

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC
INSTITUT NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE (Énergie et matériaux)

**DÉVELOPPEMENT D'UNE MÉTHODE MICRO-ONDE DIFFÉRENTIELLE
POUR LA DÉTECTION DE FAIBLES QUANTITÉS DE VAPEUR D'EAU DANS
L'HEXAFLUORURE DE SOUFRE (SF₆).**

Par

Jean François Rouleau
UQTR, Maîtrise en physique, M.Sc. (Physique)

Thèse présentée pour l'obtention du grade de
Philosophiae doctor (Ph.D.) en Sciences de l'énergie et des matériaux

Jury d'évaluation

Président du jury
et examinateur interne

Dr Tapan K. Bose
Institut de recherche sur l'hydrogène

Examineurs externes

Dr Shin Yagihara
Département de physique
Tokai University

Dr Cevdet Akyel
Département de génie électrique et de génie
informatique (Division Micro-ondes et
Télécommunication)
École Polytechnique

Examineur interne

Dr Claude Boucher
INRS (Énergie et matériaux)

Directeur de recherche

Dr Jacques Goyette
UQTR

Codirecteur de recherche

Dr Michel F. Fréchette, professeur associé
Institut de recherche d'Hydro-Québec

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire ou de cette thèse a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire ou de sa thèse.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire ou cette thèse. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire ou de cette thèse requiert son autorisation.

Cette thèse a été réalisée à l'Université du Québec à Trois-Rivières, dans les laboratoires de l'Institut de recherche sur l'hydrogène, dans le cadre du programme de doctorat en sciences de l'énergie et des matériaux de l'Institut national de la recherche scientifique (Énergie et matériaux) offert en extension à l'Université du Québec à Trois-Rivières.

À ma mère, mes amis et mes collègues

RÉSUMÉ

L'hexafluorure de soufre (SF_6) gazeux est jusqu'à maintenant le candidat de choix dans l'isolation de postes blindés et dans les équipements de moyenne et de haute tension. Cependant la présence de contaminants dans ce gaz comme la vapeur d'eau vient diminuer son pouvoir isolant jusqu'à rendre le composant inutilisable. En effet, les décharges électriques en présence d'humidité à des concentrations données produisent des espèces chimiques susceptibles d'altérer l'intégrité des parois isolantes. Il devient donc important de superviser la teneur en vapeur d'eau dans le SF_6 afin de maintenir sa rigidité diélectrique.

Nous avons développé une technique différentielle micro-onde à cavités résonnantes pour la détection de l'humidité dans les gaz. Nous montrons expérimentalement que cette technique peut être utilisée pour détecter de faibles quantités de vapeur d'eau dans le SF_6 à la pression atmosphérique et à la température ambiante. La sensibilité de la méthode ainsi que le seuil de détection de l'ordre du ppm (partie par million) rencontrent les exigences de l'industrie de production d'électricité relatives aux spécifications de la qualité du SF_6 dans l'appareillage électrique.


Certains appareils de détection de l'humidité dans les gaz sont disponibles commercialement mais peu d'entre eux offrent les caractéristiques nécessaires pour une inspection efficace des systèmes isolants. Nous savons notamment que les seuils critiques de vapeur d'eau varient environ entre 40 ppm (parties par million) et 600 ppm; il faut donc dans un esprit de prévention que l'appareil soit fonctionnel dans la plage des concentrations de 1 à 50 ppm à une pression de travail d'une atmosphère environ.

À ce titre, nous avons conçu un dispositif dont la limite de détection de l'humidité observée expérimentalement est de l'ordre de 3 ppm. Le principe de base de la méthode repose sur la mesure du changement de la fréquence de résonance d'une cavité de mesure induit par la présence d'un contaminant par rapport à une cavité de référence contenant

un gaz pur. Le signal de sortie est associé à la différence des coefficients de réflexion de la cavité de mesure et de la cavité de référence. Nous avons considéré l'approche du viriel selon la fonction de Clausius-Mossotti combinée à la modélisation du circuit pour déterminer le changement minimum détectable de la permittivité. L'estimation du seuil de détection de l'humidité dans certains gaz en tenant compte du bruit du montage suggère que la méthode différentielle est suffisamment sensible pour mesurer un taux d'humidité jusqu'à près de 2 ppm. Cette prévision est en bon accord avec les mesures expérimentales.

La polyvalence de la méthode différentielle permet aussi la mesure, autre que l'humidité, de contaminants dont la présence est considérée néfaste dans certains procédés industriels. Par exemple, cette technique peut être efficace pour la mesure de la concentration du monoxyde de carbone (CO) dans l'hydrogène qui joue un rôle nuisible sur la performance des catalyseurs inclus dans les piles à combustible. Elle peut être aussi potentiellement adaptée à la supervision du vieillissement de matériaux solides tels les complexes papier-huile dans les transformateurs de puissance.


Candidat


Directeur de recherche

REMERCIEMENTS

Les travaux qui ont mené à la réalisation de ce travail ont été exécutés au laboratoire des micro-ondes de l'Institut de recherche sur l'hydrogène (IRH) de l'Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR). La direction de ce travail a été assurée par le professeur Dr Jacques Goyette (UQTR) et par le professeur associé Dr Michel F. Fréchette de l'Institut de recherche d'Hydro-Québec à Varennes (IREQ).

Je transmets mes remerciements sincères et spontanés à mon directeur de thèse, le docteur Jacques Goyette, professeur au département de physique de l'UQTR pour ses encouragements, son soutien moral, sa grande disponibilité et son caractère compréhensif. Je pourrais ajouter plusieurs autres qualificatifs envers une personne qui, à mon avis, est digne de mention et de confiance.

J'adresse également toute ma reconnaissance à mon codirecteur de thèse, le docteur Michel F. Fréchette de l'IREQ, pour son appui constant, sa patience, ses conseils et l'intérêt manifeste qu'il a prodigué à mon égard tout au long de la présente recherche. Dans une même mesure, je remercie le directeur de l'IRH, le Dr Tapan K. Bose, pour son enthousiasme contagieux, son esprit d'initiative, son assistance soutenue et ses conseils pratiques.

J'émet ma gratitude à M. Raymond Champagne de l'atelier de mécanique du département de physique (édifice Rutherford) de l'Université McGill, ainsi qu'à M. Robert Thibault de l'atelier de mécanique de l'UQTR pour tout leur temps consacré à l'élaboration, parfois difficile, de certains composants du montage expérimental. Mes remerciements vont pareillement à Mme Monique Bélanger et à M. Raymond Courteau, respectivement technicienne et professionnel à l'IRH, pour les nombreux dépannages dispensés tout au long du projet.

TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ	iv
REMERCIEMENTS	vi
TABLE DES MATIÈRES	viii
LISTE DES FIGURES	x
INTRODUCTION	1
1 PRÉSENTATION ET SYNTHÈSE	5
1.1 ÉTAT DE LA TECHNOLOGIE ET OBJECTIFS DE LA THÈSE	6
1.2 THÉORIE	10
1.2.1 Principe de la méthode différentielle	10
1.2.2 Détermination du coefficient de réflexion	12
1.2.2.1 Variation de la permittivité avec la fréquence de résonance	12
1.2.2.2 Modélisation de la cavité micro-onde	12
1.2.2.2.1 Détermination du facteur de qualité	14
1.2.2.2.2 Couplage	16
1.2.3 Dérivation du signal de sortie	18
1.2.4 Les coefficients du viriel de la constante diélectrique	20
1.2.4.1 Détermination de la concentration détectable	20
1.2.4.2 Détermination du premier coefficient du viriel de la constante diélectrique	21
1.2.4.2.1 Gaz polaire	22
1.2.4.3 Estimation du seuil de détection	22
1.2.5 Simulation de la technique différentielle micro-onde	24
1.2.5.1 Développement des équations de travail	24
1.2.5.1.1 Simulation d'un système idéal	26

1.2.5.1.2	Simulation avec asymétries	26
1.3	RÉSULTATS	27
1.3.1	Essais préliminaires	27
1.3.2	Résultats de la simulation	29
1.3.3	Détection de l'humidité dans le SF ₆	31
1.3.3.1	Modifications au montage différentiel	31
1.3.3.2	Préparation des mélanges	32
1.3.3.3	Résultats finaux	33
	CONCLUSION	35
	 BIBLIOGRAPHIE	 37
2	ARTICLES	41
2.1	PREMIER ARTICLE	42
	-Évaluation d'un dispositif micro-onde différentiel à cavités résonnantes pour la mesure de l'humidité dans les gaz.....	42
	-Investigation of a microwave differential cavity resonator device for the measurement of humidity in gases	43
2.2	DEUXIÈME ARTICLE	48
	-Étude de l'optimisation d'une technique différentielle micro-onde pour la mesure de l'humidité dans les gaz	48
	-Optimization study of a microwave differential technique for humidity measurement in gases	49
2.3	TROISIÈME ARTICLE	56
	-Performance d'un détecteur micro-onde pour la mesure précise de la vapeur d'eau dans les gaz	56
	-Performance of a microwave sensor for the precise measurement of water vapor in gases	57

LISTE DES FIGURES

Figure 1	Schéma fonctionnel de la méthode micro-onde différentielle	11
Figure 2	Schéma du banc d'hygrométrie	32

INTRODUCTION

L'hexafluorure de soufre (SF_6) gazeux est de plus en plus convoité comme isolant électrique dans les appareillages de commutation et les transformateurs de courant traditionnellement isolés à l'huile ou le vide. L'utilisation du SF_6 procure de nombreux avantages reliés à la diminution des dimensions des interrupteurs tout en assurant un minimum d'entretien et une sécurité accrue. De plus, ce gaz possède certaines caractéristiques physico-chimiques intéressantes telles son caractère électronégatif, sa stabilité chimique, sa rigidité diélectrique élevée et sa capacité d'interruption d'arc. Il est aussi ininflammable et non toxique envers l'humain. Toutes ces qualités ont ainsi motivé la compagnie General Electric en 1937 à exploiter ce gaz dans l'équipement électrique.

Cependant, la présence d'un contaminant comme la vapeur d'eau dans le SF_6 dans une plage de concentration donnée affecte sa tenue diélectrique et influence la durée de vie d'un équipement.¹ En effet, la combinaison d'un taux d'humidité trop élevé en présence d'arcs électriques ou de décharges partielles accélère la formation de sous-produits de décomposition,² surtout lorsque la condensation de la vapeur d'eau devient possible. Ce phénomène a un effet néfaste sur la rigidité diélectrique du SF_6 car la molécule est très sensible à la moindre décharge électrique. De plus, ce processus de décharge casse la molécule pour libérer le fluor qui est très actif chimiquement et qui peut se combiner avec l'eau pour former l'acide fluorhydrique (HF), toxique et très corrosif.³⁻⁴ Nous assistons alors à un vieillissement prématuré de l'équipement⁵ qui dépend du temps de transit des sous-produits dans l'appareillage.

La présence de vapeur d'eau dans le SF_6 sec d'équipements blindés provient de la migration d'humidité adsorbée dans les micropores du matériau isolant.⁶⁻⁷ Ainsi, quelque temps après l'installation de l'équipement, le taux d'humidité peut atteindre un niveau suffisamment élevé par rapport à celui toléré dans les conditions normales d'opération. Après un certain temps, le degré d'humidité atteint un niveau d'équilibre⁸ et un échange continu se produit entre les structures isolantes souvent composées de résine époxyde et le gaz.

Selon la conception de l'équipement, le seuil de tolérance admis pour la teneur en eau dans un appareil de coupure comme un disjoncteur varie sur un intervalle de 40 ppm à 800 ppm (ppm \equiv partie par million).⁷ Afin de maintenir l'intégrité du SF₆ et de prolonger la durée de vie des systèmes d'isolation, il devient impératif de superviser le niveau d'humidité et ainsi de minimiser la présence de substances réactives. Par l'établissement d'un calendrier d'entretien, une mesure *in-situ* de la concentration d'humidité serait utile pour prévenir un niveau excessif de vapeur d'eau et des dommages potentiellement irréversibles.

Plusieurs instruments de mesure du taux d'humidité sont maintenant disponibles sur le marché. Ces appareils conventionnellement appelés hygromètre sont examinés extensivement par Carr-Brion.⁹ Malgré la multitude de techniques de détection disponibles, il demeure difficile de discerner l'appareil de choix qui rencontre la majorité des qualités recherchées pour un domaine d'application donné. Par exemple, bien que les spectromètres de masse possèdent un seuil de détection très bas (jusqu'à 0.1 ppb), ils sont encombrants, onéreux et sédentaires. D'autre part, certaines méthodes fonctionnant à partir d'un capteur de type capacitif possèdent une sensibilité réduite (autour de 1 ppm), mais elles jouissent de certains avantages reliés à la compacité et à la mobilité. Nous devons donc établir un compromis entre le coût de l'appareil et sa performance. Nous faisons une revue plus détaillée des techniques de détection dans la prochaine section.

La technique à cavité résonnante micro-onde a été pendant longtemps favorisée pour mesurer des propriétés physiques telles le facteur de compressibilité du méthane,¹⁰ la permittivité complexe des gaz,¹¹ l'indice de réfraction de gaz à haute fréquence¹² et les propriétés diélectriques de micro-émulsions.¹³ La majorité des méthodes à cavité résonnante consistent à mesurer l'effet d'une perturbation dans la cavité¹⁴ ou un changement de la fréquence de résonance dû à la présence d'un gaz dans une cavité préalablement sous vide.¹⁵ De manière générale, plusieurs méthodes micro-ondes sont flexibles par leur habileté à pouvoir mesurer l'humidité d'un matériau à l'état solide ou à l'état gazeux.¹⁶ En effet, cette caractérisation d'un matériau est souvent basée sur la mesure de la constante diélectrique. Bien que la technique de perturbation d'une cavité et

la sonde coaxiale¹⁷ soient des méthodes fonctionnelles pour déterminer le taux d'humidité dans des échantillons solides ayant une morphologie particulière, la technique à cavité résonnante est plus efficace pour la détection de la vapeur d'eau dans les gaz.

L'étude de la variation de l'indice de réfraction de la troposphère a fortement motivé le développement de réfractomètres micro-onde après la deuxième guerre mondiale.¹⁸ Il était alors important de mesurer précisément l'effet de la distribution de l'indice de réfraction sur la propagation des micro-ondes pour la technologie des radars.¹⁹ Les premiers instruments consistaient à mesurer et à enregistrer les changements de la fréquence de résonance d'une cavité résonnante comme élément passif de circuit. L'indice de réfraction, n , était déterminé à partir du rapport des fréquences de résonance de la cavité vide et de la cavité remplie d'un gaz. Les météorologistes ont vite remarqué la potentialité de ces appareils comme détecteurs d'humidité dans l'atmosphère.²⁰ Ainsi, les premiers réfractomètres ont été convertis en hygromètre où le signal de sortie est proportionnel à la pression de vapeur d'eau dans l'air atmosphérique.²¹⁻²²

Depuis quelques années, l'avènement des analyseurs de réseaux conjointement avec l'automatisation des oscillateurs micro-ondes permettent maintenant de déterminer avec précision et rapidité les caractéristiques électriques d'un composant. Récemment, Le Noë et al.¹⁰ ont développé une méthode micro-onde qui consiste à mesurer le signal réfléchi d'une cavité résonnante pour déterminer le facteur de compressibilité du méthane et la permittivité du gaz contaminé à l'eau. Cette technique est suffisamment sensible pour détecter la vapeur d'eau jusqu'à un seuil de 75 ppm à une pression de travail de 2 MPa, mais sa précision devient limitée à basse pression.

