

Comprendre la permittivité diélectrique

Par M. T. Benhabiles, Pr

Mettons face à face deux plaques conductrices identiques ayant chacune une surface s de 1 m^2 et maintenons les parallèles dans le vide à une distance d égale à 1 mètre l'une de l'autre. Nous obtenons un condensateur de capacité $C = \varepsilon \frac{s}{d} = 8.854 \text{ picoFarad}$.

Cet éminent ingénieur qu'est Michael Faraday (1791-1867) s'est vu octroyer de toutes les parts qui font l'électricité, l'unité MKS de la capacité C .

Appliquons entre les deux plaques une tension continue U de 1 Volt, une charge électrostatique apparaît sur chaque plaque avec un signe opposé et une valeur $Q = CU = 8.854 \cdot 10^{-12} \text{ coulomb}$. Il y a un excès de 55268414 électrons libres sur une plaque, la charge d'un électron étant $1.602 \cdot 10^{-19} \text{ coulomb}$, et un égal nombre d'électrons en déficit sur l'autre plaque qui ont cédé la place à des ions positifs. Il n'y a aucune magie la derrière, les connexions qui ont apporté la tension U ont fait passer les électrons d'une plaque à l'autre. En déconnectant les câbles la situation reste inchangée sur le condensateur. Dans le vide entre les plaques, une énergie électrique $W_e = CU^2/2 = 4.427 \text{ picoJoule}$ reste emmagasinée.

Plongeons ce montage dans de l'eau pure à 25°C de température, pour laquelle le paramètre ε vaut 80 fois celui du vide et par conséquent la capacité du condensateur sera 80 fois plus grande. Pour la même tension continue de 1 Volt appliquée au condensateur, la charge électrique sur chaque plaque est 80 fois plus grande que pour la première opération, l'énergie électrique emmagasinée 80 fois plus importante.

Ce paramètre ε qui pour le vide a été convenu avoir une valeur $8.854 \cdot 10^{-12} \text{ Farad/mètre}$, la plus petite de tous les milieux et matériaux de l'univers, est appelé *permittivité diélectrique*. Je n'ai pas trouvé d'étymologie probante à ces deux termes. *diélectrique* qualifie les propriétés plutôt isolantes électriques d'un milieu matériel, et selon les sources primairement anglophones *permittivité* serait une mesure des dispositions d'un milieu à permettre l'admission d'un flux électrique, ainsi que son pouvoir à contenir de l'énergie électrique. Cette phrase n'aura un sens que lorsqu'on aura défini et compris ces concepts.

Polarisation électrique

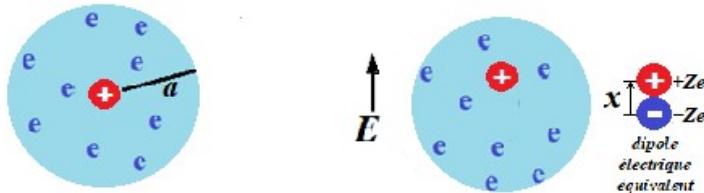
En premier lieu, nous définissons la *densité de flux électrique* généralement représentée par le symbole \vec{D} et souvent appelée le *champ de déplacement électrique*. Elle est liée au champ électrique \vec{E} par la relation constitutive

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E}$$

L'unité de \vec{E} est le Volt / mètre, \vec{D} a pour unité le Coulomb / m^2 . A la question qu'est-ce qui se déplace, et vers où ? la réponse est dans la loi de Gauss, où une charge ρ fixe se déplace symboliquement par un champ \vec{D} lointain dont elle est la source. Cette allégorie a une teneur scientifique telle que le terme *déplacement* reste en usage même quand la source du champ \vec{D} est autre qu'une charge ρ .

On appelle *dipôle électrique* deux charges électriques ponctuelles égales et de signe opposé $-\rho$ et $+\rho$ séparées par une distance infinitésimale d . Le produit ρd s'appelle *moment* du dipôle, d étant orienté de la charge négative $-\rho$ vers la charge positive $+\rho$. L'unité du moment électrique est le coulomb·mètre.

