beta$  peut s'exprimer par  $\gamma = \gamma_0 \sqrt{\epsilon/\mu}$  (2) avec  $\gamma_0 = j \beta_0 = j \frac{\omega}{c} \sqrt{\mu_0 \epsilon_0}$ . Nous avons relevé un nombre important de points expérimentaux du coefficient de réflexion en fonction de la fréquence :



$\rho$  : module du coefficient de réflexion,  $\varphi$  : Phase.  
Le coefficient de réflexion à l'interface est donné par

$$\rho(\omega) = \frac{1 - \sqrt{\epsilon/\mu}}{1 + \sqrt{\epsilon/\mu}} = \frac{\sqrt{\mu} - \sqrt{\epsilon}}{\sqrt{\mu} + \sqrt{\epsilon}}$$

pour notre échantillon  $\mu = 1$  (comme pour un diélectrique usuel), il vient alors  $\rho(\omega) = \frac{1 - \sqrt{\epsilon}}{1 + \sqrt{\epsilon}}$  (3).

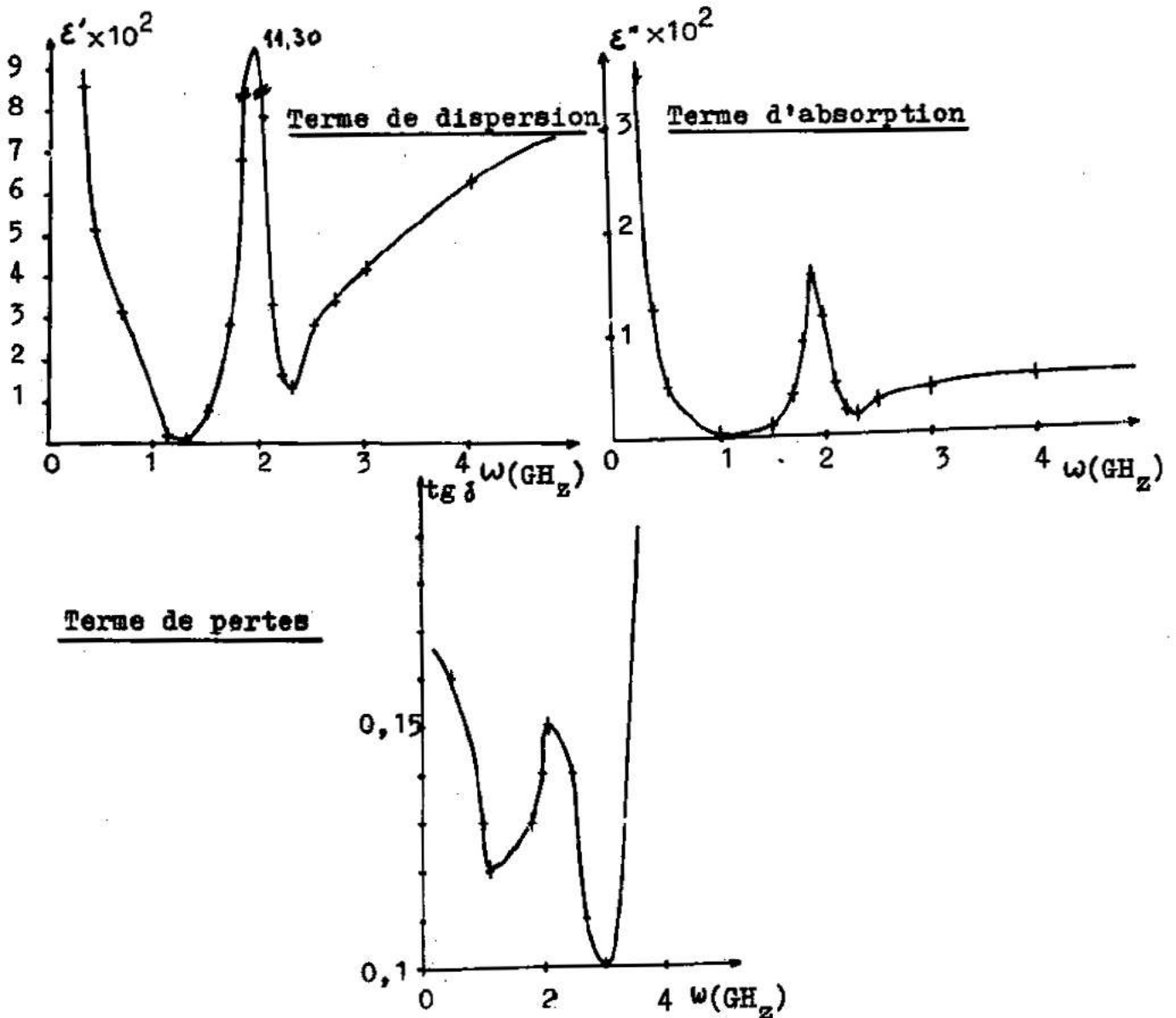
A partir des relations (2) et (3) nous avons transformé les relations qui tiennent compte des réflexions multiples internes à notre matériau pour rendre opérationnelle en TDS la détermination de  $\epsilon = \epsilon' - j\epsilon''$ . Notre échantillon étant placé dans une ligne adaptée, le pouvoir réflecteur est :

$$R_A = \frac{\rho(1 - \exp(-2\gamma e))}{1 - \rho^2 \exp(-2\gamma e)} \quad (4) \quad e = \text{épaisseur de l'échantillon} = 8,09 \text{ mm}$$

et son coefficient de transmission est :

$$T = \exp(-\gamma e) \times \frac{1 - \rho^2}{1 - \rho^2 \exp(-2\gamma e)} \quad (5)$$