Étant donné les besoins de l'industrie électrique pour le contrôle de l'humidité dans le SF₆, nous avons d'abord fait des mesures préliminaires sur le SF₆ contaminé au CO₂ selon la méthode mentionnée plus haut.²³ Un tel mélange est facile à réaliser et le résultat obtenu devrait ainsi se rapprocher du seuil de détection de la vapeur d'eau. La concentration minimale détectable est alors de 3500 ppm à 1 MPa, ce qui est largement

insuffisant selon les normes de tolérance admises de contamination dans l'appareillage de coupure.

Afin d'améliorer la performance de la technique à cavité résonnante, nous avons développé une méthode différentielle micro-onde basée sur la variation du coefficient de réflexion d'une cavité de mesure par rapport à une cavité de référence. Le signal de sortie est alors proportionnel à la quantité de contaminant dans la cavité de mesure. Nous examinons d'abord la faisabilité de la méthode selon l'approche du viriel où la différence entre les premiers coefficients du viriel de la constante diélectrique, A_ϵ , du gaz pur et du contaminant est relié à la variation de la permittivité. La connaissance de ces coefficients combinée à l'évaluation du rapport signal sur bruit du système permet d'estimer la sensibilité du dispositif différentiel. Les résultats expérimentaux préliminaires²⁴ montrent que la technique différentielle est assez sensible pour mesurer un taux d'humidité équivalent de l'ordre de 6 ppm à la pression atmosphérique et à $T = 293$ K.

Nous avons ensuite cherché à optimiser le rendement du système en évaluant l'impact du comportement non-idéal et des asymétries des composants du montage. Nous présentons une simulation²⁵ où nous varions des paramètres physiques qui sont susceptibles d'influencer la performance du système. Suite aux observations obtenues, nous procédons à des mesures réelles de la vapeur d'eau dans le SF_6 . Le seuil de détection tourne maintenant autour de 3 ppm dans les mêmes conditions thermodynamiques.²⁶

L'exposé de ce travail suit le format de la thèse par articles qui est divisée en deux parties. La première partie consiste en une synthèse du contenu des différents articles soumis. Nous exposons de manière concise les objectifs, la théorie et les résultats expérimentaux qui résument le travail en conformité avec les articles. Nous ajoutons au besoin des explications plus détaillées en guise de complément aux articles afin de mieux comprendre l'ensemble du travail. La deuxième partie de la thèse est constituée des articles soumis et acceptés selon les différentes étapes du développement de la technique micro-onde différentielle.

1 PRÉSENTATION ET SYNTHÈSE

1.1 ÉTAT DE LA TECHNOLOGIE ET OBJECTIFS DE LA THÈSE

Il est bien connu que la supervision du taux d'humidité dans l'industrie agro-alimentaire ou dans les gaz utilisés dans des procédés industriels est essentielle afin de prévenir des dommages irréversibles et d'assurer des coûts de production faibles. Par exemple, l'industrie des semi-conducteurs exige une atmosphère en hydrogène sèche pour la fabrication des microprocesseurs,²⁷ tandis que le secteur alimentaire demande une surveillance continue de l'humidité des biens céréaliers pour empêcher le développement bactérien.²⁸

En réponse à cette demande, la littérature scientifique regorge d'une multitude de techniques de détection de l'humidité dans les matériaux. En ce qui nous concerne, nous devons revoir et comparer les différentes méthodes hygrométriques qui sont susceptibles de satisfaire ou non les critères de l'industrie de l'électricité. Nous sommes conscients de l'intérêt grandissant des producteurs d'électricité envers l'hexafluorure de soufre (SF_6) comme isolant électrique, en substitution aux huiles isolantes traditionnelles. De plus, nous savons que l'humidité joue un rôle nuisible, voire même dévastateur, dans la rigidité diélectrique et l'intégrité du SF_6 .³⁻⁵ En effet, plusieurs expertises⁷ indiquent que le fonctionnement adéquat des équipements au SF_6 nécessite une teneur en humidité inférieure en moyenne à 600 ppm. Une inspection en mode *in-situ* du niveau d'humidité devient nécessaire pour éviter la présence de décharges et la formation éventuelle de sous-produits de dégradation.

Parmi la vaste gamme de techniques de mesure de la vapeur d'eau, nous retrouvons essentiellement quatre types d'appareils disponibles sur le marché.^{9,29} D'abord, nous faisons abstraction des instruments spectroscopiques ou chromatographiques qui sont généralement onéreux, difficiles à opérer et à déployer sur un site. De plus, étant donné que l'hygrométrie est une science en émergence, nous ne prétendons pas réaliser une analyse exhaustive des dispositifs de mesure de l'humidité.

La première catégorie d'appareils relève de la famille des sondes capacitives.³⁰ Ils sont constitués d'un substrat (diélectrique) en oxyde de silicium ou en aluminium anodisé poreux recouvert d'une couche métallique conductrice pour former un élément capacitif. La quantité d'humidité à l'intérieur de la structure du substrat influence l'impédance de la capacitance et elle est corrélée à la teneur d'humidité du gaz environnant. Bien que cet appareil soit souvent convoité par ces qualités de temps de réponse rapide et de maniabilité, ainsi que par son habileté à mesurer en mode *in-situ*, il demeure qu'il est très sensible aux gaz réactifs et est victime de dérive. Une calibration fréquente devient nécessaire afin d'assurer une mesure représentative et précise du niveau d'humidité. Il détecte la vapeur d'eau sur une grande plage de concentration, c.-à-d. de 1 ppm à la saturation.

Le deuxième type d'appareil est l'hygromètre à miroir refroidi (à point de rosée).³¹ Il est constitué d'une surface réfléchissante et d'une thermistance connectée à cette surface. Un gaz humide voyage près du miroir refroidi à une température où il y a formation d'une couche condensée à sa surface. Le point de rosée correspondant est relié à la concentration d'humidité à partir de paramètres thermodynamiques. Cette technique est sensible aux impuretés dans le gaz qui contribuent à augmenter superficiellement le point de rosée. Le temps de réponse pour des concentrations autour de 1 ppm prend plusieurs minutes car la température d'opération est alors de -80 °C. Le miroir demande un entretien périodique afin d'empêcher des problèmes de nucléation et l'instrument est encombrant en chantier en plus d'être fragile. Cet hygromètre a une limite de détection de l'ordre de 0.5 ppm.

Les hygromètres à quartz oscillants^{27,31} fournissent une lecture fiable et précise du taux d'humidité (~ 50 ppb) avec un temps de réponse rapide, bien que ces constatations puissent être considérablement contestées d'une analyse à l'autre. L'humidité est détectée par un cristal de quartz enduit d'une résine fortement hygroscopique. Ce cristal est comparé à un autre cristal scellé qui oscille à plus haute fréquence. Le premier cristal est exposé alternativement à l'échantillon (gaz humide) et au gaz de référence (gaz sec) qui a été préalablement filtré par un tamis moléculaire. Les signaux provenant des

différences de fréquences du cristal de mesure par rapport au cristal de référence sont recueillis par un microprocesseur qui calcule la teneur en vapeur d'eau grâce à une expression polynomiale. Cet appareil peut être utilisé en mode *in-situ*. Cependant son prix d'achat semble être en tête de liste à cause de certains composants dispendieux comme un débitmètre massique.

Un autre appareil est la sonde électrochimique.^{27,32} Cette méthode consiste en des électrodes métalliques couvertes d'un matériau absorbant (pentoxide phosphoreux). Ces électrodes électrolysent l'eau et produisent un courant proportionnel au niveau d'humidité. Selon la loi de Faraday, le courant est relié au nombre de molécules d'eau électrolysées. Cet instrument détient un temps de réponse très lent aux faibles concentrations (< 1 ppm) et il demande une période de convalescence (~ 80 heures) après une exposition prolongée à l'air ambiant due à un courant résiduel. L'analyse du contenu en humidité de l'oxygène ou de l'hydrogène est à proscrire car il y a recombinaison. Les cellules se détériorent avec le temps en plus de perdre de la sensibilité lorsqu'elles sont exposées à des contaminants. Cet appareil possède malgré tout la limite la plus basse de détection disponible jusqu'à maintenant autour de 10 ppb.

Nous constatons que certains appareils requièrent une calibration régulière ou un entretien de certaines pièces. D'autres sont sensibles à la présence de contaminants ou de gaz corrosifs. De plus, la majorité des détecteurs sont à vocation unique et ils ne sont fonctionnels que pour la détection de l'humidité. Ces observations nous mènent à croire qu'il existe une niche intéressante pour la conception d'une technique qui a le potentiel de combler certaines lacunes des méthodes hygrométriques actuelles.

Notre mobile est de répondre aux exigences de l'industrie de production d'électricité relatives aux normes et aux recommandations reliées à la qualité du SF₆. Une méthode différentielle optique³³ a été développée récemment à l'IRH et le seuil de vapeur d'eau mesuré est environ 1500 ppm à 1 MPa. Ainsi, afin de pouvoir détecter 150 ppm à la pression atmosphérique, il faudrait augmenter la longueur du parcours optique d'un facteur 100, c.-à-d. des cellules optiques ayant une longueur de près de 20 mètres. Un tel

montage serait techniquement difficile à construire tout en étant davantage sensible aux vibrations.

Nous savons que les méthodes micro-ondes à cavité résonnante représentent un choix convenable pour la mesure de l'humidité dans les gaz. En effet, de nombreuses expertises ont été réalisées dans la bande micro-onde selon la technologie des cavités résonnantes pour l'analyse de la structure de l'eau, ses propriétés diélectriques et sa quantification dans la matière.¹⁶ Nous croyons contribuer à l'avancement de cette technologie par une technique différentielle micro-onde à cavité résonnante. Selon cette perspective, nos objectifs de recherche sont de développer un instrument capable de détecter en mode *in-situ* de 1 à 50 ppm d'eau dans le SF₆ à la pression atmosphérique et à la température ambiante. Cet appareil doit être d'utilisation conviviale et demeurer jusqu'à une certaine limite insensible à la présence de gaz corrosifs tels les sous-produits de décomposition. Il est aussi souhaitable qu'il détienne un temps de réponse relativement rapide et qu'il puisse être adapté à d'autres secteurs d'applications associés à la détection de l'humidité.

1.2 THÉORIE

1.2.1 Principe de la méthode différentielle

La méthode différentielle consiste à mesurer la concentration de contaminant à partir de la différence entre les signaux réfléchis provenant d'une cavité remplie d'un gaz pur et d'une autre remplie d'un gaz contaminé. La figure 1 montre le schéma fonctionnel du montage différentiel micro-onde. Un signal micro-onde porteur généré par un synthétiseur est divisé en deux parties égales. La première partie du signal est mélangée avec un signal de basse fréquence venant d'un amplificateur synchrone formant ainsi un signal modulé au point A du circuit hybride. Une moitié de ce signal se dirige vers le point B où une partie est réfléchi par la cavité de mesure. Nous retrouvons à nouveau deux signaux sortant de la cavité de mesure dont l'un retourne vers le point A où il est absorbé et l'autre vers le point D où il aura subi un changement de phase de 180° . D'autre part, l'autre partie du signal qui se dirige vers le point C est réfléchi par la cavité de référence vers le point D mais il ne subit aucun déphasage. Lorsque les deux cavités sont identiques, c.-à-d. qu'elles contiennent le même gaz, à la même température et à la même pression, nous obtenons au point D deux signaux qui possèdent la même amplitude mais avec une phase opposée. Le signal à la sortie de la jonction hybride est alors zéro. Lorsque le gaz contenu dans la cavité de mesure est contaminé, l'impédance de celle-ci va changer, le signal réfléchi au point B va aussi changer et les deux signaux atteignant le point D ne s'annuleront plus. Nous avons donc à la sortie du circuit hybride un signal qui est une fonction de la quantité de contaminant présent dans le gaz. Ce signal est ensuite amplifié à un niveau suffisamment élevé de manière à pouvoir le mixer avec le signal porteur qui peut être aussi déphasé d'un angle ϕ . Nous avons à la sortie du deuxième mélangeur un signal de basse fréquence qui peut être filtré et mesuré par l'amplificateur synchrone.

Dans la prochaine section, nous dérivons les équations du coefficient de réflexion complexe d'un résonateur micro-onde en fonction de la permittivité afin de déterminer la forme du signal détecté par l'amplificateur synchrone.

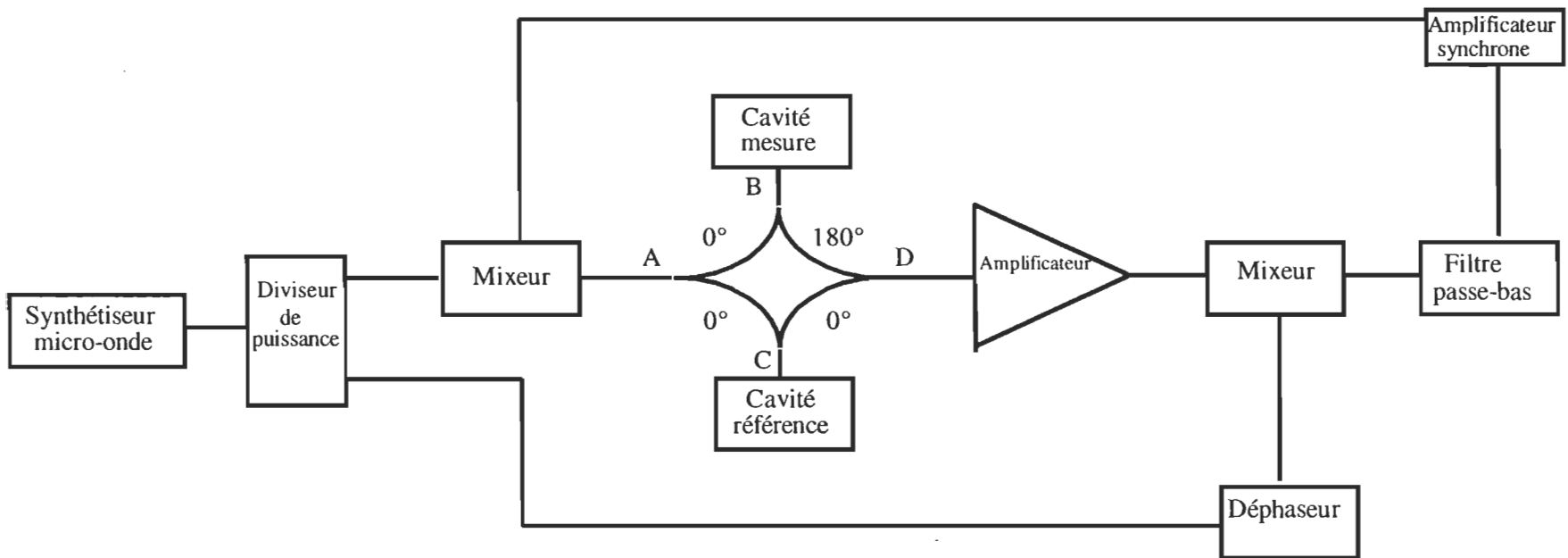


Figure 1: Schéma fonctionnel de la méthode micro-onde différentielle.