La *polarisation électrique* d'un milieu matériel sujet à un champ électrique, provient de l'interaction entre le champ appliqué et les charges électriques existant dans ce milieu. Au départ nous examinons le cas d'un atome isolé dont le modèle le plus simple est un noyau ponctuel de charge électrique positive égale au nombre atomique Z fois la charge absolue de l'électron e . Le noyau est entouré de Z électrons en orbite uniformément diffus dans une sphère de rayon a centrée sur le noyau.



Appliquons un champ électrique \vec{E} à l'atome, une force $Ze\vec{E}$ s'exerce sur le noyau dans un sens et sur le nuage d'électrons dans le sens opposé, qui résulte en un décalage \vec{x} entre le noyau et le centre du nuage d'électrons. Ce décalage définit un dipôle électrique de moment $Ze\vec{x}$, qui génère à son tour un champ de polarisation \vec{P} .

Les centres des charges de signe contraire s'étant éloignés l'un de l'autre d'une distance \vec{x} , la force de Coulomb va les attirer l'un vers l'autre, et le décalage \vec{x} ne va pas croître indéfiniment. C'est une des lois de la nature de réagir à toute perturbation afin de se maintenir. La polarisation \vec{P} exerce donc sur les charges qui la produisent une force $(Ze)^2\vec{x}$ qui tend à contrer l'effet du champ \vec{E} comme un ressort de rappel.

à l'équilibre mécanique, on trouve par une simple résolution de l'équation de Poisson $\vec{P} = 4\pi\epsilon_0 a^3 \vec{E}$

où ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide. La densité de polarisation par unité de volume possède les dimensions d'un déplacement électrique, sa superposition avec le champ appliqué donne le déplacement total

$$\vec{D} = \vec{P} + \epsilon_0 \vec{E}$$

ici \vec{P} indique une densité de polarisation, elle est colinéaire au champ appliqué. La relation constitutive peut être mise sous la forme

$$\vec{D} = \epsilon_0(1 + X_e)\vec{E} = \epsilon_0\epsilon_r\vec{E} = \epsilon\vec{E}$$

où X_e définit la *susceptibilité électrique*, sans unités, par la relation $\vec{P} = \epsilon_0 X_e \vec{E}$

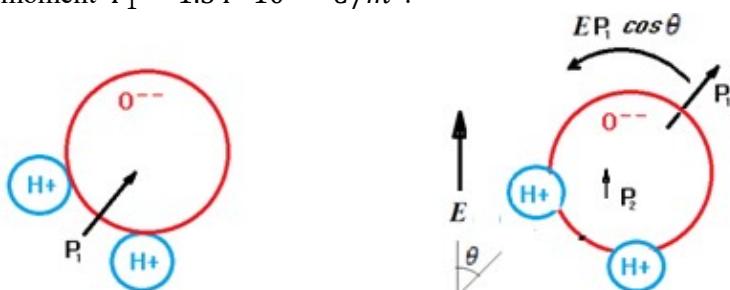
Cette formule obtenue pour un atome est générale. ϵ_r s'appelle la *permittivité relative* du milieu, ϵ la *permittivité absolue*. Il apparaît clairement que c'est à cause du phénomène de polarisation que le vide possède la plus petite permittivité avec $\epsilon_r = 1$

Cette approche est apparue en 1836, donnant le modèle de permittivité de Clausius-Mossotti qui l'appliquent à une molécule isolée, vue comme une petite sphère contenant une distribution organisée de charges électriques [1-2]. Ce modèle n'a jamais été invalidé. Nous allons généraliser l'idée pour un milieu constitué de plusieurs atomes, libres ou liés, en réseau cristallin, ou en molécules indépendantes ou associées.

En général le champ électrique appliqué varie dans le temps. Dans le cas le plus simple il induit un dipôle électrique dans chaque molécule du diélectrique tel que la polarisation moyenne \vec{P} par unité de volume est colinéaire à \vec{E} , soit $\vec{P} = \alpha\vec{E}$; α s'appelle la *polarisabilité du diélectrique*, il est utile de noter qu'elle a la même unité que la permittivité. Ayant utilisé une moyenne pour la polarisation, nous reconnaissons son caractère statistique probabiliste, et il n'est pas possible de l'étudier autrement.

