Étude par simulation numérique des propriétés diélectriques d'hétérostructures multiphasiques contenant des inclusions de forme arbitraire

Abdelilah Mejdoubi



Laboratoire d'Electronique et Systèmes de Télécommunications



Directeur de thèse: Christian Brosseau





LEST-

#### Contexte de l'étude

Modélisation EM des matériaux composites contenant des inclusions de forme quelconque

*ε* du matériau hétérogène mal connu
 +
 *λ* Phénomène de diffusion

$$\lambda >> d, \forall d_i$$







#### Techniques de simulation

- Equations intégrales de frontière
- Méthode des Moments
- Monte Carlo (MC)
- Dynamique moléculaire (MD)
- Éléments finis (FE)
- Différences finies dans le domaine temporel (FDTD)

#### **Motivation**

La connaissance de la permittivité est nécessaire pour identifier les mécanismes de polarisation et de conduction dans les matériaux composites

Les méthodes FDTD et FE sont utilisées pour évaluer la permittivité effective de matériaux composites à deux et trois phases

Les approches du milieu effectif et les méthodes de bornage, sont capables d'évaluer le comportement des matériaux hétérogènes dans une analyse de type grande longueur d'onde



- Modélisation micro/macro: corrélation entre la morphologie du système (inclusion isolée, réseau d'inclusion) et la permittivité effective (réponse du matériau à un champ électrique appliqué)
- Est-ce que la fraction surfacique et le facteur de dépolarisation (FD) sont des descripteurs morphologiques suffisants pour pouvoir prendre en compte la complexité et la généralité des topologies d'inclusion ?
- Quelle est l'influence de la perforation d'une inclusion sur les caractéristiques diélectriques ? Selon le type de pore (ouvert ou fermé), que peut-on attendre d'une faible (ou forte) porosité sur ces caractéristiques?
- Peut-on évaluer précisément la composition des mélanges à partir de laquelle les approches analytiques tombent en défaut?
- Peut-on par l'approche numérique aller au delà des limitations des approches analytiques, et conduire à une description fine des caractéristiques de résonance?



Concept d'homogénéisation et bornes

# Outils de simulation (FDTD, FE)

- Principe des méthodes
- Application au calcul de la permittivité effective

# Résultats de simulation

- Analyse par FDTD
- Analyse par FE
  - Milieux perforés
  - Facteur de dépolarisation
  - Résonance électrostatique intrinsèque
- Conclusions et perspectives





Étudier l'influence de la géométrie d'une inclusion de forme complexe sur les propriétés diélectriques effectives d'une structure hétérogène bidimensionnelle à deux phases.



Évaluer les propriétés de polarisation et de dépolarisation liées à l'inclusion

#### Homogénéisation

- Approche Classique loi de mélange
- Approche Numérique FDTD + FE



#### Concept d'homogénéisation et bornes

#### polygones réguliers



#### Fractales

Objets mathématiques irréguliers caractérisés par un processus itératif (récurrence) à partir d'un générateur.

- structure complexe à chaque niveau d'itération
- dimension non entière (dimension fractale D)
- symétrie d'autosimilarité indépendante de l'échelle d'observation





#### Principe :

- Homogénéisation d'un matériau avec taille des particules  $d \ll \lambda$
- Dépendance de la forme, permittivité intrinsèque, fraction surfacique des particules
- Propriétés diélectriques décrites par une fonction diélectrique effective

La permittivité effective de matériaux composites se représente sous la forme d'une fonctionnelle:

$$\frac{\boldsymbol{\varepsilon}}{\boldsymbol{\varepsilon}_{1}} = f\left(\frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{2}}{\boldsymbol{\varepsilon}_{1}}, \boldsymbol{\phi}_{2}, \boldsymbol{A}\right)$$

- Maxwell Garnett (1904)
- Bruggeman (1935)

$$f\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}, \phi_2, A\right) = 1 + \frac{\phi_2\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} - 1\right)}{1 + A\left(1 - \phi_2\right)\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} - 1\right)}$$
$$f\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}, \phi_2, A\right) = \frac{1 - A\left(1 + \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}\right) + \phi_2\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} - 1\right) \pm \sqrt{\left[1 - A\left(1 + \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}\right) + \phi_2\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} - 1\right)\right]^2 + 4A(1 - A)\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}}{2(1 - A)}$$