1.2.2 Détermination du coefficient de réflexion

1.2.2.1 Variation de la permittivité avec la fréquence de résonance

La technique micro-onde différentielle est basée sur la mesure du changement du coefficient de réflexion d'une cavité résonnante de mesure par rapport à celui d'une cavité résonnante de référence. La fréquence de résonance, f_r , d'une cavité résonnante, qui est complètement remplie d'un matériau qui possède une constante diélectrique ϵ , est donnée par³⁴

$$f_r = \frac{c}{\sqrt{\mu'_r \epsilon'_r}} K, \quad (1.2.2.1)$$

où c est la vitesse de la lumière dans le vide, μ'_r est la perméabilité relative et K est un facteur qui dépend des dimensions de la cavité avec son mode de résonance associé. Étant donné que $\mu'_r = 1$ pour la plupart des gaz et qu'elle ne varie pas avec la fréquence, nous obtenons de l'équation précédente

$$\epsilon'_r = \left(\frac{f_0}{f_r} \right)^2, \quad (1.2.2.2)$$

où f_0 est la fréquence de résonance de la cavité sous vide. La présence d'un contaminant dans l'échantillon gazeux va changer légèrement la constante diélectrique du gaz qui induit à son tour une variation de la fréquence de résonance

$$\frac{\Delta \epsilon'_r}{\epsilon'_r} = -2 \frac{\Delta f_r}{f_r}, \quad (1.2.2.3)$$

où nous supposons que la permittivité complexe $\epsilon^* = \epsilon'_r$, c.-à-d. que nous négligeons les pertes associées au gaz pur et dans une moindre mesure celles associées au contaminant.

1.2.2.2 Modélisation de la cavité micro-onde

L'admittance, Y , d'un résonateur micro-onde peut être représentée pour un mode de résonance par un circuit RLC en parallèle³⁵ selon la relation

$$Y = \frac{\omega LG - j(1 - \omega^2 LC)}{\omega L}, \quad (1.2.2.4)$$

où L est l'inductance, G la conductance, C la capacitance et $\omega = 2\pi f$. D'autre part, le coefficient de réflexion complexe est une fonction de l'admittance selon la relation bien connue

$$\Gamma^* = \frac{Y_0 - Y}{Y_0 + Y}, \quad (1.2.2.5)$$

où Y_0 représente l'admittance caractéristique du système connecté à la cavité. Sachant que nous pouvons écrire l'admittance selon la forme

$$Y = G + jB, \quad (1.2.2.6)$$

où B est la susceptance, et que $G = 1/R$, $f_r = 1/(2\pi\sqrt{LC})$ et $Q = R/2\pi f_r L$, alors les parties réelle et imaginaire du coefficient de réflexion selon les équations (1.2.2.4) à (1.2.2.6) sont respectivement

$$\Gamma' = \frac{Y_0^2 - G^2 - Q^2 G^2 \left(\frac{f}{f_r} - \frac{f_r}{f} \right)^2}{(Y_0 + G)^2 + Q^2 G^2 \left(\frac{f}{f_r} - \frac{f_r}{f} \right)^2} \quad (1.2.2.7)$$

et

$$\Gamma'' = \frac{-2Y_0 Q G \left(\frac{f}{f_r} - \frac{f_r}{f} \right)}{(Y_0 + G)^2 + Q^2 G^2 \left(\frac{f}{f_r} - \frac{f_r}{f} \right)^2}. \quad (1.2.2.8)$$

Pour des raisons pratiques, nous effectuons l'expansion en série de Taylor des fonctions précédentes près de la fréquence de résonance. Le calcul a été réalisé grâce au logiciel Mathematica[®]. Nous obtenons ainsi jusqu'au deuxième ordre

$$\Gamma' = \frac{Y_0 - G}{Y_0 + G} - \frac{8Q^2 G^2 Y_0}{(Y_0 + G)^3} \left(1 - \frac{f}{f_r} \right)^2 + \dots \quad (1.2.2.9)$$

et

$$\Gamma'' = \frac{2(f^2 - 4ff_r + 3f_r^2)GQY_0}{f_r^2(G + Y_0)^2} + \dots \quad (1.2.2.10)$$

On remarque facilement que Γ' est maximum et que Γ'' est nul à la résonance. Si nous supposons maintenant que nous avons des cavités identiques, alors la variation du coefficient de réflexion ne peut provenir que du changement de la fréquence de résonance de la cavité de mesure. Suivant ce raisonnement, nous avons

$$\Delta\Gamma = \frac{\partial\Gamma}{\partial f_r} \Delta f_r, \quad (1.2.2.11)$$

et à partir des équations (1.2.2.3) et (1.2.2.9) à (1.2.2.11) nous trouvons que

$$\Delta\Gamma' = \frac{8Q^2 G^2 Y_0}{(Y_0 + G)^3} \left(\frac{f}{f_r} \right) \left(1 - \frac{f}{f_r} \right) \left(\frac{\Delta\epsilon_r'}{\epsilon_r'} \right) \quad (1.2.2.12)$$

et

$$\Delta\Gamma'' = \frac{2QGY_0}{(Y_0 + G)^2} \left(\frac{f}{f_r} \right) \left(2 - \frac{f}{f_r} \right) \left(\frac{\Delta\epsilon_r'}{\epsilon_r'} \right), \quad (1.2.2.13)$$

où rappelons-le, f_r est la fréquence de résonance de la cavité lorsqu'elle est remplie d'un gaz pur et ϵ_r' est la constante diélectrique du gaz pur.

1.2.2.2.1 Détermination du facteur de qualité

Un paramètre important qui influence la sensibilité du système différentiel, comme le démontrent les équations (1.2.2.12) et (1.2.2.13), est le facteur de qualité, Q , d'une cavité qui est défini comme le ratio de l'énergie emmagasinée sur l'énergie dissipée par période. Afin de déterminer la valeur de ce facteur pour un mode de propagation donné, nous devons dériver les équations de champ, soit pour les modes à champ électrique transversal, TE, ou pour les modes à champ magnétique transversal, TM. Nous retrouvons deux types de cavité à géométrie simple, c.-à-d. la cavité rectangulaire et la cavité cylindrique. Les composantes du champ sont calculées à partir des équations d'onde vectorielle déduites des formules de Maxwell et des lois de Faraday et d'Ampère. Ces équations pour les champs électriques et magnétiques dans un espace sans charge sont³⁶

$$\nabla^2 \vec{E} + \omega^2 \epsilon \mu \vec{E} = 0 \quad (1.2.2.14)$$

et

$$\nabla^2 \vec{H} + \omega^2 \epsilon \mu \vec{H} = 0 \quad (1.2.2.15)$$

Pour des raisons que nous allons décrire plus loin, nous retenons le mode TE_{nmp} pour une cavité cylindrique, où les indices n , m et p représentent le nombre de périodes complètes ou de demi-périodes de variation d'une composante du champ par rapport à un axe donné. La résolution des équations (1.2.2.14) et (1.2.2.15) en coordonnées cylindriques, pour une cavité ayant un diamètre D et une longueur l , est réalisée grâce à la méthode de séparation de variables et par les conditions aux frontières.³⁷ On obtient ainsi les trois composantes du champ électrique pour le mode TE_{nmp}

$$E_r = j\omega_r \mu \frac{H_0}{k_c^2} \frac{n}{r} J_n(k_c r) \sin n\phi \sin k_z z, \quad (1.2.2.16)$$

$$E_\phi = j\omega_r \mu \frac{H_0}{k_c} J_n'(k_c r) \cos n\phi \sin k_z z, \quad (1.2.2.17)$$

$$E_z = 0, \quad (1.2.2.18)$$

où H_0 est une constante proportionnelle à l'amplitude du signal, J_n est la n ème fonction de Bessel et J_n' est la dérivée de J_n par rapport à $k_c r$. Aussi, $k_z = p\pi/l$ et $k_c = q'_{nm}/a$ où q'_{nm} est le m ème zéro (racine) de la première dérivée de la n ème fonction de Bessel. Ainsi pour le mode TE_{01p} nous retrouvons seulement la composante azimutale³⁸ (éq. (1.2.2.17)) et le facteur de qualité est calculé à partir de l'énergie électrique emmagasinée dans un volume V selon la relation³⁹

$$U = \frac{1}{2} \int_V \vec{D} \cdot \vec{E} dV, \quad (1.2.2.19)$$

où $\vec{D} = \epsilon \vec{E}$. En considérant que nous avons des pertes générées par la résistivité, R_s , des parois latérales de la cavité et des deux couvercles, nous obtenons en posant que $Q \propto U/R_s$

$$Q = \frac{\lambda_r}{2\pi\delta_s} \frac{\left[(q'_{01})^2 + \left(\frac{p\pi D}{2l} \right)^2 \right]^{\frac{3}{2}}}{(q'_{01})^2 + \frac{D}{l} \left(\frac{p\pi D}{2l} \right)^2}, \quad (1.2.2.20)$$

où $\delta_s = (\pi f \mu_R \mu_0 \sigma)^{-1/2}$ est la profondeur de peau du matériau à la résonance qui compose la cavité et $q'_{01} = 3.832$.⁴⁰ Cette fonction est maximale pour $D/l \approx 1$. Ainsi, pour le mode TE_{011} à la fréquence de résonance $f_r = 10$ GHz, avec une cavité plaquée en argent ($\mu_R = 1$ et $\sigma = 6.12 \times 10^7$ mhos/m), on peut s'attendre à obtenir un facteur Q de l'ordre de 35000.

L'autre avantage d'utiliser un mode de la famille TE_{01p} est la facilité de pouvoir syntoniser la fréquence de résonance qui nous intéresse grâce à un mécanisme d'accord simple (piston) que nous insérons à une extrémité de la cavité. Étant donné qu'il n'y a aucun courant qui circule entre la paroi latérale et les couvercles, nous évitons les contacts intermittents qui pourraient autrement interférer dans l'ajustement de la résonance.

1.2.2.2.2 Couplage

Afin de pouvoir exciter un mode particulier, en occurrence le mode TE_{011} , nous devons coupler la cavité à une source externe. Il existe essentiellement deux façons de coupler la cavité à une charge extérieure, soit par l'insertion d'un élément de couplage tel une antenne proprement orientée ou un guide d'onde que nous appliquons contre un iris circulaire dans la paroi de la cavité. Nous avons choisi la dernière alternative car l'absence d'une boucle de couplage à l'intérieur de la cavité nous permet techniquement de réaliser un meilleur accord de la résonance grâce au déplacement du piston.

Un guide d'onde rectangulaire de type WR-112 (7.05 GHz – 10 GHz), par exemple, qui opère selon le mode fondamental TE_{10} peut être couplé à la cavité pour générer le mode TE_{011} . Dans ce système de cavité couplée, il s'agit de disposer le guide d'onde de telle sorte que l'axe de la cavité soit parallèle à la grande dimension du guide. Le champ électrique du mode TE_{10} est alors converti au champ électrique du mode TE_{011} dans la cavité. L'autre étape consiste à choisir le diamètre de l'iris afin d'obtenir le maximum de couplage où toute la puissance incidente est absorbée par la cavité (couplage critique). Il est possible d'approcher ce problème avec la représentation du système par un circuit équivalent où il s'agit de déterminer le paramètre de couplage.³⁷ Ce paramètre défini

comme $\beta = Z_0/R$ mesure la facilité avec laquelle l'énergie accumulée dans la cavité est couplée à la charge extérieure. Il est cependant difficile de formuler théoriquement une expression analytique qui tient compte de tous les éléments du circuit. Nous avons donc choisi une approche expérimentale où nous varions simplement le diamètre de l'iris jusqu'à ce que nous obtenions le couplage critique, c.-à-d. lorsque $\beta \approx 1$.

Il faut aussi considérer la présence de modes dégénérés qui possèdent une fréquence de résonance identique à celle du mode d'intérêt. Les fréquences de résonance associées aux modes de la famille TE_{01p} résonnent simultanément avec celles associées aux modes de la famille TM_{11p} . Même si dans notre cas le mode TM_{111} se produit intrinsèquement en même temps que le mode TE_{011} , il est possible de dissocier expérimentalement les deux modes selon certaines positions du piston.

1.2.3 Dérivation du signal de sortie

Nous démontrons maintenant de manière détaillée la forme du signal que nous lisons à la sortie de l'amplificateur synchrone (lock-in). Nous négligeons pendant la démonstration les pertes associées aux lignes de transmission. À l'entrée du premier mélangeur nous avons deux signaux

$$V'_{SYN} = \frac{\tilde{V}_{SYN}}{2} \exp j(\omega_c t + \phi_1) \quad (1.2.3.1)$$

et

$$V_m = \tilde{V}_m \exp j(\omega_m t + \phi_2), \quad (1.2.3.2)$$

où \tilde{V}_{syn} , ϕ_1 , \tilde{V}_m et ϕ_2 , sont les amplitudes et les phases des signaux oscillants provenant du synthétiseur micro-onde et du lock-in, respectivement. La fréquence du signal de modulation est beaucoup plus petite que la fréquence de l'onde porteuse ($\omega_m \ll \omega_c$).

À la sortie du premier mélangeur nous avons

$$V_{SM1} = \frac{\tilde{V}_{SYN} \tilde{V}_m}{2} \{ \exp j[(\omega_c + \omega_m)t + \phi_1] + \exp j[(\omega_c - \omega_m)t + \phi_1] \}, \quad (1.2.3.3)$$

où nous posons que $\phi_2 = 0$. Le signal sortant de la jonction hybride a la forme

$$V_{SH} = \frac{\tilde{V}_{SYN} \tilde{V}_m}{2} \Delta \Gamma^* \{ \exp j[(\omega_c + \omega_m)t + \phi_1] + \exp j[(\omega_c - \omega_m)t + \phi_1] \}, \quad (1.2.3.4)$$

où $\Delta \Gamma^*$ est la différence entre le coefficient de réflexion complexe de la cavité de mesure et celui de la cavité de référence. Le signal est ensuite amplifié pour permettre de le mixer avec le signal porteur. Nous avons ainsi à l'entrée du deuxième mélangeur deux signaux incidents

$$V_S = \frac{\tilde{V}_{SYN} \tilde{V}_m}{2} A \Delta \Gamma^* \{ \exp j[(\omega_c + \omega_m)t + \phi_1] + \exp j[(\omega_c - \omega_m)t + \phi_1] \} \quad (1.2.3.5)$$

et

$$V_{SYN} = \frac{\tilde{V}_{SYN}}{2} \exp j(\omega_c t + \phi_3), \quad (1.2.3.6)$$

où A est une constante d'amplification (gain) et ϕ_3 est maintenant la phase du signal du synthétiseur à l'entrée du deuxième mélangeur. À la sortie de ce mélangeur nous avons

$$V_{SM2} = \frac{\tilde{V}_{SN}^2 \tilde{V}_m}{4} A \Delta \Gamma^* \left\{ \exp j[(2\omega_c + \omega_m)t + (\phi_1 + \phi_3)] + \exp j[(\omega_m t + (\phi_1 - \phi_3))] \right. \\ \left. + \exp j[(2\omega_c - \omega_m)t + (\phi_1 + \phi_3)] + \exp j[-\omega_m t + (\phi_1 - \phi_3)] \right\} \cdot (1.2.3.7)$$

Le signal à l'entrée du lock-in est alors

$$V_{SM2} = \frac{\tilde{V}_{SN}^2 \tilde{V}_m}{4} A \Delta \Gamma^* \left\{ \exp j[(\omega_m t + (\phi_1 - \phi_3))] + \exp j[-\omega_m t + (\phi_1 - \phi_3)] \right\}, \quad (1.2.3.8)$$

sachant que les signaux supérieurs à ω_m seront éliminés par le filtre passe-bas du lock-in. Ce signal est mélangé à nouveau avec le signal de référence interne du lock-in à la fréquence ω_m avec la phase ajustable ϕ_{REF}

$$V_r = \tilde{V}_r \exp j(\omega_m t + \phi_{REF}). \quad (1.2.3.9)$$

En ne conservant que la partie réelle du signal de sortie du lock-in, nous retrouvons le signal suivant

$$V_{LI} = C \left\{ \Delta \Gamma' \cos(\phi_1 - \phi_3 - \phi_{REF}) + \Delta \Gamma' \cos(\phi_1 - \phi_3 + \phi_{REF}) \right. \\ \left. - \Delta \Gamma'' \sin(\phi_1 - \phi_3 - \phi_{REF}) - \Delta \Gamma'' \sin(\phi_1 - \phi_3 + \phi_{REF}) \right\}, \quad (1.2.3.10)$$

où C est une constante. Nous verrons à la section 1.2.5 que nous avons un maximum de sensibilité lorsque le signal dépend uniquement de la partie imaginaire du coefficient de réflexion. En posant que $\Delta\phi = \phi_1 - \phi_3$ nous aurons

$$|V_{LI}| = C \left\{ \Delta \Gamma'' \sin(\Delta\phi - \phi_{REF}) - \Delta \Gamma'' \sin(\Delta\phi + \phi_{REF}) \right\}, \quad (1.2.3.11)$$

où l'argument de la fonction sin doit être un multiple de 90° . Cette condition est respectée pour $\Delta\phi = 90^\circ$ et $\phi_{REF} = 0^\circ$ ou $\pm 180^\circ$.

