Cellule de mesure des propriétés diélectriques de solides à haute température. Application a l'alumine monocristalline

M. Foos, G. Matteudi, F. Davoine

► To cite this version:

M. Foos, G. Matteudi, F. Davoine. Cellule de mesure des propriétés diélectriques de solides à haute température. Application a l'alumine monocristalline. *Revue de Physique Appliquée*, 1972, 7 (1), pp.69-72. 10.1051/rphysap:019720070106900 . jpa-00243599

HAL Id: jpa-00243599

<https://hal.science/jpa-00243599>

Submitted on 1 Jan 1972

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

CELLULE DE MESURE DES PROPRIÉTÉS DIÉLECTRIQUES DE SOLIDES A HAUTE TEMPÉRATURE APPLICATION A L'ALUMINE MONOCRISTALLINE

M. FOOS, G. MATTEUDI, F. DAVOINE

Laboratoire d'Etudes Physiques des Matériaux à Hautes Températures, Ensmis, Nancy-54

(Reçu le 5 janvier 1972)

Résumé. — Nous avons réalisé un dispositif de mesure des propriétés diélectriques de matériaux isolants réfractaires permettant de travailler, sous vide, dans un domaine de température compris entre 0 et 1 100 °C. La reproductibilité des résultats obtenus est bonne. Nous donnons une description complète de la cellule et des éléments constitutifs. Comme application, les propriétés diélectriques de l'alumine monocristalline ont été étudiées jusqu'à 1 000 °C, pour des fréquences de 1 kHz, 10 kHz et 100 kHz.

Abstract. — We have developed a system for measuring dielectrical properties of refractory isolating materials which can be used in a vacuum, for a range of temperature from 0 °C to 1 100 °C. The reproductibility of the results is guaranteed under the same set of experimental conditions. We give a complete description of the cell and its constituents.

The dielectrical properties of monocristalline alumina have been studied up to a temperature of 1 000 °C for frequencies of 1 kHz, 10 kHz and 100 kHz.

I. Introduction. — Les dispositifs généralement décrits dans la littérature permettent d'effectuer des mesures de propriétés diélectriques entre la température ambiante et 700 °C [1] à [7]. Il s'avère cependant que, les phénomènes de dilatation ont une grande influence et perturbent les mesures, notamment dans le cas où un anneau de garde est utilisé pour améliorer la précision.

Nous avons réalisé une cellule assurant la reproductibilité des résultats pour des températures supérieures à 1 000 °C. Nous la décrirons, dans cette étude, en insistant sur le rôle de chacun des éléments constitutifs. Après avoir déterminé la capacité parasite introduite lors de l'expérimentation, nous avons examiné la variation des propriétés diélectriques de l'alumine monocristalline en fonction de la température. Nous rapportons les résultats obtenus, dans le cas de l'alumine non dopée, pour des fréquences de 1, 10 et 100 kHz et dans le domaine de température (0-1 100 °C).

II. Dispositif expérimental. — II.1 PRINCIPE DE LA MESURE. — La constante diélectrique d'une substance est déterminée à partir du rapport de la mesure de la capacité d'un condensateur réalisé avec l'échantillon étudié, au calcul de la capacité du condensateur à vide équivalent.

Pour éviter les perturbations liées aux effets de bord et à la capacité parasite existant entre l'électrode

de mesure et la terre, une des armatures du condensateur est gardée [8]. Les armatures utilisées sont circulaires et concentriques. La valeur du diamètre effectif de l'armature gardée (Fig. 1) est obtenue à partir des relations suivantes [8], [9] :

$$d = 2r$$

$$r = r_1 + \frac{g}{2} - \delta$$

$$\delta = e \cdot 1,466 \log_{10} \operatorname{ch} 0,785 8 \frac{g}{e}$$

$$g = r_2 - r_1.$$

La capacité à vide C_0 , exprimée en picofarads, pour des longueurs exprimées en centimètres, est donnée par :

$$C_0 = 0,069 54 \frac{d^2}{e} \text{ pF (cm) .}$$

Les mesures de la capacité C et de la tangente de l'angle de perte δ , sont effectuées par une méthode de substitution, en utilisant un pont de Schering équipé d'un circuit d'anneau de garde.

II.2 PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS. — Nous nous sommes intéressés aux propriétés diélectriques des monocristaux de saphir et de rubis préparés synthé-

FIG. 1. — Représentation des armatures du condensateur. A_1 = électrode gardée ; A_2 = électrode de mesure ; A_3 = anneau de garde ; r_1 = rayon de l'électrode gardée ; r_2 = rayon intérieur de l'anneau de garde ; e = distance séparant les électrodes.

tiquement (*). Les échantillons sont des disques d'environ 1 mm d'épaisseur et de 20 mm de diamètre. Ils sont taillés parallèlement à l'axe optique ; leur densité mesurée est de 4,0.