Les molécules dites *polaires* possèdent une polarisation naturelle permanente. Les liaisons entre les atomes de la molécule donnent lieu à un écart entre le centre géométrique de l'ensemble des noyaux des atomes, et le centre géométrique de l'ensemble des électrons dont une partie est mise en commun entre atomes voisins. La polarisation intrinsèque pour chaque molécule forme a priori un angle θ avec le champ électrique appliqué \vec{E} .

Un exemple de molécule fortement polaire est celle de l'eau, constituée d'un ion O^{--} et de deux ions H^+ en disposition triangulaire. En l'absence d'un champ extérieur \vec{E} appliqué, l'asymétrie des charges des ions forme un dipôle permanent de moment $P_1 = 1.34 \cdot 10^{-18} \text{ C/m}^2$.



Un champ \vec{E} extérieur appliqué à la molécule déplace les charges et induit une polarisation \vec{P}_2 qui lui est colinéaire, contrée par une force de rappel $k\vec{x}$ comme on l'a déjà vue.

Le champ \vec{E} appliqué et la polarisation \vec{P}_2 ajoutée vont tendre dans la mesure du possible à aligner le dipôle structurel \vec{P}_1 dans leur direction en exerçant un couple de forces égal à $EP_1\cos\theta$ (en négligeant P_2). Cet alignement est une rotation de la molécule, freinée par une force de friction visqueuse avec les corps qui l'entourent. Cette force est proportionnelle à la vitesse de la molécule par rapport aux corps en friction. Elle est égale à $mv d\vec{x}/dt$; v est appelé *coeffcient de viscosité* du milieu et souvent *viscosité* tout court. m est la masse effective de la molécule. Ce phénomène qui existe aussi dans les cristaux solides est seul responsable de la valeur de la permittivité pour toute substance ayant $\epsilon_r \geq 3$.

Pour un ensemble de molécules polaires, la polarisation moyenne par unité de volume est donnée par la loi statistique de Maxwell-Boltzmann. P est la valeur absolue de la polarisation propre à chaque molécule, et θ l'angle qu'elle forme avec le champ appliqué \vec{E} supposé uniforme.

$$\bar{P} = \frac{\int e^{\frac{PE\cos\theta}{kT}} P\cos\theta \cdot d\theta}{\int e^{\frac{PE\cos\theta}{kT}} d\theta}$$

k est la constante de Boltzmann égale à $1.38 \cdot 10^{-23}$ J/K, T est la température absolue. Si P est constant et θ équiprobable entre 0 et π , \bar{P} se calcule aisément et est égale à la fonction de Langevin $L\left(\frac{PE}{kT}\right) = \coth\frac{PE}{kT} - \frac{kT}{PE}$ qui décroît continument de 1 à 0 pour T allant de 0 à l'infini, elle est à peu près égale à $PE/(3kT)$ aux températures ambiantes. Disposant d'une expression pour la polarisation moyenne, on peut s'en contenter et avoir une formule simpliste de la permittivité, mais les choses sont plus compliquées que ça.

Pour le cas général, les intégrales ci-dessus sont pratiquement incalculables. Néanmoins, il y a un point important à retenir : la polarisation moyenne dépend de la température, et par conséquent la permittivité relative aussi, on peut s'assurer expérimentalement que les diélectriques sujets à ces hypothèses ont une permittivité qui varie légèrement en raison inverse de la température absolue [1-4]. En vérité, l'effet de la température sur la permittivité diélectrique n'est significatif que s'il y a transition de phases.

Modèle de Debye

L'équation du mouvement s'établit en égalant la force appliquée par le champ \vec{E} aux forces de réaction

$$mv \frac{d\vec{x}}{dt} + k\vec{x} = q\vec{E}$$

ici k est une constante de raideur, q la charge symétrique qui fait le dipôle dans la molécule. Les grandeurs impliquées dans ce modèle n'ont de sens pratique qu'en tant que moyennes dans le volume sous modélisation.