- Bornes de Hashin et Shtrikman (1962)

$$\varepsilon_{\rm L} = \varepsilon_1 \phi_1 + \varepsilon_2 \phi_2 - \frac{\phi_1 \phi_2 (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)^2}{\varepsilon_1 \phi_2 + \varepsilon_2 \phi_1 + (D - 1)\varepsilon_1}$$
$$\varepsilon_{\rm U} = \varepsilon_1 \phi_1 + \varepsilon_2 \phi_2 - \frac{\phi_1 \phi_2 (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)^2}{\varepsilon_1 \phi_2 + \varepsilon_2 \phi_1 + (D - 1)\varepsilon_2} \quad D=2$$

LEST



Soutenance de thèse, 20 juin 2007

8/42

# Concept d'homogénéisation et bornes

# > Outil de simulation (FDTD, FE)

- Principe des méthodes
- Application au calcul de la permittivité effective

# Résultats de simulation

- Analyse par FDTD
- Analyse par FE
  - Milieux perforés
  - Facteur de dépolarisation
  - Résonance électrostatique intrinsèque
- Conclusions et perspectives





# Principes de la méthode FDTD

 $E^{n-1}$ 

Différences finies dans le domaine temporel (Yee, 1966)

- Une seule opération: multiplication matricielle (pas d'inversion de matrices)
- Adapté à la résolution d'un problème électromagnétique de grande taille électrique, tel que celui des matériaux hétérogènes
- Résolution des équations de Maxwell dans l'espace et le temps:
  - Discrétisation:

$$f(\vec{r},t) = f(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta z, n\Delta t) \Longrightarrow f^{n}(i, j, k)$$

Dérivée:

$$\frac{\partial f(\vec{r}_0, t_0)}{\partial t} \Rightarrow \frac{f(\vec{r}_0, t_0 + \Delta/2) - f(\vec{r}_0, t_0 - \Delta/2)}{\Delta}$$

- Algorithme de Yee:
  - Le champ est discrétisé dans l'espace et le temps.
  - Le champ électrique sera évalué aux instants:  $n \Delta t$
  - Le champ magnétique sera évalué aux instants:  $(n+1/2)\Delta t$
  - Les composantes des champs  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  sont changées temporellement (Leap-frog)



10/42



LEST UMP CNRS 610



# Onde plane

#### Séparation Champ total/champ diffusé (Principe de superposition)



cas 1D :

#### cas 2D :



## Conditions d'onde sortante

- PML (Perfectly Matched Layer) de Berenger
  - Matériaux fictifs réalisant une adaptation d'impédance parfaite
  - Pas de réflexions parasites mais il est nécessaire de faire une séparation du champ:



 $H_z = H_{zx} + H_{zy}$ 

# Comparaison avec le cas analytique

- Efficacité de la FDTD: cas de la diffusion d'une onde plane par un cylindre métallique
  - Cas analytique:

$$H_{z,tot} = H_0 \sum_{n=-\infty}^{+\infty} j^{-n} \left[ J_n(\beta \rho) - \frac{J_n'(\beta a)}{H_n^{(2)'}(\beta a)} H_n^{(2)}(\beta \rho) \right] e^{jn\phi}$$



#### Permittivité effective



## Principe

- ✓ Méthode de modélisation et de calcul numérique
- ✓ Sert à résoudre des problèmes où l'on cherche à connaître la distribution spatiale

d'une ou plusieurs variables dépendantes (problème de champ)

- ✓ Subdivision du domaine de calcul en sous-domaines (éléments finis)
  - Chaque élément est représenté par des points appelés nœuds géométriques
  - A chaque élément, la fonction modélisant le phénomène est définie par une interpolation polynomiale

$$V = \sum_{i=1}^{n} \lambda_{i} V_{i}$$

*n*: nombre de nœuds d'interpolations  $V_i$ : fonction d'interpolation  $\lambda_i$ : valeurs nodales



- Utilisation d'une méthode variationnelle qui minimise une fonction équivalente au problème différentiel posé.
- Méthode de projection (Galerkin qui traite directement l'équation aux dérivées partielles)

## Outils de simulation: Comsol Multiphysics (environnement matlab)



# Maillage

#### Génération contrôlée des mailles d'élément finis

- Maillages des surfaces
- Maillage structuré et non structuré



#### Maillage adaptée à la géométrie et à la taille des inclusions

# Méthode des équations intégrales de frontière

- ✓ Seules les informations concernant les frontières des milieux voisins sont nécessaires
- ✓ La dimension du problème est réduite à 1 (efficacité améliorée des calculs numériques)
- La solution (le potentiel et le champ normal) sur les surfaces est utilisée pour calculer les quantités globales utiles (flux)
- Basées sur l'inversion des opérateurs mathématiques gouvernant les équations locales: méthode de distribution et méthode de Green





 La méthode FE est bien adaptée aux matériaux composites, avec ou sans pertes, linéaires ou non linéaires.