1.2.4 Les coefficients du viriel de la constante diélectrique

1.2.4.1 Détermination de la concentration détectable

Afin d'estimer le seuil de détection ou la sensibilité de la méthode différentielle, nous devons trouver une relation entre le changement de la constante diélectrique dû à la présence d'un contaminant et une variable thermodynamique. Dans le cas d'un gaz réel, il est possible d'exprimer la permittivité d'un gaz en fonction de sa densité selon l'équation de Clausius-Mossotti.⁴¹ Cette fonction peut être développée en série du viriel de puissances de la concentration molaire volumique ρ

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} = CM = A_\varepsilon \rho + B_\varepsilon \rho^2 + C_\varepsilon \rho^3 + \dots, \quad (1.2.4.1)$$

où les coefficients A_ε , B_ε et C_ε sont respectivement le premier, le deuxième et le troisième coefficients du viriel de la constante diélectrique. Le premier coefficient représente la contribution de la molécule isolée à la polarisation diélectrique tandis que le deuxième et le troisième coefficients représentent les interactions entre paires de molécules et entre triplets de molécules.⁴²⁻⁴³ Étant donné que nous travaillons à des pressions relativement basses ($\ll 100$ atm),⁴¹ la densité va suivre le comportement d'un gaz idéal où seulement le premier terme de l'expansion du viriel est considéré à l'équation (1.2.4.1). La constante diélectrique est alors selon la série du binôme

$$\varepsilon = \frac{1 + 2A_\varepsilon \rho}{1 - A_\varepsilon \rho} \approx 1 + 3A_\varepsilon \rho \cdot \quad (1.2.4.2)$$

D'autre part, le premier coefficient du viriel de la constante diélectrique d'un mélange binaire⁴¹ ou d'un gaz contaminé, $(A_\varepsilon)_m$, est une fonction de la fraction molaire, x , du contaminant, $(A_\varepsilon)_c$, et du premier coefficient du viriel du gaz pur, $(A_\varepsilon)_p$, selon la relation suivante

$$(A_\varepsilon)_m = (1 - x)(A_\varepsilon)_p + x(A_\varepsilon)_c \cdot \quad (1.2.4.3)$$

À partir de l'équation (1.2.4.2), nous obtenons pour la constante diélectrique du mélange et la constante diélectrique du gaz pur respectivement

$$\varepsilon_m = 1 + \mathfrak{Z}(A_\varepsilon)_m \rho_m \quad (1.2.4.4)$$

et

$$\varepsilon_p = 1 + \mathfrak{Z}(A_\varepsilon)_p \rho_p \quad (1.2.4.5)$$

Sachant que $\Delta\varepsilon = \varepsilon_m - \varepsilon_p$ et en substituant l'équation (1.2.4.3) nous trouvons, en supposant que la densité molaire du mélange, ρ_m , est approximativement identique à la densité du gaz pur, ρ_p ($\rho_m \approx \rho_p = \rho$), que

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} = \frac{3\chi\rho[(A_\varepsilon)_c - (A_\varepsilon)_p]}{1 + 3\rho(A_\varepsilon)_p}, \quad (1.2.4.6)$$

où $\rho = P/RT$ (loi des gaz parfaits), P est la pression, T est la température absolue et R est la constante universelle des gaz ($R = 8.31 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1} = 8.31 \text{ Pa m}^3 \text{ mol}^{-1}$).⁴⁴

1.2.4.2 Détermination du premier coefficient du viriel de la constante diélectrique

Le premier coefficient du viriel de la constante diélectrique d'un gaz est obtenu en effectuant une mesure absolue de la constante diélectrique en fonction de la pression. D'abord, on peut exprimer l'équation d'état du viriel selon un polynôme en série de puissances de la concentration molaire volumique selon l'équation⁴⁵

$$\frac{P}{RT} = \rho + B_p \rho^2 + C_p \rho^3 + \dots, \quad (1.2.4.7)$$

où B_p et C_p sont respectivement le deuxième et le troisième coefficients du viriel thermophysique. Ces coefficients décrivent de manière similaire à l'équation (1.2.4.1) les interactions entre paires et triplets de molécules. En remplaçant ρ en termes de P dans l'équation (1.2.4.1) nous obtenons

$$[CM] \frac{RT}{P} = A_\varepsilon + \frac{B_\varepsilon - A_\varepsilon B_p}{A_\varepsilon} [CM] + \dots \quad (1.2.4.8)$$

Un graphique de $[CM]RT/P$ en fonction de $[CM]$ donne une droite dont l'ordonnée à l'origine est A_ε . Nous considérons une plage de pression où la contribution du troisième terme est négligeable. Le calcul de $[CM]$ est accompli grâce à l'équation (1.2.2.2).

1.2.4.2.1 Gaz polaire

L'équation de Clausius-Mossotti a été modifiée par Debye⁴⁶ afin de tenir compte du moment dipolaire permanent, μ_0 , d'une molécule polaire. Ainsi, le premier coefficient du viriel de la constante diélectrique dépend maintenant de la température selon l'expression suivante

$$A_{\epsilon} = \frac{N_A}{3\epsilon_0} \left(\alpha_0 + \frac{\mu_0^2}{3kT} \right), \quad (1.2.4.9)$$

où N_A est le nombre d'Avogadro ($N_A = 6.022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$), α_0 est la polarisabilité totale d'une molécule isolée et k la constante de Boltzmann ($k = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$). Étant donné que nous nous intéressons à la détection de la vapeur d'eau, nous allons chercher à évaluer le premier coefficient du viriel de l'eau, $(A_{\epsilon})_{\text{eau}}$, à l'état gazeux. Nous supposons que les molécules d'eau comme composant minoritaire dans un mélange sont isolées les unes les autres. Sachant que la molécule d'eau n'est pas symétrique, la polarisabilité totale est calculée à partir de trois composantes mutuellement perpendiculaires suivant les axes d'un ellipsoïde (α_{xx} , α_{yy} et α_{zz}).⁴⁷ La valeur de α_0 est alors obtenue par le tiers de la somme des composantes et donc $(\alpha_0)_{\text{eau}} = 1.636 \times 10^{-40} \text{ F m}^2$. La valeur du moment dipolaire de la molécule d'eau étant bien connue,⁴¹ $(\mu_0)_{\text{eau}} = 1.855 \text{ D} = 6.188 \times 10^{-30} \text{ Cm}$, les calculs nous donnent $(A_{\epsilon})_{\text{eau}} = 75.31 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ mol}^{-1}$.

1.2.4.3 Estimation du seuil de détection

Dans cette section, nous évaluons le rapport signal sur bruit (S/N) pour estimer la concentration minimale détectable de contaminant. Premièrement, si nous balayons avec l'onde porteuse sur une plage de fréquences comparable à la largeur de la résonance, nous allons avoir selon l'équation (1.2.2.13)

$$\Delta\Gamma'' \approx \frac{1}{2} \frac{\Delta\epsilon_r'}{\epsilon_r}, \quad (1.2.4.10)$$

où nous n'avons considéré que l'expansion au premier ordre et que près de la résonance $Y_0 \approx G$. Sachant que l'amplificateur micro-onde, situé à la sortie de la jonction hybride, a

un gain de 30 dB, que nous ajustons la phase du signal de référence de manière à obtenir un signal proportionnel à $\Delta\Gamma''$ (éq. 1.2.3.10) et que l'amplitude du signal de modulation est de l'ordre de 0.5 V, le signal de sortie sera selon l'équation (1.2.3.11)

$$V_{LI} \approx 2(V) \left(\frac{\Delta\epsilon_r'}{\epsilon_r} \right). \quad (1.2.4.11)$$

Pour évaluer le bruit du système, nous considérons le bruit Johnson,³⁸ ou bruit d'agitation thermique, provenant de l'impédance, R_s , de la source de l'amplificateur micro-onde. Le facteur de bruit (NF) de l'amplificateur est donné par⁴⁸

$$NF = 10 \log_{10} \left(\frac{V_n^2}{4kTR_s\Delta\nu} \right), \quad (1.2.4.12)$$

où V_n^2 est la tension de bruit quadratique et $\Delta\nu$ est la largeur du filtre passe-bande de l'amplificateur synchrone. Sachant que $1/R_s = Y_0 = 0.02$ S à $T = 273$ K et que $NF = 13$ dB selon la fiche technique de l'amplificateur micro-onde, nous trouvons que $V_n \cong 4.02 \times 10^{-9} \sqrt{\Delta\nu}$. Le rapport S/N vaut donc

$$\frac{V_{LI}}{V_n} \cong \frac{5 \times 10^8}{\sqrt{\Delta\nu}} \frac{\Delta\epsilon_r'}{\epsilon_r}. \quad (1.2.4.15)$$

La table I du chapitre 2.1 rapporte la valeur estimée des seuils de détection de la vapeur d'eau dans certains gaz à $T = 293$ K et à la pression atmosphérique ($P = 101$ kPa) selon les équations (1.2.4.6) et (1.2.4.15). Nous considérons un rapport S/N de dix avec une largeur de bande du lock-in de 1 Hz. Nous voyons que la valeur moyenne estimée de la concentration minimale détectable est légèrement au-dessus de 2 ppm.

1.2.5 Simulation de la technique différentielle micro-onde

1.2.5.1 Développement des équations de travail

Nous présentons maintenant les équations de travail pour démontrer les conditions pour lesquelles il serait possible d'optimiser le rendement du système différentiel. Nous savons de toute évidence que la méthode différentielle comporte des asymétries relatives aux dimensions géométriques respectives des cavités et aux paramètres électriques des branches de mesure et de référence. Il devient ainsi important de mesurer l'impact de ces variations sur la sensibilité de la méthode.

Le signal de sortie (éq. 1.2.4.11) suit une situation idéalisée et une version plus générale devrait être

$$V_{LI} = 2 \frac{\Delta \varepsilon_r'}{\varepsilon_r} + \frac{\partial V_{LI}}{\partial f_r} \Delta f_r + \frac{\partial V_{LI}}{\partial Q} \Delta Q + \frac{\partial V_{LI}}{\partial R_0} \Delta R_0 + \frac{\partial V_{LI}}{\partial L_a} \Delta L_a + \frac{\partial V_{LI}}{\partial \ell} \Delta \ell + \frac{\partial V_{LI}}{\partial A_r} \Delta A_r + \frac{\partial V_{LI}}{\partial \theta} \Delta \theta, \quad (1.2.5.1)$$

où Δf_r , ΔQ , ΔR_0 et ΔL_a sont les différences entre les fréquences de résonance des deux cavités ne provenant pas de $\Delta \varepsilon$, les facteurs de qualité des cavités, les résistances à la résonance et les inductances des antennes, respectivement. De plus, $\Delta \ell$ est la différence entre les longueurs des lignes de transmission joignant les cavités au circuit hybride. Finalement, A_r est l'amplitude relative des signaux transmis dans les canaux ABD et ACD (voir figure 1 de la page 11) du circuit hybride ($\Delta A_r = A_r - 0.5$), tandis que θ est le déphasage relatif des signaux dans ces deux canaux ($\Delta \theta = \theta - 180^\circ$).

Nous pouvons réécrire l'équation (1.2.2.4) selon la forme suivante³⁵

$$Z_c = \frac{R_0 \left(1 - jQ \left(\frac{f}{f_r} - \frac{f_r}{f} \right) \right)}{1 + Q^2 \left(\frac{f}{f_r} - \frac{f_r}{f} \right)^2}, \quad (1.2.5.2)$$

où Z_c est l'impédance d'entrée de la cavité. La cavité est couplée à un guide d'onde rectangulaire qui possède une impédance caractéristique $Z_g = 50 \Omega$ et une longueur l_g . L'impédance est alors

$$Z_{fg} = Z_g \left[\frac{Z_c + jZ_g \tan 2\pi f l_g / c}{Z_g + jZ_c \tan 2\pi f l_g / c} \right], \quad (1.2.5.3)$$

où c est la vitesse de la lumière dans le guide d'onde. L'impédance, Z_b , à l'entrée du guide incluant l'antenne est

$$Z_b = Z_{fg} + j2\pi f l_a. \quad (1.2.5.4)$$

L'impédance totale, Z_e , à la porte du circuit hybride est ainsi donnée par

$$Z_e = Z_0 \left[\frac{Z_b + jZ_0 \tan 2\pi f l / c}{Z_0 + jZ_b \tan 2\pi f l / c} \right], \quad (1.2.5.5)$$

où $Z_0 = 50 \Omega$ est l'impédance caractéristique de la ligne joignant le guide à la jonction hybride. Le coefficient de réflexion aux portes B et C de la jonction hybride est

$$\Gamma^* = \frac{Z_{ei} - Z_0}{Z_{ei} + Z_0}, \quad (1.2.5.6)$$

où $i = B$ ou C . En supposant que le signal d'entrée à la porte A de la jonction est V_A , alors le signal de sortie, V_D , à la porte D sera

$$V_D^* = A_B \Gamma_B \cos \theta + A_C \Gamma_C, \quad (1.2.5.7)$$

où A_B et A_C sont les amplitudes des signaux incidents aux portes B et C respectivement.

Finalement, si V'_D et V''_D sont respectivement les parties réelles et imaginaires de V_D alors le signal V_{LI} à l'entrée de l'amplificateur synchrone est

$$V_{LI} = V'_D \cos \Delta \phi - V''_D \sin \Delta \phi, \quad (1.2.5.8)$$

où $\Delta \phi$ est le déphasage.