Pour les champs \vec{E} harmoniques variant en $e^{j\omega t}$ et par réponse \vec{x} aussi, l'équation différentielle se réduit à une équation algébrique

$$j\omega mv\vec{x} + k\vec{x} = q\vec{E}$$

$$\vec{x} = \frac{q\vec{E}}{j\omega mv + k}$$

$$\text{Sachant } \vec{P} = q\vec{x}$$

$$\vec{P} = \frac{q^2}{k + j\omega mv} \vec{E}$$

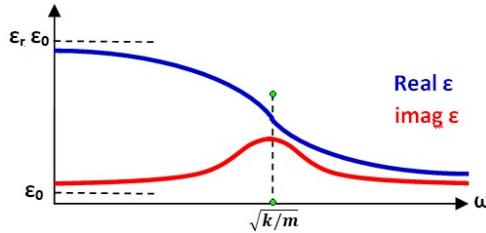
nous obtenons une évaluation au premier ordre de la permittivité appelée *modèle de Debye*

$$\epsilon = \epsilon_0 + \frac{q^2}{k + j\omega mv}$$

Cette expression est ramenée à une forme standard

$$\epsilon = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1 + j\omega\tau}$$

C'est une valeur complexe, et elle dépend essentiellement de la fréquence. ε_s est la valeur pour la fréquence tendant vers zéro, ε_∞ pour la fréquence tendant vers l'infini. L'allure type de la variation de la permittivité avec la fréquence est donnée par la figure suivante. La partie réelle décroît de $\varepsilon_s \sim (\varepsilon_0 + q^2/k)$ à $\varepsilon_\infty \sim \varepsilon_0$ avec un point d'inflexion aux alentours de $\omega = \sqrt{k/m}$. La partie imaginaire, généralement nettement inférieure à la partie réelle, présente une courbe en cloche avec un maximum au voisinage de $\omega = \sqrt{k/m}$.



τ est désignée par *constante de temps*, ou *temps de relaxation*, notez qu'elle est due uniquement aux forces de friction mécanique des dipôles. Elle est liée aux constantes de ce modèle par une proportionnalité $\tau \propto \frac{mv}{k}$

τ introduit dans la permittivité un terme imaginaire qui équivaut à une conductivité, qui s'ajoute à une vraie conductance σ quand elle existe dans le diélectrique, et en est indiscernable du point de vue comportement électrique. Cette conductance est désignée par *pertes diélectriques*.

Rigoureusement τ n'est pas constant pour beaucoup de substances, dans lesquelles elle varie par plages de fréquences. Néanmoins des modèles fiables existent et permettent la prédition des pertes diélectriques avec beaucoup de précision. L'ordre de grandeur de τ pour les substances réelles va de 0 jusqu'à 10 microsecondes.

Le deuxième point important à retenir dans cet exposé, la constante τ impose un retard de phase entre le champ électrique appliqué au matériau et sa permittivité relative. En effet, en physique les choses ne sont jamais instantanées, cette expression de la permittivité rend parfaitement compte du laps de temps qui s'écoule entre le champ appliqué \vec{E} , qui est rarement statique, et le mécanisme de polarisation pour le suivre.

Si en un point du diélectrique \vec{E} varie en $\cos(\omega t)$, le champ de déplacement \vec{D} au même point varie en $\cos(\omega t - \varphi)$, où

$$\varphi = \text{atan}\left(\frac{\omega mv}{k}\right) - \text{atan}\left(\frac{\omega mv\varepsilon_0}{\varepsilon_0 k + q^2}\right)$$

Quoique cette formule utilise des constantes qui sont difficilement quantifiables en pratique, il est important de l'exploiter qualitativement, et une simulation électromagnétique temporelle doit prendre en charge cet aspect. Il est facile d'observer :

- on peut vérifier que le déphasage φ est toujours positif, φ est égal à une fraction de la période du signal
- φ croît avec la masse effective m des dipôles, ce qui est évident, et avec le coefficient de viscosité v du diélectrique. Le temps de relaxation τ est donc un indicateur du retard de phase

Etat de l'art

Le modèle de Debye est élaboré avec une telle intellection qu'il laisse pressentir la promesse d'une théorie unifiée. Celle-ci est irréalisable au vu de la multitude des matériaux et de la diversité des phases dans lesquelles ils peuvent se trouver. Il y a même des matériaux d'exception qui ont par nature un comportement anomal. Le modèle de Debyé, au même titre que le modèle précurseur de Claussius-Mossotti, présente pour certains diélectriques un désaccord inacceptable avec les mesures expérimentales.