• la partie réelle de la permittivité effective est calculée à partir de l'énergie stockée dans un tel condensateur, lorsqu'une tension est appliquée à ses armatures:

$$W = \frac{1}{2}\varepsilon'\frac{S}{L}(V_2 - V_1)^2$$



• la partie imaginaire de la permittivité effective est calculée à partir des pertes diélectriques:





Soutenance de thèse, 20 juin 2007

19/42

LEST

#### Comparaison entre la FDTD et FE



LEST TMR CNRS

20/42

# Concept d'homogénéisation et bornes

# > Outil de simulation (FDTD, FE)

- Principe des méthodes
- Application au calcul de la permittivité effective

# Résultats de simulation

- Analyse par FDTD
- Analyse par FE
  - Milieux perforés
  - Facteur de dépolarisation
  - Résonance électrostatique intrinsèque

# Conclusions et perspectives





## Simulation FDTD d'hétérostructures à deux phases

$$|R| = \frac{\left| (1 - \varepsilon) \tan\left(\frac{\omega l}{c} \sqrt{\varepsilon}\right) \right|}{\sqrt{4\varepsilon + (1 + \varepsilon)^2 \tan^2\left(\frac{\omega l}{c} \sqrt{\varepsilon}\right)}}$$

#### Exemple: disque

Fréquence de coupure du guide d'onde:

f=600 MHz

LEST UMR CNRS 616



a): 
$$\varepsilon_1 = 1, \varepsilon_2 = 10, \phi_2 = 0.102, f = 10.23 MHz$$

(b): 
$$\varepsilon_1 = 10$$
,  $\varepsilon_2 = 1$ ,  $\phi_2 = 0.102$ ,  $f = 10.23$  MHz





#### Influence de la géométrie $\boldsymbol{P}$ $\tilde{p}$ 1.6 11 S 10 1.5 $\times 1.02$ • 1.05 + 1.07 MG 9 1.4 ■ 1.13 ▲ 1.29 8 1.3 7 1.2 ε 6 ε 1.1 $\mathcal{E}_{disk}$ 5 $\mathcal{E}_1 = 1$ 1.0 $\times +$ $\varepsilon_2 = 10$ 0.9 $\mathcal{E}_1 = 1$ 3 MAN-ANANA NA 0.8 2 $\varepsilon_2 = 10$ 0.7 1 0.6 0 1.2 $\tilde{p} / \tilde{p}_{disk}$ 0.4 0.7 0.9 1.4 1.7 1.9 0.0 0.1 0.2 0.3 0.4 0.5 0.6 0.7 0.8 0.9 1.0 $\phi_2$ 1.6 1.5 × 1.02 • 1.05 3 1.4 + 1.07 $\frac{\widetilde{p}}{\widetilde{p}_{disk}} = B > 1$ 1.3 ■ 1.13 ▲ 1.29 (disque, B=1) 1.2 Е 1.1 **E**<sub>disk</sub> × × + + 8× 1.0 ×+ 0.9 $\varepsilon_1 = 10$ A. Mejdoubi et C. Brosseau, J. Appl. Phys, 99, 063502 (2006). 0.8 A. Mejdoubi et C. Brosseau, Phys. Rev. E, 73, 031405 (2006). $\mathcal{E}_2 = 1$ 0.7 0.6 0.9 1.2 0.4 0.7 1.4 1.7 1.9 <u>p</u> / <u>p</u> disk LES'23/42 Soutenance de thèse, 20 juin 2007 LEST UMR CNRS 616

#### Simulation FDTD d'hétérostructures à deux phases

#### Simulation FDTD d'hétérostructures à deux phases

# Cartographie du champ

#### Exemple: flocon de Koch

LEST UMR CNI



La non-uniformité du champ électrique au voisinage du périmètre de l'inclusion

différence entre les valeurs de la permittivité calculées par la FDTD et celles déduites par l'équation de MG.

ε

#### Similarité

faible concentration: l'effet de surface prédomine forte concentration: le périmètre pilote les propriétés diélectriques

• Choix du descripteur en  $\tilde{p}\sqrt{\phi_2}$  ?