La première partie de la simulation consiste à varier les paramètres des équations (1.2.5.2) à (1.2.5.8) selon les valeurs de la Table I du chapitre 2.2. Pour un ensemble de paramètres donnés, V_{LI} est calculé en fonction de la fréquence pour des valeurs spécifiques de $\Delta \epsilon$ ($0 \leq \Delta \epsilon \leq 10^{-6}$). Les valeurs de la sensibilité sont déduites à partir de la

partie linéaire de la pente de V_{LI} en fonction de $\Delta\epsilon$ selon trois fréquences dont l'une est la fréquence de la cavité de référence. La fréquence de résonance est fixée à 7.8 GHz, ce qui correspond à une cavité résonnante ayant comme dimensions une hauteur de 5 cm et un diamètre de 5 cm.

1.2.5.1.1 Simulation d'un système idéal

Nous considérons ici un système idéal pour lequel nous avons des cavités résonnantes semblables, un circuit hybride parfait et des lignes de transmission identiques. Nous envisageons ainsi de varier quatre paramètres, soient la longueur des lignes de transmission, le facteur de qualité, la résistance à la résonance et l'inductance de l'antenne. Nous varions un des paramètres du circuit afin de trouver la valeur optimale pour le rendement du système.

1.2.5.1.2 Simulation avec asymétries

Cette partie de la simulation consiste à examiner les effets des asymétries sur la sensibilité du système lorsque les circuits de mesure et de référence ne sont pas parfaitement identiques. Dans la section *Résultats*, nous décrirons succinctement les conclusions tirées de la simulation et nous comparons celles-ci avec des résultats expérimentaux.

1.3 RÉSULTATS

1.3.1 Essais préliminaires

Les essais préliminaires font l'objet du premier article publié au chapitre 2.1.²⁴ Les premiers essais sur la performance de la méthode différentielle ont été réalisés avec des cavités cylindriques selon le mode de résonance TE_{112} . Elles ont une hauteur et un diamètre de 0.1 m et un facteur de qualité théorique de 32000 environ calculé selon une forme plus générale de l'équation (1.2.2.20).⁴⁹ Une antenne est disposée sur la paroi de la cavité et la fréquence de résonance à vide est environ $f_0 \approx 3.477$ GHz mesurée à partir d'un analyseur de réseaux (HP8510B). Nous syntonisons la résonance des deux cavités à l'aide de tiges métalliques que nous insérons là où le champ électrique est maximum. Les cavités sont munies de petits orifices sur les couvercles de manière à éviter des déformations mécaniques et de permettre l'admission et l'échappement des gaz. Chaque cavité est disposée à l'intérieur de cellules en acier inoxydable par lesquelles le gaz est admis directement.

La première série de mesures sur le système différentiel sert à valider l'estimation théorique de la sensibilité et du seuil de détection. Dans ce but, nous mesurons le signal de sortie enregistré sur l'amplificateur synchrone lorsque nous créons un déséquilibre de pression entre la cavité de mesure et celle de référence. La saisie de données est faite autour de deux atmosphères de pression et les deux cavités sont initialement remplies d'un même gaz. Les petites variations de pression sont effectuées à partir de la cavité de mesure en gardant la pression constante sur la cavité de référence. Nous avons considéré deux gaz nobles (non polaires), soient l'argon et l'hélium, dont les premiers coefficients du viriel de la constante diélectrique sont bien connus dans la littérature.

En utilisant l'équation (1.2.4.2), la différence de pression, ΔP , entre les deux cavités est équivalente à une différence de la constante diélectrique selon la relation

$$\Delta \epsilon = \frac{\mathfrak{F}(A_\epsilon)}{RT} \Delta P. \quad (1.3.1.1)$$

Sachant que $(A_\epsilon)_{\text{Ar}} = 4.14 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}$ et que $(A_\epsilon)_{\text{He}} = 0.5196 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}$,⁴¹ selon les valeurs de la Table I du chapitre 2.1, alors nous obtenons pour l'argon et l'hélium respectivement à $T = 293 \text{ K}$

$$\Delta\epsilon = 5.10 \times 10^{-3} \Delta P \quad (1.3.1.2)$$

et

$$\Delta\epsilon = 6.40 \times 10^{-4} \Delta P. \quad (1.3.1.3)$$

Ainsi, l'effet de cette différence de pression (exprimée en MPa) sur le signal détecté est équivalent à la présence d'un contaminant dans le gaz qui remplit la cavité de mesure lorsqu'elle est à pression égale avec la cavité de référence. Le balayage de la fréquence de mesure se fait manuellement à partir du synthétiseur micro-onde. Nous prenons donc le nombre de mesures nécessaires jusqu'à ce que nous obtenions un comportement non-linéaire de la tension de sortie en fonction de $d\epsilon$. La sensibilité est calculée à partir de la région linéaire des graphiques 2 (a) et 2 (b) du chapitre 2.1. La Table II rapporte les valeurs expérimentales de la sensibilité à $P = 0.1 \text{ MPa}$. Il est possible de calculer la sensibilité pour une quantité équivalente de vapeur d'eau grâce à l'équation (1.2.4.6). Ainsi, la sensibilité calculée selon l'argon et l'hélium est de $(3.03 \pm 0.05) \times 10^{-2} \mu\text{V}/\text{ppm}$ et $(3.11 \pm 0.04) \times 10^{-2} \mu\text{V}/\text{ppm}$, respectivement.

Ces résultats signifient que la méthode différentielle est capable de détecter environ 6 ppm de vapeur d'eau dans un échantillon contaminé maintenu à la pression atmosphérique et à la température de la pièce. Ce seuil de détection est supérieur à celui estimé à la Table I selon différents gaz. Cette différence peut découler de l'effet conjugué du comportement non-idéal de certains composants du montage et d'une sous-évaluation du bruit dans le système. Notons que le seuil de détection est défini, par convention, comme la limite de détection qui correspond à la quantité de vapeur d'eau mesurable lorsque le signal de sortie est égal à l'amplitude du bruit du montage. Nous verrons dans la prochaine section que les observations déduites de la simulation peuvent nous éclairer sur la route à suivre pour optimiser le rendement de la technique différentielle.

1.3.2 Résultats de la simulation

Les résultats de la simulation font l'objet du deuxième article soumis au chapitre 2.2.²⁵ Le premier paramètre que nous considérons dans le cas d'un système idéal est la longueur des lignes de transmission joignant les cavités résonnantes à la jonction hybride. Nous faisons varier la longueur des lignes autour de 10.89 cm ce qui correspond à 12 demi-longueurs d'onde étant donné que la vitesse, v , des ondes électromagnétiques dans la ligne coaxiale est 2.1×10^{10} cm/s, car $v = c/\sqrt{\epsilon}$. Les figures 2 et 4 ainsi que les figures 3 et 5 du chapitre 2.2 montrent le signal de sortie à la jonction hybride en fonction de la fréquence et en fonction de $\Delta\epsilon$ respectivement. On remarque que la sensibilité est supérieure lorsque le déphasage (éq. 1.2.5.8) $\Delta\phi = 90^\circ$ par rapport à $\Delta\phi = 0^\circ$. Cette observation s'explique par le fait que, selon les équations (1.2.2.12), (1.2.2.13) et (1.2.3.10), le signal à $\Delta\phi = 90^\circ$ est proportionnel à $\Delta\Gamma''$ qui, à la résonance ($f = f_r$), varie linéairement avec $\Delta\epsilon$. D'autre part, lorsque $\Delta\phi = 0^\circ$, le signal devient proportionnel à $\Delta\Gamma'$ qui ne varie qu'au deuxième ordre avec $\Delta\epsilon$.

La Table II présente les sensibilités calculées à partir des pentes des figures 3 et 5 pour différentes longueurs de ligne. Les incertitudes proviennent de l'erreur standard sur la pente calculées par la méthode des moindres carrés. Nous remarquons que la sensibilité demeure constante lorsque la longueur des lignes change de $-\lambda/8$ avec un changement de phase de 90° ou lorsque la longueur des lignes change de $\lambda/2$ en gardant la phase constante. Ce comportement est intéressant car il devient possible de conserver le signal proportionnel à $\Delta\Gamma''$ en ajustant la phase sans tenir compte de la longueur des lignes, pourvu qu'elles soient égales et identiques. De plus, nous constatons que la sensibilité est moins dépendante de la fréquence de mesure lorsque le signal est proportionnel à $\Delta\Gamma''$ et elle devient maximale si nous mesurons légèrement au-dessus de la fréquence de résonance.

Nous pouvons maintenant poursuivre la simulation selon les conditions pour lesquelles nous avons une sensibilité optimale, c.-à-d. pour des lignes de transmission à 10.89 cm

avec un déphasage de $\Delta\phi = 90^\circ$ et à la fréquence de mesure $f = 7.80004$ GHz. La figure 6 montre la variation de la sensibilité en fonction du facteur de qualité pour cinq modes de résonance, selon le mode TE_{01p} , calculé selon l'équation (1.2.2.20). On observe que le comportement linéaire de la sensibilité est en conformité avec les équations (1.2.2.13) et (1.2.3.11) où à la résonance nous avons

$$V_{LI} = \frac{CQ}{2} \frac{\Delta\epsilon_r'}{\epsilon_r} . \quad (1.3.2.1)$$

Regardons maintenant l'influence de la variation de la résistance à la résonance, R_0 , des cavités et de l'inductance de l'antenne. Une cavité est couplée critiquelement au guide d'onde lorsque sa résistance à la résonance est égale à l'impédance caractéristique, Z_0 , du guide. La figure 7 montre que pour une variation de 10Ω de R_0 la sensibilité varie que de 1 %. D'autre part, un changement d'un facteur 30 de l'inductance de l'antenne, L_a , cause une variation de la sensibilité de l'ordre de 5 % environ. Nous remarquons donc que le système peut quand même tolérer des écarts relativement importants de l'idéalité.

Examinons l'influence des asymétries entre les circuits de mesure et de référence. Sachant que la sensibilité ne varie pas de manière appréciable par rapport aux valeurs de R_0 et de L_a , nous vérifions d'abord l'influence de la différence des fréquences de résonance entre les cavités. La figure 8 montre le signal de sortie de la jonction hybride en fonction de $\Delta\epsilon$ lorsque nous changeons la fréquence de résonance de la cavité de mesure. D'une part, on remarque rapidement que le signal n'est pas nul pour $\Delta\epsilon = 0$ lorsque $\Delta f_r \neq 0$. Il faut donc s'assurer que l'amplitude du signal ne soit pas trop élevée car nous risquons de saturer l'amplificateur et atteindre éventuellement un régime non-linéaire. Il faut donc prendre certaines précautions pour minimiser la différence de la fréquence de résonance entre les deux cavités. D'autre part, selon la figure 9, la sensibilité varie quadratiquement avec Δf_r . De plus, il devient important de bien choisir la fréquence de mesure où la sensibilité est maximale lorsque $\Delta f_r < 0$. Nous allons remédier à ce problème en balayant la fréquence de mesure sur une large bande.

La figure 10 montre l'effet des asymétries entre la longueur des lignes joignant les cavités de mesure et de référence à la jonction hybride ainsi que du changement de phase produit par la jonction où $\Delta\theta (\pm 10^\circ) = \theta - 180^\circ$. Dans les deux cas, la sensibilité varie quadratiquement. À nouveau, lorsque $\Delta\ell \neq 0$ et que $\Delta\theta \neq 0^\circ$ amène que $V_{LI} \neq 0$ pour $\Delta\varepsilon = 0$.

La figure 11 indique que la sensibilité varie linéairement avec la différence en amplitude des signaux dans les branches de mesure et de référence lorsque la division en amplitude à la jonction n'est pas symétrique. De plus, nous aurions pu prédire intuitivement que la sensibilité varie linéairement avec la différence des facteurs de qualité entre les cavités. Encore une fois, le signal V_{LI} n'est pas nul pour $\Delta\varepsilon = 0$ dans des conditions d'asymétries.

En tenant compte de ce qui précède et des résultats expérimentaux préliminaires, il semble que le système différentiel puisse supporter le comportement non-idéal de certains composants ainsi que l'impact sur la sensibilité des asymétries inhérentes au montage. Rappelons que le système a une sensibilité maximale lorsque le signal à l'entrée de l'amplificateur synchrone est proportionnel à $\Delta\Gamma''$. Ceci est possible lorsque par exemple la longueur des deux lignes de transmission joignant les cavités au circuit hybride ont un multiple entier de longueurs d'onde pour $\Delta\phi = 90^\circ$.

1.3.3 Détection de l'humidité dans le SF₆

1.3.3.1 Modifications au montage différentiel

Suivant les recommandations des résultats de la simulation, nous avons considéré un autre mode de résonance (TE₀₁₁) ainsi que l'ajout d'une ligne ajustable (déphaseur) dans la branche de mesure. Ce déphaseur permet ainsi de changer la phase du signal réfléchi par rapport à celui de la branche de référence. De plus, le balayage en fréquence et la prise de données sont maintenant automatisés grâce à une routine développée avec le logiciel Labview[®] 4.0. Les figures 1 et 2 du chapitre 2.3 montrent respectivement le diagramme complet du montage et les dimensions des cavités couplées à un guide d'onde

rectangulaire (voir section 1.2.2.2.2). La fréquence de résonance des deux cavités sous vide est maintenant $f_0 \approx 7.8$ GHz. Les cavités sont munies d'un piston afin de syntoniser leur fréquence de résonance respective.

1.3.3.2 Préparation des mélanges

La préparation des mélanges de SF_6 et de vapeur d'eau est réalisée selon une méthode hygrométrique⁵⁰ qui consiste à circuler le SF_6 sec dans un saturateur rempli d'eau pure suivi d'un condenseur pour éliminer l'excès d'humidité. Nous utilisons un hygromètre (MCM, Dewmatic 600 D) connecté en ligne pour mesurer la teneur en vapeur d'eau pour des concentrations au-dessous de 1000 ppm. Le schéma du banc d'hygrométrie est montré à la figure 2 ci-dessous.

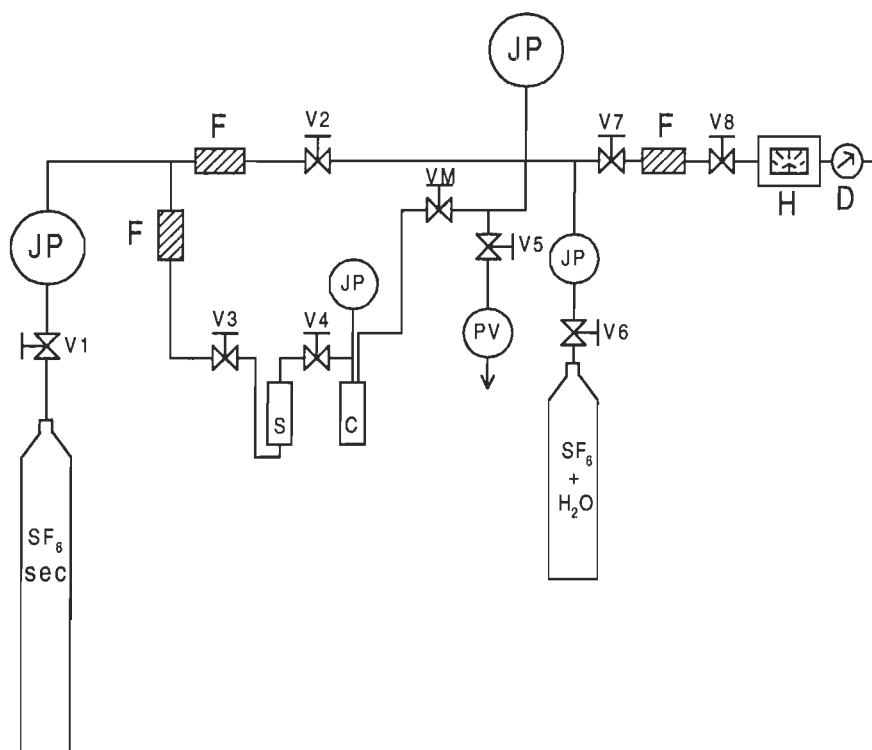


Figure 2 : Représentation schématique du banc d'hygrométrie. Valve :V1-V8, valve micrométrique :VM, jauge de pression : JP, filtre : F, pompe à vide : PV, saturateur : S, condenseur : C, hygromètre : H, débitmètre : D.