Sa principale imperfection est de ne pas prévoir la variation de la relaxation avec la fréquence. L'origine de ce temps de relaxation étant une application crue de la viscosité en milieu moléculaire, qui a quand même le mérite de clarifier la physique de la permittivité par une formule simple. Ce qui répond amplement aux besoins primaires de l'électromagnétisme.

Des chercheurs ont avec beaucoup d'habileté scientifique, et un surplus de complexité pour l'électromagnétisme de base, cherché à expliquer la relaxation par la physique moléculaire, à un tournant de l'histoire où le phénomène de relaxation diélectrique s'avérait si complexe et sujet à tant de fluctuations que c'était l'approche inverse qu'il fallait prôner : une bonne maîtrise de la relaxation diélectrique et une meilleure compréhension de ses causes exactes aiderait à mieux connaître les structures moléculaires et cristallines.

Onsager [5] remet en question le dipôle de Clausius-Mossotti et propose une conception de la molécule qui n'est pas physique, mais qui attire l'attention sur l'action électrique de la molécule polaire sur les dipôles qui l'entourent. Ses résultats offrent un meilleur agrément avec les expériences, et sont applicables aux corps composés. Néanmoins, ses formules de la permittivité sont assez lourdes et se présentent sous forme implicite, je dirais circulaire, fonction de l'indice de réfraction du diélectrique. Le carré de l'indice de réfraction étant d'une certaine manière la permittivité. Il est vrai qu'il offre l'avantage de pouvoir être mesuré avec précision au moyen des techniques simples de l'optique géométrique.

Van Vleck [6] établit sur des bases de mécanique statistique un couplage dipôle-dipôle plus correct que Onsager, en déployant des calculs prohibitivement difficiles et des détails surfaits de physique moléculaire. Ses résultats prouvent la complétude du modèle de Clausius-Mossotti pour les matériaux non-polaires.

Le modèle Cole-Cole de permittivité [7] qui fera école, est un rajustement du modèle de Debye qui fournit une formule empirique établie d'après l'étude minutieuse de la dispersion et de l'absorption d'un nombre considérable de liquides et de solides,

$$\varepsilon = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + (j\omega\tau)^{1-\alpha}}$$

Le paramètre α prend une valeur entre 0 et 1 inclus, il est propre à chaque diélectrique. Le modèle Cole-Cole apporte une solution décisive à la distribution du temps de relaxation selon les fréquences, sans qu'il soit en mesure de rendre compréhensible la signification physique de ses paramètres formels.

Pour terminer, un mot sur l'approche quantique. Le livre magistral de Van Vleck sur la permittivité [4] est arrivé au moment où la théorie quantique était à son apogée. Un chapitre auto-contenu est consacré à tout ce que la mécanique quantique peut révéler sur la polarisation des molécules. L'effet de la température est déchiffré selon les principes quantiques et des calculs drastiques. Cette étude confirme la validité des modèles classiques de la dépendance de la polarisation en la température pour la moyenne des matériaux.

Bibliographie

- [1] O. F. Mossotti, *Sur les forces qui régissent la constitution intime des corps*, Turin 1836
- [2] R. Clausius, *Die mechanische warmetheorie*, Vol. II, Vieweg 1879
- [3] P. Debye, *polar molecules*, Reinhold Publishing Corporation 1929
- [4] J. H. Van Vleck, *theory of electric and magnetic susceptibilities*, Oxford University Press 1932
- [5] L. Onsager, *Electric moments of molecules in liquids*, Journal of the American Chemical Society vol 58, pp 1486-1493, august 1936
- [6] J. H. Van Vleck, *on the role of dipole-dipole coupling in dielectric media*, The Journal of Chemical Physics, vol 5, pp 556-568, july 1937
- [7] K. S. Cole and R. H. Cole, *Dispersion and absorption in dielectrics I. Alternating current characteristics*, The Journal of Chemical Physics, vol 9, pp 341-351, april 1941

PS : La rédaction de cet exposé m'a rappelé dans la tête cette réflexion de Joseph Fourier :

"L'attribut principal de l'analyse mathématique est la clarté. Elle n'a point de signes pour exprimer les notions confuses. Si la matière nous échappe par son extrême ténacité, l'analyse mathématique peut encore saisir ses lois. Elle nous les rend présents et mesurables, et semble être une faculté de la raison humaine destinée à suppléer à l'imperfection des sens."