La permittivité effective du composite contenant une inclusion fractale pour une itération quelconque  $\varepsilon_n$  est reliée à la permittivité effective du générateur (*n=0*) par une transformation de similarité:

$$\varepsilon_{0}\left(\widetilde{p}_{0}\sqrt{\phi_{20}}\right) = \varepsilon_{n}\left(S(n)\widetilde{p}_{n}\sqrt{\phi_{2n}}\right)$$

c'est à dire par un décalage des courbes d'un facteur d'échelle égal à S(n)

Exemple: flocon de Koch

$$\begin{cases} g(n) = 1 + \sum_{k=1}^{n} 4^{k-1} \left(\frac{1}{3}\right)^{2k-1} \end{cases}$$

 $\left[S(n) = \left(\frac{4}{2}\right)^{-n} \sqrt{g(n)}\right]$ 



 $\widetilde{P} \propto \frac{1}{d\sqrt{\phi_2}}$ 



LEST



#### Structures composites perforés

# Effet de la fraction surfacique et du périmètre réduit



#### Structures composites perforés

#### Effet de la fraction surfacique et du périmètre réduit



#### Structures composites perforés

#### Rôle des inhomogénéités locales sur la distribution du champ électrique

• Le champ électrique est fortement localisé aux interfaces entre les inclusions du composite

 Corrélation spatiales avec les inhomogénéités de la structure perforée



#### Porosité



# Méthodologie de calcul du FD

- Développement du viriel de la permittivité est effectué jusqu'à un ordre significatif.
- Développement des équations de MG et SBG,

- à l'ordre le plus bas 
$$f\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}, \phi_2, A\right) = 1 + \alpha \phi_2 + O(\phi_2^2) \quad \text{avec} \quad \alpha_{MG} = \alpha_{SBG} = \alpha = \frac{1}{A + \frac{1}{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} - 1}}$$
  
- à l'ordre supérieur 
$$f\left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}, \phi_2, A\right) = 1 + \tilde{\alpha} \phi_2 + \tilde{\beta} \phi_2^2 + O(\phi_2^3) \quad \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} = 1$$
  
avec 
$$\tilde{\beta}_{MG} = \frac{1}{A + \frac{2}{\varepsilon_2} + 1} + \frac{1}{A} \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1\right)^2 \quad \text{et} \quad \tilde{\beta}_{SBG} = \frac{\varepsilon_2}{A^2} \left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} - 1\right) \left(1 + \frac{1}{A \left(\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} - 1\right)}\right)^3$$

- Évaluation du FD soit au premier ordre ( $\phi_2 < \phi_{2c0}=0.05$ ), soit au deuxième ordre ( $\phi_2 < \phi_{2c0}=0.1$ )
- La valeur de A est obtenu à partir de l'approximation de la limite diluée





E. J. Garboczi and J. F. Douglas, Phys. Rev. E 53, 6169 (1996)

Dépendance du FD des inclusions fractales en fonction du nombre d'itérations



- Comportement prend son origine dans la symétrie de dualité
- Existence d'une dépendance sensible du FD avec le nombre d'itérations
- Pour un nombre d'itérations suffisamment grand,  $A(\varepsilon_2/\varepsilon_1 >> 1 \rightarrow 0)$  et  $A(\varepsilon_2/\varepsilon_1 << 1 \rightarrow 1)$





Soutenance de thèse, 20 juin 2007

#### Facteur de dépolarisation (FD)

FD de l'ellipse en fonction de l'orientation du champ électrique avec  $\varepsilon_1=2, \varepsilon_2=20$ 



#### FD de l'ellipse et du rectangle en fonction de l'angle de l'orientation

La dépendance angulaire du FD est représenté par une loi en  $sin(\theta)$ 

Les variations angulaires du FD fournissent des informations sur le problème du disque équivalent (2D) pour les inclusions de forme anisotrope

Exemple: si 
$$\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} = \frac{20}{2}$$
 et  $\frac{a}{b} = \frac{1}{3}$  avec  $\theta = 60^\circ ou \ 120^\circ$ ,  
les valeurs du FD de l'ellipse et du rectangle sont égales à la

valeur du FD du disque



LEST UMR CNRS 614

- Méthode pour caractériser les propriétés électromagnétiques de nano-structures périodique
- Conduit à des champs électriques forts et localisés
- La RE est définie comme un état propre du problème du potentiel électrostatique c-à-d. tel que l'on peut trouver des solutions non-triviales *V(r)* de l'équation aux dérivées partielles,  $\vec{\nabla} . [\mathcal{E}(r) . \vec{\nabla} V(r)] = 0$