1.3.3.3 Résultats finaux

Les résultats finaux font l'objet du troisième article publié au chapitre 2.3.²⁶ Nous avons évalué expérimentalement la valeur du premier coefficient du viriel de la constante diélectrique, (A_ϵ) , du SF₆. Nous déterminons cette valeur lorsque la cavité de mesure est connectée à l'analyseur de réseaux qui est alimenté par un synthétiseur micro-onde (HP8341B). La constante diélectrique est calculée à partir de l'équation (1.2.2.2) sur une plage de pressions bien en dessous de la pression de saturation du SF₆. La figure 3 du chapitre 2.3 montre les courbes de la fonction de Clausius-Mossotti selon l'équation (1.2.4.8) pour le SF₆ et le CO₂. Nous considérons aussi le CO₂ car nous allons comparer la sensibilité du système pour des mélanges SF₆-CO₂ et SF₆-H₂O. Nous voyons dans les deux cas que la mesure de $(A_\epsilon)_{\text{SF}_6}$ et $(A_\epsilon)_{\text{CO}_2}$ aux fréquences micro-ondes nous permet de vérifier la validité de l'équation (1.2.4.1) et qu'il n'y a pas de dispersion. En effet, les valeurs sont $(A_\epsilon)_{\text{SF}_6} = (16.471 \pm 0.014) \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}$ et $(A_\epsilon)_{\text{CO}_2} = (7.406 \pm 0.004) \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}$ et elles sont en accord avec les valeurs rapportées par Hosticka et Bose⁵¹ et Obriot et al.⁵² qui furent mesurées à des fréquences beaucoup plus basses.

Nous avons répété la procédure de la section 1.3.1 lorsque nous créons un déséquilibre de pression entre la cavité de mesure et celle de référence afin de vérifier la sensibilité du système suite aux modifications. Nous réalisons ce test avec le SF₆ et le CO₂ pour prouver l'invariance de la sensibilité de la méthode différentielle selon deux environnements gazeux différents. Nous prenons soin de nous assurer que la phase des signaux réfléchis des cavités de mesure et de référence est égale. Pour chaque ΔP nous balayons la fréquence de mesure sur une bande de fréquences suffisamment large et pour chaque balayage nous varions la phase du signal de référence du lock-in jusqu'à ce que nous obtenions une différence de phase de 90° par rapport au signal d'entrée. Le seuil équivalent de détection de la vapeur d'eau est maintenant près de 4 ppm.

Nous considérons maintenant le SF₆ comme contaminant non-polaire dans le CO₂ pour inspecter les effets reliés à un mélange possible non-homogène ou l'influence de l'adsorption de la vapeur d'eau sur les parois. Lorsque les deux cavités sont à pression

égale et à la même température, la concentration équivalente de vapeur d'eau selon l'équation (1.2.4.6) est

$$x_{H_2O} \approx x_{SF_6} \frac{[(A_{\xi})_{SF_6} - (A_{\xi})_{CO_2}]}{[(A_{\xi})_{H_2O} - (A_{\xi})_{CO_2}]} . \quad (1.3.3.1)$$

À partir des valeurs des coefficients calculées précédemment, on trouve que $x_{H_2O} \approx x_{SF_6} \times 0.1335$. Les mélanges de SF_6 dans le CO_2 sont réalisés à partir de mesures de pression partielle sur le montage même. Selon la figure 13 du chapitre 2.3, pour des concentrations de vapeur d'eau supérieures à 800 ppm nous obtenons une sensibilité non-linéaire. Cette constatation découle de l'équation (1.2.2.11) selon laquelle nous devrions tenir compte de termes supérieurs dans l'expansion en série de Taylor autour de f_r . Selon la région linéaire, la concentration minimale équivalente détectable de vapeur d'eau est maintenant de 3 ppm environ.

Les mesures de la vapeur d'eau dans le SF_6 sont faites selon les mêmes paramètres électriques et thermodynamiques par rapport aux mesures précédentes. La figure 14 montre la tension de sortie en fonction de la concentration de vapeur d'eau dans le SF_6 lorsque les deux cavités sont maintenues à près de deux atmosphères de pression. Nous prenons chaque mesure lorsque le système atteint un équilibre thermodynamique. Le seuil de détection est 3.2 ppm. Le calcul de la sensibilité est accompli à partir de la méthode des moindres carrés selon la région linéaire des figures 13 et 14.

Nous voyons donc que la sensibilité ne varie pas significativement d'un environnement gazeux à l'autre. Nous pourrions conclure que l'adsorption de vapeur d'eau sur les parois est négligeable et que le mélange est homogène à l'intérieur de la cavité de mesure. Bien que cette supposition soit raisonnable, il faudrait porter une analyse plus approfondie pour supporter une telle hypothèse.

CONCLUSION

Nous avons démontré que la méthode micro-onde différentielle peut être une technique efficace pour la détection de l'humidité dans les gaz. De plus, la détection de la vapeur d'eau dans le SF₆ est possible lorsque la concentration d'humidité est supérieure à 3 ppm à la pression atmosphérique et à T = 296 K. Nous rencontrons ainsi les exigences relatives au seuil de tolérance de l'humidité des transformateurs de courant et des appareils de commutation. Afin de profiter pleinement de l'efficacité de la méthode en mode *in-situ*, il suffit de connecter un filtre à l'entrée de la cavité de référence de manière à éliminer la vapeur d'eau de l'échantillon à analyser. Nous avons reporté les essais selon cette approche car le prix de la trousse de filtration disponible sur le marché est onéreux et son rendement peu connu.

Nous avons prouvé la faisabilité de la méthode différentielle par l'approche du viriel selon la fonction de Clausius-Mossotti. Cette approche combinée à la représentation du système par un circuit idéal et à l'estimation du rapport signal sur bruit permet une évaluation réelle de la performance de la technique. En effet, la concordance entre le seuil de détection estimé (~ 2 ppm) et les résultats expérimentaux (~ 3 ppm) confirme la validité de la démonstration théorique. De plus, nous avons montré qu'il est possible d'optimiser le rendement de la technique, selon une simulation, en considérant certains facteurs tels la longueur des lignes de transmission, le facteur de qualité, Q, et la différence des fréquences de résonance, Δf_r .

La différence entre les seuils de détection déterminée à partir des essais préliminaires et ceux découlant des résultats finaux provient fort probablement de l'amélioration du facteur de qualité des cavités cylindriques. En effet, la valeur mesurée de Q selon le mode de résonance TE₁₁₂ est deux fois moindres que celle mesurée selon le mode de résonance TE₀₁₁ où Q ≈ 15000. Nous pouvons maximiser davantage le rendement de la méthode en considérant des modes TE_{01p} supérieurs et en haussant la constante de temps de l'amplificateur synchrone ce qui augmente simultanément le temps de la prise de

données. De plus, si nous réduisons la valeur de Δf_r entre les deux cavités nous allons linéariser le signal sur une plage de concentration de vapeur d'eau mesurable plus large.

Bien que la méthode différentielle ne soit pas d'ordre spectroscopique et qu'elle ne soit fonctionnelle que pour des mélanges binaires, elle demeure un instrument versatile et flexible pour d'autres applications industrielles. Il est possible d'augmenter la fonctionnalité de l'appareil par des transformations d'ordre mécaniques telles la miniaturisation des enceintes et des cavités, l'usage de valves pneumatiques et l'intégration des composants mécaniques. En plus de servir comme instrument de mesure de la teneur en vapeur d'eau dans le SF₆ pour les équipements électriques concernés, la technique différentielle peut manifestement servir à la détection de l'humidité dans le méthane et prévenir la formation d'hydrates dans les pipelines de gaz naturel. Elle devient ainsi une alternative intéressante par rapport à la technologie actuelle pour la détection précise de la teneur en vapeur d'eau ainsi que tout autre contaminant gazeux jugé nuisible dans certains procédés industriels.

BIBLIOGRAPHIE

- 1 Nitta T., Shibuya Y., Arahata Y., Takahashi H. et Kuwahara H., "Factors controlling surface flashover in SF₆ gas insulated systems", IEEE Trans., vol. PAS-97, p. 959 (1978).
- 2 Mauthe G. et Pettersson K., "Handling of SF₆ and its decomposition products in gas insulated switchgear (GIS)", Document du CIGRE Working Group 23-03, avril 1990.
- 3 Tominaga S., Kuwahara H. et Hirooka K., "Influence of arc-decomposed SF₆ gas on cast epoxy insulators for GIS", IEEE Trans. Power Apparatus & Systems, Vol. Pas-98, no. 6, p. 2107 (1979).
- 4 Chu F. Y., Braun J.-M., Stuckless H. A., *Generation and effects of low level arcing byproducts in gas insulated equipment*, Gaseous Dielectrics IV, Pergamon press (1984).
- 5 Chu F. Y., Braun J.-M. et Seethapathy R., "Degradation mechanisms for epoxy insulators exposed to SF₆ arcing by-products", IEEE International Symposium on Electrical Insulation, Washington D.C., 9-11 juin, p. 306 (1986).
- 6 Gonzales L. A. et Braun J.-M., "Ingress and moisture migration in GIS", Ontario Hydro Research division report, 86-57-H (1987).
- 7 Dodds J. J., "Moisture content in SF₆ equipment", Circuit Breakers, 52AIC85 (1985).
- 8 Trinh N. G., Propriétés d'isolation du SF₆, Colloque Technologies SF₆ au sein des réseaux électriques, Varennes, Québec, avril (1991).
- 9 Carr-Brion K., *Moisture Sensors in Process Control*, Elsevier, New York, USA (1986).
- 10 Le Noë O., Goyette J., Bose T. K. et Ingrain D., "Determination of the compressibility factor and measurement of traces of water in methane by a microwave method", Fluid Phase Equilibria, vol. 114, p. 135 (1996).
- 11 Birnbaum G., Kryder S. J. et Lyons H., J. Appl. Phys., vol. 22, p. 95 (1951).
- 12 Newell A. C. et Baird R. C., "Absolute determination of refractive indices of gases at 47.7 Gigahertz", J. Appl. Phys., vol. 36, p. 3751 (1965).

- 13 Cole R. H., Delbos G., Windsor IV P., Bose T. K. et Moreau J. M., "Study of dielectric properties of water/oil and oil/water microemulsions by time domain and resonance cavity methods", J. Phys. Chem., vol. 89, p. 3338 (1985).
- 14 Rouleau J. F., Goyette J., Bose T. K., Yagihara S. et Shinyashiki N., "Dielectric study on dynamical structure of water in moist materials using dielectric resonator", Third Workshop on Electromagnetic Wave Interaction with Water and Moist Substances, Athens, GA, USA, avril 11-13, p. 97 (1999).
- 15 Wingfield J. D. et Zieman C. M., "Dielectric constant of dry ambient air and some of its constituent gases at selected X-band frequencies", J. Appl. Phys., vol. 41, p. 820 (1970).
- 16 Kraszewski A., *Microwave Aquametry*, IEEE Press, New Jersey, USA (1996).
- 17 Nelson S. O. et Bartley, Jr P. G., "Open-ended coaxial-line permittivity measurement on pulverized materials", IEEE Trans. Instrum. Meas., vol. 47, p. 133 (1998).
- 18 Thompson M. C. et Vetter M. J., "Compact microwave refractometer for use in small aircraft", Rev. Sci. Instrum., vol. 29, no. 12, p. 1093 (1958).
- 19 Crain C. M., "Apparatus for recording fluctuations in the refractive index of the atmosphere at 3.2 centimeters wave-length", Rev. Sci. Instrum., vol. 21, no. 5, p. 456 (1950).
- 20 Magee J. B. et Crain C. M., "Recording microwave hygrometer", Rev. Sci. Instrum., vol. 29, no. 1, p. 51 (1958).
- 21 Sargent J., "Recording microwave hygrometer", Rev. Sci. Instrum., vol. 30, no. 5, p. 348 (1959).
- 22 Hasegawa S. et Stokesberry D. P., "Automatic digital microwave hygrometer", Rev. Sci. Instrum., vol. 46, no. 7, p. 867 (1975).
- 23 Rouleau J. F., Goyette J., Bose T. K. et Fréchette M. F., "Detection of small quantities of contaminants in SF₆ by a microwave method", Proc. 1996 IEEE Int. Symp. on Electrical Insulation, Montreal, p.113, Juin 16-19 (1996).
- 24 Rouleau J. F., Goyette J., Bose T. K. et Fréchette M. F., "Investigation of a microwave differential cavity resonator device for the measurement of humidity in gases", Rev. Sci. Instrum., vol. 70, no. 9, p. 3590 (1999).

- 25 Rouleau J. F., Goyette J., Bose T. K. et Fréchette M. F., "Optimization study of a microwave differential technique for humidity measurement in gases", *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, vol. 50, no. 3 (2001).
- 26 Rouleau J. F., Goyette J., Bose T. K. et Fréchette M. F., "Performance of a microwave sensor for the precise measurement of water vapor in gases", *IEEE Trans. on Dielectrics and Electr. Insul.*, vol. 7, no. 6, p. 825 (2000).
- 27 Mehrhoff T. K., "Comparison of continuous moisture monitors in the range 1 to 15 ppm", *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 56, no. 10, p. 1930 (1985).
- 28 King R. J., "On-line moisture and density measurement of foods with microwave sensors", *Applied Engineering in Agriculture*, vol. 13, no. 3, p. 361 (1997).
- 29 Soloman S., *Sensors Handbook*, McGraw-Hill, New York, USA (1998).
- 30 Mermoud F., Brandt M. D. et Weinstein B. L., "Recalibration of capacitive-type moisture sensor", *Solid State Technology*, vol. 32, no 5, p. 59 (1989).
- 31 McAndrew J. J., "Moisture analysis in process gas streams", *Solid State Technology, Special Series*, p. 55 (1992).
- 32 Black S. D., "Piezoelectric and electrolytic methods of moisture measurement in gases", *Anal. Instrum.*, vol. 17, p. 187 (1979).
- 33 Djaozandry R., St-Arnaud J.-M. et Bose T. K., "Detection of small quantities of gaseous contamination in a gas by using a differential optical method", *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 69, no. 3, p. 1398 (1998).
- 34 Collin R. F., *Foundations for microwave engineering*, McGraw-Hill, New York, USA (1992).
- 35 Chipman R. A., *Theory and Problems of Transmission Lines*, McGraw-Hill, New York, USA (1968).
- 36 Karmel P. R., Colef G. D. et Camisa R. L., *Introduction to Electromagnetic and Microwave Engineering*, Wiley, New York, USA (1998).
- 37 Rizzi P. A., *Microwave Engineering*, Prentice Hall, New Jersey, USA (1988).
- 38 Pozar D. M., *Microwave Engineering*, 2nd ed. Wiley, New York, USA (1998).
- 39 Kip A. F., *Fundamentals of electricity and magnetism*, 2nd ed. McGraw-Hill, New York, USA (1969).