Après un nettoyage préalable à l'eau distillée et à l'alcool, les échantillons sont passés à l'acétone puis étuvés pendant 4 heures à 150 °C. Nous déposons ensuite les armatures métalliques par évaporation sous vide. L'électrode gardée et l'anneau de garde sont déposés simultanément. Différents métaux, tels que le cuivre, l'argent, l'aluminium et le chrome, ont été utilisés. Ce dernier métal nous a permis d'effectuer les mesures à haute température.

II.3 DISPOSITIF DE MESURE. — La cellule comporte principalement le support d'échantillon, la tête et les conducteurs ; l'ensemble est détaillé sur la figure 2.

II.3.1 Le support de l'échantillon est composé de l'électrode gardée E_{lg} de l'anneau de garde A_g et de l'embase E_{mb} , en acier inoxydable. L'anneau de garde est isolé électriquement de l'électrode gardée et de l'embase par deux perles annulaires en alumine frittée. Les surfaces de contact avec l'échantillon E_c sont obtenues par rectifiage après assemblage et blocage mécanique.

II.3.2 Les conducteurs E_a et E_t jouent en même temps le rôle d'arrivée de courant et d'écran de blindage électrostatique. Ce sont des tubes, en acier inoxydable, coaxiaux. La connexion centrale E_m est une tige filetée sur laquelle se trouvent placés :

- un écran thermique E_{th} en acier, isolé de E_m par une perle en alumine frittée,
- deux systèmes de centrage (non représentés),
- un ressort situé dans la zone refroidie ; son rôle est de maintenir en contact l'électrode de mesure E_m et l'échantillon, quelle que soit la température.

(*) Nous remercions la Société Baikovski qui a bien voulu nous fournir gracieusement les échantillons.

II.3.3 La tête de cellule a deux fonctions :

- isoler chacun des conducteurs l'un par rapport à l'autre,
- être étanche au vide.

Un dispositif de refroidissement protège, contre les échauffements thermiques, les isolants I_p et les joints toriques nécessaires à l'assemblage.

L'ensemble ainsi réalisé supporte d'importantes variations de température sans que les phénomènes de dilatation influent sur les mesures. Pour des cycles thermiques successifs, les résultats obtenus sont reproductibles.

III. Résultats expérimentaux. — La cellule, précédemment décrite, est montée à l'intérieur d'une enceinte en mullite, elle-même reliée à un groupe de pompage classique (5×10^{-6} torr). Un four ADAMEL réglé en température permet d'atteindre 1 100 °C.

Nous avons employé, pour le repérage des températures, un thermocouple chromel-alumel gainé, de faible diamètre (0,5 mm), disposé comme l'indique la figure 2. Des colliers en acier, soudés par point,

FIG. 2. — Vue d'ensemble de la cellule de mesure.

le maintiennent en contact avec le conducteur E_a . La force électromotrice du thermocouple est mesurée avec un pont AOIP.

Les mesures des capacités sont effectuées à l'aide d'un pont de Schering Type 716-C, avec circuit d'anneau de garde Type 716-P 4, de la « General Radio Compagny ». L'indicateur de zéro est un oscilloscope CRC Type OCT 465 (sensibilité 1 mV/cm).

III.1 ETALONNAGE DE LA CELLULE DE MESURE. — La capacité réelle, C_r , du condensateur formé sur l'échantillon est donnée par la relation :

$$C_r = k' \frac{\epsilon_0 S}{e}.$$

Si la cellule de mesure présente une capacité parasite, C_p , la capacité mesurée, C_m , doit être de la forme :

$$C_m = k' \frac{\epsilon_0 S}{e} + C_p.$$

Pour vérifier cette hypothèse et déterminer la valeur de C_p , nous avons réalisé 3 condensateurs d'épaisseurs différentes, sur des pastilles d'alumine taillées dans le même barreau. Après avoir fait la correction relative à la présence de l'anneau de garde, les aires S des armatures gardées sont équivalentes.

A la température ambiante (20 °C), pour chaque valeur de la fréquence (10³ Hz, 10⁴ Hz et 10⁵ Hz), nous mesurons la capacité C_m de chacun des condensateurs. La variation de C_m en fonction de l'inverse de l'épaisseur est une droite qui permet de déterminer C_p par extrapolation, sa pente correspond à la valeur de k' . La figure 3 présente les résultats obtenus à 1 000 Hz. Les résultats sont identiques pour d'autres fréquences :

$$C_p = (1,6 \pm 0,1) \text{ pF}$$

$$k' = 8,6 \pm 0,6.$$

III.2 MESURES DIÉLECTRIQUES A HAUTE TEMPÉRATURE. — Nous avons étudié aux fréquences de 1 kHz, 10 kHz et 100 kHz, l'évolution en fonction de la température de la constante diélectrique relative k' de l'alumine pure. Toutes les mesures ont été effectuées en appliquant un champ électrique perpendiculaire à l'axe optique du cristal. Les résultats sont présentés sur le tableau I et nous avons tracé, sur la figure 4 la courbe $k' = f(T)$.