Intrinsèque: dépend essentiellement de la géométrie du composite

Extrinsèque: reliée à la dépendance spectrale de la permittivité des constituants

Inclusions considérées

RE



Schéma de la cellule unité



32/42

Soutenance de thèse, 20 juin 2007

# Effet de la forme de l'inclusion

- Permittivité effective (Méthode de Bergman-Milton)

 $s = \left(1 - \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1}\right)^{-1}, \quad \{S_n; n = 1, 2, 3, ...\}$ : représente la séquence des modes propres du problème

 $F_n$ : les fonctions correspondants au modes normaux,  $\sum =1$ 



#### Inclusion isolée

- Cas sans perte ( $\varepsilon_2 = -6$ )

Les états résonants sont caractérisés par des profils asymétriques de la permittivité:

#### Hiérarchie

D [ $\mathcal{E}_2 \approx 0.65$ ], SS [ $\mathcal{E}_2 \approx 0.2$ ], ST [ $\mathcal{E}_2 \approx 0.1$ ], et SR [ $\mathcal{E}_2 \approx 0.08$ ].



LEST

33/42





#### Réseau d'inclusions

- Cas sans perte ( $\varepsilon_2 = -6$ )

• Le pic de la RE est plus étroit que celui pour une inclusion isolée





- Cas avec perte ( $\varepsilon_2 = -6+0.1i$ )

La hiérarchie des valeurs de la fraction surfacique associées à la position des REs est identique au cas de l'inclusion sans perte





Soutenance de thèse, 20 juin 2007



## Effet des défauts structurels



# Structures encapsulées





# Réseau d'inclusions circulaires encapsulées





#### Réseau d'inclusions elliptiques encapsulées

# Variation de la fraction surfacique $\phi_r$ correspondant à la RE



# Effet des pertes et de polarisation







Réseau d'inclusions elliptiques

# Champ local

Renforcement du champ local de l'ordre de quelques centaines à la résonance

- L'inclusion est orientée sous un angle  $\theta$ = 45°.
- Le champ électrique est polarisé le long de l'axe de y.

A. Mejdoubi et C. Brosseau, Phys. Rev. B, 74, 165424 (2006).
A. Mejdoubi et C. Brosseau, J. Appl. Phys., 101, 084209 (2007).
A. Mejdoubi et C. Brosseau, Phys. Rev. B (sous presse).
A. Mejdoubi et C. Brosseau, Phys. Rev. B (sous presse).

Igle  $\theta$ = 45°.  $\Rightarrow$  long de l'axe de y. Rev. B, 74, 165424 (2006). pl. Phys., 101, 084209 (2007).

300

250



250

200

150

100

# Concept d'homogénéisation et bornes

# > Outil de simulation (FDTD, FE)

- Principe des méthodes
- Application au calcul de la permittivité effective

# Résultats de simulation

- Analyse par FDTD
- Analyse par FE
  - Milieux perforés
  - Facteur de dépolarisation
  - Résonance électrostatique intrinsèque

## Conclusions et perspectives





Mise en oeuvre d'un code FDTD (quasi-statique)

Utilisation du logiciel Comsol Multiphysiques pour la méthode FE (statique)

Discriminer les effets du périmètre et de la surface de l'inclusion

• Proposition d'un descripteur morphologique en  $\tilde{p}\sqrt{\phi_2}$ 

Milieu perforés (influence des trous sur la permittivité)

• Influence des trous, du contraste et de la porosité sur la permittivité

#### Mise au point d'une méthode générale du calcul du FD

• L'outil numérique permet de bien préciser quelles sont les limites d'application de l'approximation dipolaire en terme de composition des mélanges

Description des phénomènes de la RE intrinsèque des matériaux composites diélectriques

• Prendre en compte la géométrie de l'inclusion



#### Perspectives

cas 3D

k

φ<sub>2</sub>=0.05

φ<sub>2</sub>=0.1

 $\phi_2 = 0.2$ 



$$\mathcal{E}_2(r) = c(b+r)^k$$

$$c = -1, b = 2$$

0.5

- Extension à une analyse du désordre spatial (analyse statistique)
- Couplage des méthode FE et Monte Carlo pour étudier l'influence du désordre sur les caractéristiques de la RE
- Optimisation du FD et de la polarisabilité électrique pour une application donnée
- Étude de matériaux composites multifonctionnels:



- couplage entre les propriétés diélectrique et mécanique (élastomères magnétique)
- couplage entre les propriétés diélectrique et magnétique (métamatériaux)
- Analyse spectrale dans le domaine quasi-statique



LEST-

Merci !