- 40 Spiegel M. R., *Formules et tables de mathématiques*, McGraw-Hill, New York, USA (1993).
- 41 Hill N. E., Vaughan W. E., Price A. H. et Davies M., *Dielectric Properties and Molecular Behavior*, Van Nostrand, London, UK (1969).
- 42 Böttcher C. J. F., *Theory of electric polarization*, vol. 1, Elsevier, Amsterdam, Netherlands (1973).
- 43 Sutter H., *Dielectric and related molecular processes*, vol. 1, The Chem. Soc., London, UK (1972).
- 44 Lide D. R., *Handbook of Chemistry and Physics* (CD-ROM), CRC Press LLC (1999).
- 45 Achtermann H. J., Bose T. K., Rögener H. et St-Arnaud J.-M., "Precise determination of the compressibility factor of methane, and their mixtures from refractive index measurements", *Int. J. Thermophys.*, vol. 7, no. 3, p. 709 (1986).
- 46 Debye P. J. W., *Phys. Z.*, vol. 13, no. 97, p. 295 (1912).
- 47 Gray C. G. et Gubbins K. E., *Theory of Molecular Fluids*, vol. 1, Clarendon Press, Oxford, UK (1984).
- 48 Horowitz P. et Hill W., *The Art of Electronics*, Cambridge University Press, Cambridge, USA (1988).
- 49 Montgomery C. G., *Technique des mesures en micro-ondes*, Chiron, Paris, France (1953).
- 50 St-Arnaud J.-M., Bose T.K., Okambawa R. et Ingrain D., "Application of the dielectric constant measurements to study the influence of the small quantities of water vapor on the compressibility factor of methane", *Int. J. Thermophys.*, vol. 13, no. 4, p. 685 (1992).
- 51 Hosticka C. et Bose T. K., "Dielectric and pressure virial coefficients of imperfect gases : Hexadecapolar system", *J. Chem. Phys.*, vol. 60, no. 4, p. 1318 (1974).
- 52 Obriot J., Ge J., Bose T. K. et St-Arnaud J.-M., "Determination of the density from simultaneous measurements of the refractive index and the dielectric constant of gaseous CH₄, SF₆ and CO₂", *Fluid Phase Equilibria*, vol. 86, p. 315 (1993).

2 ARTICLES

2.1 PREMIER ARTICLE

ÉVALUATION D'UN DISPOSITIF MICRO-ONDE DIFFÉRENTIEL À CAVITÉS RÉSONNANTES POUR LA MESURE DE L'HUMIDITÉ DANS LES GAZ

Résumé

Un dispositif différentiel micro-onde à cavités résonnantes a été développé comme détecteur pour la mesure de petites quantités de vapeur d'eau dans les gaz. La présence d'un contaminant est vérifiée par les variations induites de la permittivité relative causées par un changement de la fréquence de résonance d'une cavité de mesure. Le signal de sortie mesuré est relié à la différence des coefficients de réflexion de la cavité de mesure et celle de référence. La représentation modélisée du système montre la proportionnalité entre la différence des coefficients de réflexion des cavités et la variation de la constante diélectrique. L'évaluation du changement minimum détectable de la permittivité est possible en utilisant l'équation de Clausius-Mossotti pour un mélange binaire gazeux à une concentration et une pression données. Le seuil de détection est alors calculé selon le rapport signal sur bruit du montage différentiel. L'estimation de la limite de détection pour quelques gaz contaminés à la vapeur d'eau montre que le système est suffisamment sensible pour mesurer des concentrations d'humidité de l'ordre du ppm à $T = 293$ K et à la pression atmosphérique.

Article accepté pour publication dans *Review of Scientific Instruments*, vol. 70, no. 9, p. 3590 (1999).

Investigation of a microwave differential cavity resonator device for the measurement of humidity in gases

J. F. Rouleau, J. Goyette, and T. K. Bose

Institut de Recherche sur l'Hydrogène, Département de Physique, Université du Québec à Trois-Rivières, Trois-Rivières, Québec G9A 5H7, Canada

M. F. Fréchette

Institut de Recherche d'Hydro-Québec, Varennes, Québec J3X 1S1, Canada

(Received 23 November 1998; accepted for publication 10 May 1999)

A resonant cavity based microwave differential device has been developed as a sensor for the measurement of small quantities of water vapor in gases. The presence of a contaminant is assessed by induced variations in the relative permittivity due to a shift in the resonant frequency of the measuring resonator. The measured output signal is related to the difference in the reflection coefficients of the measuring resonator and the reference one. A simple modeling approach of the system shows the proportionality between the difference of the reflection coefficients of the cavities and the variation in the dielectric constant. The evaluation of the minimum detectable change in the permittivity is possible using the Clausius–Mossotti equation for a binary gas mixture at a given concentration and pressure. The detection threshold is then determined by taking into account the signal-to-noise ratio of the differential setup. The estimation of the limit of detection for some practical moisture contaminated gases yields values in the low ppm level at $T=293$ K and atmospheric pressure. Experimental data suggest a detection threshold of 6 ppm for moisture.

© 1999 American Institute of Physics. [S0034-6748(99)00509-2]

I. INTRODUCTION

The microwave resonance technique using cavity resonators has been widely used to study various physical properties such as the compressibility factor of methane,¹ the complex permittivity of gases,² the refractive indices of gases at high frequencies,³ and the dielectric properties of microemulsions.⁴ Most of those resonant cavity methods consist either in measuring small perturbations in the cavity or in measuring the change in resonant frequency caused by a gas input into an evacuated cavity. These techniques are also well suited for the precise determination of water content in gases. Single resonator methods were investigated in the early 1950s for the measurement of the dielectric constants of various gases in the X-band microwave frequency range (see Wingfield and Zieman,⁵ and references therein), and more recently for the determination of the water content of humid gaseous samples and measurement of contaminants in gases.⁶ On the other hand, double microwave resonator techniques have been developed by Crain and Birbaum^{7,8} for the high precision measurement of the refractive indices of gases. Sargent⁹ further improved Birbaum's technique by making the difference in the resonant frequencies of the cavities proportional to the time displacement of the resonant pulses at the crystal detectors therefore keeping the resonant frequency of a test cavity constant. More recently, a microwave hygrometer designed by Hasegawa and Stokesberry¹⁰ combines the principles of operation of Birbaum and Sargent setups to measure the humidity of atmospheric air. The theory of measurement used in the above citations assumes the relationship between the index of refraction and the dielectric constant as $\epsilon=n^2$ in the microwave region. This re-

lation may not be strictly valid for water vapor since it might still show dispersion in the X band. Essen and Frome¹¹ have proposed a relationship between the refractivity and the constituents of moist air where the Debye relationship for molar polarization is considered. While this approach is useful for the determination of the refractive index at radio frequencies, one has to take into account four experimental constants to compute the amount of water vapor.

In this article, we investigate a simpler approach for the determination of moisture in gases based on the Clausius–Mossotti (CM) equation for polar gases at low pressures. The first dielectric virial coefficient, A_2 , of the CM function is directly related to the total polarizability of a polar molecule. Also, for a gas mixture, this coefficient may be expressed as the molar fraction of each constituent. With an *a priori* knowledge of A_2 for the pure and contaminated samples, it is then possible to compute the accuracy of the differential technique with respect to the signal-to-noise ratio of the system. This model shows that the microwave differential method is suitable for the measurement of moisture in a gas down to the low ppm level.

II. EXPERIMENT

The microwave differential setup is built around two microwave cavity resonators connected to a 180° hybrid junction. A schematic diagram of the method is shown in Fig. 1. A carrier signal coming from a microwave synthesizer is divided in two equal parts. The first one is mixed to a low-frequency signal coming from a lock-in amplifier. At the output of the mixer, an amplitude modulated signal is sent at the input of the hybrid junction. The first half of that signal is

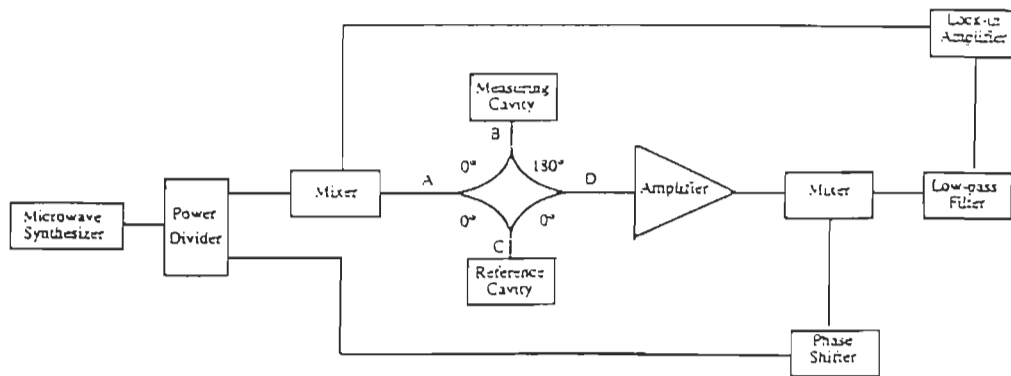


FIG. 1. Block diagram of the microwave differential method.

directed towards point B where part of it is reflected by the measuring cavity. This reflected signal will also be divided in two parts: the one going back to A being absorbed, while the one going towards point D is phase shifted by 180° . On the other hand, part of the signal reaching point C will also be reflected towards point D, but it will not be phase shifted. If the two cavities are identical, i.e., they are both filled with the same gas at the same temperature and pressure, two signals of equal amplitude but of opposite phase will reach point D; the signal at the output of the hybrid junction will be zero. If the gas in the measuring cavity is contaminated, this will change the impedance of that cavity, the reflected signal at B will also change and the two signals reaching point D will not balance out. There will be at the output of the hybrid junction a signal that can be related to the quantity of water present in the contaminated gas. This signal is then amplified to a level sufficiently high in order to mix it with the carrier which has been phase shifted by an angle ϕ . At the output of the last mixer, a low-frequency signal is filtered and measured by a lock-in amplifier.

The cylindrical cavity resonators working with the TE_{112} mode are coupled critically and can be tuned over a small frequency range by inserting metallic rods in the region where the electric field is maximum.^{12,13} Their dimensions are 0.1 m in height and 0.1 m in diameter. In order to prevent mechanical deformations of the two cavities, eight 2 mm holes were drilled on the sides for gas admission and exhaust. Each cavity is placed in a pressurized stainless steel cell filled with the gas under study. The temperature is controlled within 0.1 K. The microwave signal is generated by a Hewlett Packard 8341B synthesizer. The microwave amplifier (HP87415A) has a gain of 30 dB. The lock-in amplifier is the model SR830 from Stanford Research and the other microwave components are from Narda.

III. THEORY

A. Derivation of the reflection coefficient difference

The admittance, Y , of a microwave resonator can be represented by a parallel RLC circuit¹²

$$Y = \frac{\omega LG - j(1 - \omega^2 LC)}{\omega L} \quad (1)$$

where L is the inductance, C is the capacitance, and $\omega = 2\pi f$. The complex reflection coefficient is related to the admittance by the well-known equation

$$\Gamma^* = \frac{Y_0 - Y}{Y_0 + Y} \quad (2)$$

where Y_0 is the characteristic admittance of the system connected to the cavity. Using Taylor series expansion around the resonant frequency, f_r , of the real and imaginary parts of the reflection coefficient computed from Eq. (2), we have

$$\Gamma' = \frac{Y_0 - G}{Y_0 + G} - \frac{SQ^2G^2Y_0}{(Y_0 + G)^2} \left(1 - \frac{f}{f_r}\right)^2 \quad (3)$$

and

$$\Gamma'' = \frac{2QG^2Y_0(f^2 - 4f/f_r + 3f_r^2)}{f_r^2(Y_0 + G)^2} \quad (4)$$

where Q is the quality factor of the resonator. This means that Γ' is maximum and Γ'' is null at resonance. The resonant frequency of a cavity resonator completely filled with a material of dielectric constant ϵ is given by¹³

$$f_r = \frac{c}{\sqrt{\mu' \epsilon'}} K \quad (5)$$

where c is the vacuum speed of light, μ' is the permeability, and K depends on the dimensions of the cavity and its associated resonance model. Since μ' is constant for most gases and does not vary with frequency, it follows from Eq. (5) that

$$\epsilon'_r = \left(\frac{f_0}{f_r}\right)^2 \quad (6)$$

where $f_0 = 3.477$ GHz is the resonant frequency of the cavity under vacuum for the TE_{112} mode. The presence of a contaminant in the sample will slightly change the dielectric constant which in turn will induce a small shift in the resonant frequency

$$\frac{\Delta \epsilon'_r}{\epsilon'_r} = -2 \frac{\Delta f}{f_r} \quad (7)$$

where we suppose that $\epsilon'' = \epsilon'_r$, i.e., the pure gas under study would have negligible loss. Now if we suppose we have identical cavity resonators, it could be concluded that the change in the reflection coefficient can only come from a change in the resonant frequency of the cavity resonator. Then we have

$$\Delta \Gamma = \frac{\partial \Gamma}{\partial f_r} \Delta f_r \quad (8)$$

From Eqs. (3), (4), (7), and (8) we find

$$\Delta \Gamma' = \frac{3Q^2 G^2 Y_0}{(Y_0 + G)^2} \left(1 - \frac{f}{f_r}\right) \left(\frac{f}{f_r}\right) \left(\frac{\Delta \epsilon'_r}{\epsilon'_r}\right) \quad (9)$$

and

$$\Delta \Gamma'' = \frac{2QG Y_0}{(Y_0 + G)^2} \left(\frac{f}{f_r}\right) \left(2 - \frac{f}{f_r}\right) \left(\frac{\Delta \epsilon'_r}{\epsilon'_r}\right) \quad (10)$$

B. Signal processing

The microwave signal generated by the synthesizer is first divided in two parts by the power divider and part of the signal is amplitude modulated with a low-frequency signal, f_m , coming from the lock-in amplifier, which varies from 1 to 5 kHz, see Fig. 1. If V_0 is the amplitude of this incident signal at the input of the hybrid junction, then both resonators will be excited by a signal of amplitude $V_0/2$ at points B and C. The signal reaching point D will have the form

$$(\Delta V)_{\text{signal}} = \frac{V_0}{4} \Delta \Gamma'' [\cos(\omega_m + \omega_c)t + \cos(\omega_m - \omega_c)t] \quad (11)$$

At the output of the hybrid junction, the signal is amplified with a gain, A , sufficiently high in order to mix it with a carrier which can be phase adjusted. At the input of the lock-in amplifier, the signal is thus given by

$$(\Delta V)_{\text{signal}} = C \Delta \Gamma'' [\cos(\omega_m t - \Delta \phi) + \cos(\omega_m t + \Delta \phi)] \quad (12)$$

where C depends on the initial amplitude, the gain A and the efficiency of the mixer. The dc signal detected by the amplifier is then

$$(\Delta V)_{\text{signal}} = C V_A (\Delta \Gamma' \cos \Delta \phi + \Delta \Gamma'' \sin \Delta \phi) \quad (13)$$

where V_A is the amplitude of the amplifier signal. If we adjust the phase shifter to get $\Delta \phi = 90^\circ$ and if we sweep the carrier frequency over a range comparable to the width of the resonance, we get a signal proportional to $\Delta \Gamma''$ and from Eq. (10), where $Y_0 = G$, we have

$$(\Delta V)_{\text{signal}} \propto Q \left(\frac{\Delta \epsilon'_r}{\epsilon'_r}\right) \quad (14)$$