La variation de k' en fonction de la température n'est pas linéaire. Des mesures identiques effectuées sur des échantillons d'alumine dopée à 350, 500 et

FIG. 3. — Etalonnage de la cellule : courbe $C_m = f(1/e)$ relative à l'alumine. $T = 20$ °C. $F = 1\,000$ Hz.

FIG. 4. — Variation de la constante diélectrique relative de l'alumine monocristalline, en fonction de la température, pour des fréquences de 10³ Hz, 10⁴ Hz et 10⁵ Hz. Le champ électrique appliqué est perpendiculaire à l'axe optique du cristal.

FIG. 5. — Evolution de $\text{tg } \delta$ en fonction de la température, $F = 10^4$ Hz.

TABLEAU I

Variation de la constante diélectrique relative

F	T °C	0	100	200	300	400	500	600	700	800	900	1 000
1 kHz	k'	8,6	8,8	9,0	9,3	9,5	9,7	9,9				
10 kHz	k'	8,6	8,8	9,0	9,2	9,4	9,6	9,9	10,3	10,8	11,7	13,2
100 kHz	k'	8,6	8,8	8,9	9,2	9,3	9,5	9,7	9,9	10,3	10,9	12,3

750 ppm de chrome C_r^{3+} conduisent à des résultats analogues : le taux de dopage en chrome n'influe pas sur la valeur de la constante diélectrique relative dans les domaines de température et de fréquence explorés.

FIG. 6. — Variation de la conductivité σ en fonction de $1/T$. Les courbes ①, ② et ③ correspondent à nos résultats, la courbe S à ceux de Snow, les autres sont rapportées par Cohen : (A) Arizumi et Tani, (B) Schul'man, (C) Wartenberg et Prophet, (D) Wachtman et Maxwell, (E) Heldt et Haase, (F) Hensler et Henry, (G) Hartmann, (H-L) Bogoroditzky et Katz, (M) Kohl, (N) Rochow, (O) Morgan, (●, ○, △) Geller. Les traits pleins correspondent aux mesures sur des cristaux polycristallins, les pointillés sur des monocristaux d'alumine.

L'évolution de la tangente de l'angle de perte δ , à la fréquence de 10 kHz, est donnée sur la figure 5.

La conductivité σ est déduite des valeurs de k' et de $\text{tg } \delta$:

$$\sigma = \frac{fk''}{1,8 \times 10^{12}} \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$$

où : f est la fréquence de mesure,

k'' est le facteur de perte tel que $\text{tg } \delta = k''/k'$.

La variation de la conductivité σ en fonction de l'inverse de la température est représentée, en coordonnées semi-logarithmiques, sur la figure 6. Sur le même diagramme nous avons tracé divers résultats rapportés par Cohen [10] et par Snow [11].

Nos résultats, semblables à ceux de Snow, montrent la variation de σ avec la fréquence ; ils mettent en évidence un changement de pente des droites obtenues pour la température de 700 °C.

IV. Conclusion. — Le dispositif que nous avons réalisé, permet d'effectuer des mesures correctes des propriétés diélectriques de matériaux isolants réfractaires, à basse fréquence et dans un domaine de température (0-1 100 °C).

Les mesures de la constante diélectrique de l'alumine monocristalline montrent que les valeurs de k' , pour les domaines de température et de fréquence étudiés, ne dépendent pas du taux de dopage en chrome C_r^{3+} . Le tableau de valeurs présentant les résultats obtenus pour k' est valable aussi bien pour les saphirs que pour les rubis.

La précision des mesures dépend pour sa plus grande partie de l'erreur faite sur la détermination de la valeur de la constante diélectrique relative à la température ambiante ($k' = 8,6 \pm 0,6$).

Bibliographie

- [1] PENTCOST (J. L.), High Temperature Technology Butter worths, 1964, 39-66.
- [2] HRIZO (J.) and SUBBARAO (E. C.), *Rev. Scient. Instr.*, 1963, **34**, 1, 8.
- [3] KOIZUMI (N.) et YANO (S.), *Bull. Inst. Chem. Res.*, 1969, **47**, 4, 320.
- [4] HALLECK (M. C.), *Trans. A. I. E. E. part III*, 1958, **77**, 343.
- [5] SCOTT (A. H.), EHRLICH (P.) et RICHARDSON (J. F.), 1954, Special techn. publication n° 161, ASTM.
- [6] BAKER (E. B.), *Rev. Scient. Instr.*, 1949, **20**, 10, 716.
- [7] WORK (R. N.), *Rev. Scient. Instr.*, 1965, **26**, 11.
- [8] VON HIPPEL (A.), Dielectrics materials and applications, 1958, John Wiley and Sons.
- [9] AMEY (W. G.) et HAMBURGER (F.), *ASTM*, 1949, **49**, 1079.
- [10] COHEN (J.), *Am. Ceram. Soc. Bull.*, 1959, **38**, 9, 441.
- [11] SNOW (G. S.) et CUTLER (I. B.), University of Utah, 1964, Tech. report 1, A. D. 60 961 7.