Un calcul numérique effectué à l'aide des relations 2, 3, 4 et 5, et traité sur l'ordinateur du centre de calcul de la Faculté de Tunis a conduit à la détermination de  $\epsilon'$ ,  $\epsilon''$  et  $\tan \delta$  en fonction de  $\omega$  à température ambiante.



**Discussion :**

Il est à noter que ce travail a été effectué sur un matériau polycristallin dont le comportement macroscopique est isotrope, en conséquence de quoi le tenseur de permittivité se réduit à un scalaire. Signalons d'autre part que la température à laquelle nous avons travaillé est inférieure à la température critique ( $T_c \neq 80^\circ\text{C}$ ) ce qui place le composé dans la phase ferroélectrique. L'allure du spectre permet de constater l'apparition d'un phénomène d'absorption-dispersion à 1,9 GHz. En première approximation, on peut considérer que ce phénomène provient de mouvements dans les parois de domaines ferroélectriques.

A la fréquence 1,9 GHz, la partie réelle  $\epsilon'$  et la partie imaginaire  $\epsilon''$  de la constante diélectrique présentent chacune un maximum :  $\epsilon'_{\text{max}} = 11,3$  ;  $\epsilon''_{\text{Max}} = 1,5$ . La tangente de l'angle de perte à la même fréquence est de l'ordre de 0,1. Ces valeurs traduisent une amélioration des propriétés diélectriques par rapport à celles du titanate de Barium [14]. Cette amélioration est due à l'addition du strontium au titanate de Barium [15].

#### IV - CONCLUSION :

Cette étude a permis de déterminer le spectre diélectrique d'un composé mixte polycristallin de  $Ba_x Sr_{1-x} TiO_3$  ( $x = 0,86$ ). Jusqu'à présent la plupart des travaux ont porté sur le spectre en fréquence de composés simples tels que  $Ba TiO_3$  ou  $Sr TiO_3$  et sur l'étude en température de composés simples ou mixtes, d'où l'originalité de l'étude que nous avons entreprise.

L'intérêt de ce travail réside aussi dans le fait que les applications technologiques des polycristallins frittés connaissent un développement de plus en plus considérable [16].

Citons en particulier, la possibilité d'utilisation dans les lignes à retard et les filtres [17].

#### B I B L I O G R A P H I E

- 1 - H. SACHSE Les ferroélectriques DUNOD 1958.
- 2 - F. JONA et G. SHIRANE Ferroelectric crystals Pergamon press 1962.
- 3 - G. RAPPRECHT and RO BELL Phys. Rev. Vol 135, N° 3A, 3 August 1962 p A 748.
- 4 - R. BLINC and B. ZEKI Soft modes in ferro and antiferroelectrics. Editor E.P. Wohlfarth North-Holland/American Elsevier p 189.
- 5 - A. TURIK and SHEVCHENKO, Phys. Stat. sol (b) 95, 585 (1979).
- 6 - H. FELNER-FELDESS, J. Phys. Chem. ; 73 ; 616 (1969). H. FELNER-FELDESS, E.F. BERNETT J. Phys. Chem. ; 74, 1962 (1970).
- 7 - M.J.C. VANGEMPRT Thèse, Leide (1972) ; Philips Res. Rep 28, 230 (1973).
- 8 - A.M. NICHOLSON, G.F. ROSS, I.E.E.E. Trans. Instr. Meas, IM 19, 317 (1970).
- 9 - A. SUGGETT High Frequency Dielectric Measurement, Edited by J. CHAMBERLAIN and G.W. CHANTRY, IPC Science and Technology Press, London (1973). A. SUGGETT, H.W. LOEB, G.M. YOUNG, P.A. QUICKENDEN, Phys. Chem. ; 75, 1155 (1971).
- 10 - D.M. OLIVER, Hewlett Packard J. 16 (1964).
- 11 - A.M. BOTTREAU Laboratoire de Spectrométrie Temporelle et Fréquentielle Université de Bordeaux I - Talence - France.
- 12 - J.L. MIANE Thèse d'Etat Bordeaux (1978).
- 13 - A.M. BOTTREAU and T.K. BOSE, Acte colloque, optique Hertzienne et Diélectriques p 220, Lille ; Juin (1979).
- 14 - P. SALLIO, Thèse de troisième cycle RENNE (1974).

15 - SMOLENSKIJ, G.A. ROZGACHEVKI - Zh Tekh Fiz. SSSR 24, 1954, 1751.

16 - F. MICHERON Rev. Tech. Thomson - CSF Vol 4 n° 1 Mars 1972.

17 - M. YAMANISHI et K. YOSHIDA. Proceedings of the second conference on solid state devices, Tokyo 1970.