The estimation of the signal-to-noise (S/N) ratio allows us to determine the detection threshold of the differential technique. The minimum noise comes from the Johnson noise of the source impedance, R_s , of the microwave amplifier and its noise figure (NF) is given by¹⁴

$$NF = 10 \log_{10} \left[\frac{V_n^2}{4kTR_s \Delta \nu} \right] \quad (15)$$

where V_n^2 is the squared noise voltage, k is Boltzmann's constant and $\Delta \nu$ is the width of the bandpass filter of the lock-in amplifier. At $T = 293$ K, $k = 1.38 \times 10^{-23}$ J K⁻¹, $1/R_s = Y_0 = 0.02$ S, and $NF = 13$ dB (from HP specifications sheet), we can estimate the S/N ratio

$$\frac{V_{\text{signal}}}{V_n} \approx \frac{5 \times 10^8}{\sqrt{\Delta \nu}} \frac{\Delta \epsilon'_r}{\epsilon'_r} \quad (16)$$

C. Thermodynamic considerations

The concentration of a contaminant is computed by the change of the resonant frequency, Δf_r , and, consequently, by the variation of the permittivity, $\Delta \epsilon$. Since our technique is based on that variation, the estimation of the detection threshold can be determined by the virial form of the Clausius-Mossotti function in powers of molar density¹⁵

$$\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} = A_e \rho + B_e \rho^2 + C_e \rho^3 + \dots \quad (17)$$

where ρ is the molar density and A_e , B_e , and C_e are, respectively, the first, second, and third dielectric virial coefficients representing contributions from individual molecules, pairs and triplets. As a first approximation, when the pressure is low and, consequently, the density follows the ideal gas behavior, only the first term in the virial expansion is considered, so that the dielectric constant is given by

$$\epsilon = \frac{1 + 2A_e \rho}{1 - A_e \rho} \approx 1 + 3A_e \rho \quad (18)$$

The first dielectric virial coefficient of a contaminated gas¹⁵ or of a binary gas mixture, $(A_e)_m$, is a function of the molar fraction of that contaminant x and the first dielectric virial coefficients of the pure gas, $(A_e)_p$, and of the gaseous contaminant, $(A_e)_c$,

$$(A_e)_m = (1-x)(A_e)_p + x(A_e)_c \quad (19)$$

Thus, the presence of a contaminant in the gas brings a relative change in the measured dielectric constant that is given by

$$\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon} = \frac{\epsilon_m - \epsilon_p}{\epsilon_p} = \frac{3x\rho[(A_e)_c - (A_e)_p]}{1 + 3\rho(A_e)_p} \quad (20)$$

where $\rho = P/RT$ and where ϵ_m and ϵ_p are, respectively, the dielectric constant of the contaminated gas and the pure sample.

D. Application to humid gaseous samples

As an illustration, let us now consider water vapor as a contaminant in some gases of interest. First of all, the first dielectric virial coefficient of gases can be derived from their molecular properties,¹⁶ and for a polar gas such as water we have

$$A_e = \frac{N_A}{3\epsilon_0} \left(\alpha_0 + \frac{\mu_0^2}{3kT} \right) \quad (21)$$

TABLE I. First dielectric virial coefficients of Ar, He, SF₆, CH₄, and H₂ at $T=293$ K and the relative difference [Eq. (20)] in the permittivity, $(\Delta\epsilon/\epsilon)$, with the estimated detection threshold (x) for moisture from Eq. (16). The pressure, P , is inserted in Pa.

Gas	$(A_1) \times 10^9$ (m ³ /mole)	$\Delta\epsilon/\epsilon \times 10^9$	x (ppm)
Ar	4.14 ^a	0.088 ϵP	2.27
He	0.5196 ^b	0.092 ϵP	2.17
H ₂	2.032 ^c	0.090 ϵP	2.22
CH ₄	6.547 ^c	0.085 ϵP	2.35
SF ₆	16.543 ^d	0.072 ϵP	2.77

^aReference 15.

^bReference 18.

^cReference 19.

^dReference 20.

where α_0 is the polarizability of the molecule, μ_0 , its permanent dipole moment, ϵ_0 , the permittivity of vacuum, N_A , Avogadro's number, and k , Boltzmann's constant. The polarizability and the permanent dipole moment of the water molecule are, respectively,¹⁷ $\alpha_0 = 1.636 \times 10^{-40}$ Fm² and $\mu_0 = 6.188 \times 10^{-30}$ Cm, so that $(A_1)_{\text{water}} = 75.31 \times 10^{-6}$ m³/mol. The relative difference in the permittivity and the estimated detection threshold are reported in Table I for moisture in some gases at $T=293$ K. The minimum detectable $\Delta\epsilon/\epsilon$ is computed from Eq. (20) using the equation of state for ideal gas. The limit of detection, x , according to Eq. (16) is estimated with a S/N ratio of ten and with a lock-in amplifier bandwidth, $\Delta\nu = 1$ Hz at $P=0.1$ MPa.

IV. RESULTS AND DISCUSSION

In order to validate the sensitivity of the differential technique, we have measured the output signal, ΔV , of two pressure imbalanced argon filled resonators, and as a check we have also carried out measurements with helium. As can be seen from Eq. (18) and using the first virial coefficients of argon and helium, a measured pressure difference, ΔP (in MPa), between the two resonators will be equivalent to a difference in the dielectric constant, which for argon is $\Delta\epsilon = 5.10 \times 10^{-3} \Delta P$ and for helium is $\Delta\epsilon = 6.40 \times 10^{-4} \Delta P$.

The effect on the detected signal of this pressure difference is therefore equivalent to the presence of a contaminant in the gas filling the measuring cell when it is at equal pressure with the reference cell.

Figure 2(a) shows the results of preliminary measurements for argon. We see that the differential technique is sensitive and up to $\Delta\epsilon \approx 2.5 \times 10^{-5}$, the relation between the output voltage and $d\epsilon$ is quite linear. For larger values of $\Delta\epsilon$, the linear approximation of Eq. (8) is no longer valid and higher order terms of the Taylor expansion around f_r should be taken into account. As for helium, the relationship is linear over the full range of measurements since this gas has a lower density than argon, see Fig. 2(b). Table II reports the sensitivity values computed from the linear parts of Figs. 2(a) and 2(b). If $\Delta\epsilon = 10^{-6}$, the output signal will be $3.4 \mu\text{V}$ for argon and $33.5 \mu\text{V}$ for helium. Considering the measured amplitude of the noise at the output of the lock-in amplifier is about $0.2 \mu\text{V}$, the system should be sufficiently sensitive to measure the concentration of a contaminant in a given gas

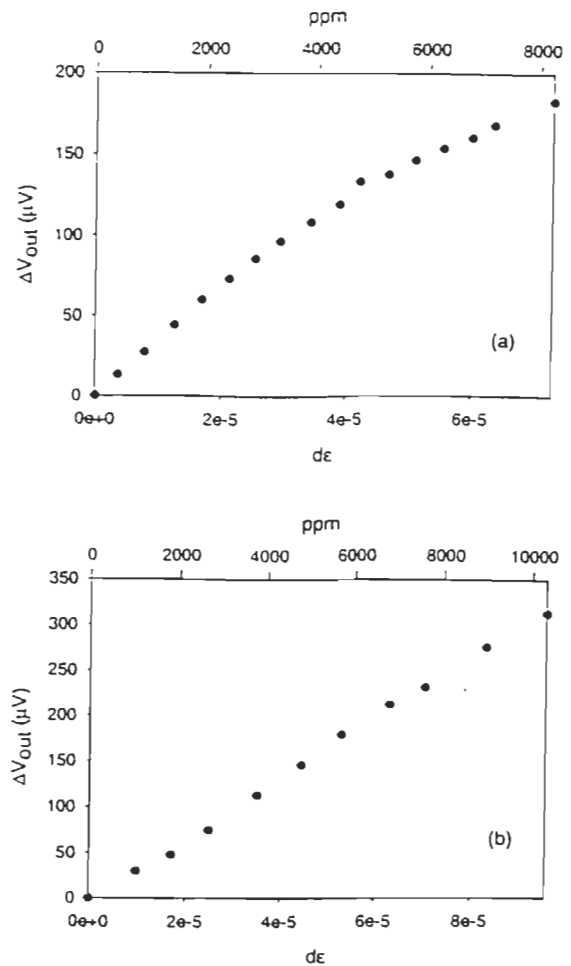


FIG. 2. Lock-in output voltage as a function of the difference in the dielectric constant ($d\epsilon$) of (a) argon and (b) helium, contained in each of the two resonators. The upper x axis is the equivalent concentration of water kept at a pressure of 0.1 MPa and $T=293$ K that would result in the same $d\epsilon$.

when this contaminant changes the dielectric constant of argon by more than 6×10^{-3} and 6×10^{-4} for helium. Comparison of this sensitivity with the results reported by Le Noë¹ demonstrates an increase by a factor of 10^3 since the single resonator technique has an uncertainty in ϵ of 2×10^{-5} .

Using Eq. (20), the sensitivity values in units of $\mu\text{V}/d\epsilon$ in Table II are related to an equivalent quantity of water in units of $\mu\text{V}/10^{-6}$. The computed values for both gases criss-cross within experiments errors. Such a limit of detection means that our setup would be able to detect about 6 ppm of water vapor in a contaminated gas sample kept at atmo-

TABLE II. Experimental values of the sensitivity for argon and helium computed at $P=0.1$ MPa.

Gas	$dV/d\epsilon$ (μV)	$dV/10^{-6}$ (μV)
Ar	$(3.41 \pm 0.06) \times 10^6$	$(3.03 \pm 0.05) \times 10^{-2}$
He	$(33.50 \pm 0.40) \times 10^6$	$(3.11 \pm 0.04) \times 10^{-2}$

spheric pressure (0.1 MPa) and room temperature, which would be once again lower from the detection limit of 75 ppm at 20 times the pressure (2 MPa) from Ref. 1. The sensitivity improves if we increase the pressure or decrease the temperature. This experimental detection threshold is higher than the estimated threshold reported in Table I for argon and helium. This difference can be explained by the asymmetries in the length of the coaxial lines at the input of the resonators, which induces a phase difference. Furthermore, our inability to shift the phase of the carrier signal exactly at $\Delta\phi=90^\circ$, decreases the sensitivity of the system. In the worst case scenario, i.e., if $\Delta\phi=0^\circ$, the signal becomes proportional to $\Delta\Gamma'$, a quantity which varies only quadratically with $\Delta\epsilon$. Those problems can be easily overcome with proper phase adjusting equipment.

This differential technique is promising for the detection of humidity in methane (CH_4) and will help prevent the formation of hydrates in natural gas pipelines. It could also be used to measure the concentration of water in sulfur hexafluoride (SF_6), a gaseous dielectric which is adversely affected by the presence of moisture. Since this technique is not discriminatory or spectroscopic in nature, it is suitable for the detection of a single contaminant in a gaseous binary system. This apparatus can be automatized with data acquisition from the serial port of the lock-in amplifier and with control of the synthesizer to lock the resonance frequency of the reference cavity to the sampling one. A calibration curve of the output voltage as a function of the moisture concentration can also be programmed for the computation of humidity of a given mixture. Further work is in progress for one-line measurements by means of a filter connected to the reference cavity.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors gratefully acknowledge the financial support of Hydro-Québec for this project. J. F. Rouleau is thankful to NSERC (Canada) and FCAR (Québec) for the scholarships.

- ¹O. Le Noé, J. Goyette, T. K. Bose, and D. Ingrain, *Fluid Phase Equilibria* 114, 135 (1996).
- ²G. Birnbaum, S. J. Kryder, and H. Lyons, *J. Appl. Phys.* 22, 95 (1951).
- ³A. C. Newell and R. C. Baird, *J. Appl. Phys.* 36, 3751 (1965).
- ⁴R. H. Cole, G. Delbos, P. Windsor IV, T. K. Bose, and J. M. Moreau, *J. Phys. Chem.* 89, 3338 (1985).
- ⁵J. D. Wingfield and C. M. Zieman, *J. Appl. Phys.* 41, 320 (1970).
- ⁶J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose, and M. F. Fréchette, *Proceedings of the 1996 IEEE International Symposium on Electrical Insulation*, Montreal, 16–19 June 1996, p. 113.
- ⁷C. M. Crain, *Rev. Sci. Instrum.* 21, 456 (1950).
- ⁸G. Birnbaum, *Rev. Sci. Instrum.* 21, 169 (1950).
- ⁹J. Sargent, *Rev. Sci. Instrum.* 30, 348 (1959).
- ¹⁰S. Hasegawa and D. P. Stokesberry, *Rev. Sci. Instrum.* 36, 867 (1975).
- ¹¹L. Essen and K. D. Frome, *Proc. Phys. Soc. London, Sect. B* 64, 862 (1951).
- ¹²R. A. Chipman, *Theory and Problems of Transmission Lines* (McGraw-Hill, New York, 1968).
- ¹³R. E. Collin, *Foundations for Microwave Engineering* (McGraw-Hill, New York, 1992).
- ¹⁴P. Horowitz and W. Hill, *The Art of Electronics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1988).
- ¹⁵N. E. Hill, W. E. Vaughan, A. H. Price, and M. Davies, *Dielectric Properties and Molecular Behavior* (Van Nostrand, London, 1969).
- ¹⁶C. J. F. Böttcher, *Theory of Electric Polarization*, Vol. 1 (Elsevier, Amsterdam, 1973).
- ¹⁷C. G. Gray and K. E. Gubbins, *Theory of Molecular Fluids*, Vol. 1 (Clarendon, Oxford, 1984).
- ¹⁸J. Huot and T. K. Bose, *J. Chem. Phys.* 95, 2683 (1991).
- ¹⁹J. Obriot, J. Ge, T. K. Bose, and J.-M. St-Arnaud, *Fluid Phase Equilibria* 86, 315 (1993).
- ²⁰C. Hosticka and T. K. Bose, *J. Chem. Phys.* 60, 1318 (1974).

2.2 DEUXIÈME ARTICLE

ÉTUDE DE L'OPTIMISATION D'UNE TECHNIQUE DIFFÉRENTIELLE MICRO-ONDE POUR LA MESURE DE L'HUMIDITÉ DANS LES GAZ

Résumé

Nous présentons une simulation de la détection précise de l'humidité dans les gaz par une technique différentielle micro-onde. Nous examinons les conditions pour l'optimisation des habiletés de détection du système. La petite quantité de vapeur d'eau de l'ordre du ppm dans les gaz est déterminée en mesurant un changement de la fréquence de résonance d'une cavité de mesure relative à une cavité de référence. Étant donné les différences inévitables dans les dimensions physiques et les caractéristiques électriques des composants du montage, nous avons étudié la variation des paramètres du circuit qui peuvent avoir un impact significatif sur la sensibilité de la méthode. Nous avons aussi considéré certaines asymétries entre les branches du circuit. Nous confirmons que notre circuit puisse tolérer une symétrie imparfaite des composants et fournir une sensibilité acceptable comme nous le démontrons avec des résultats expérimentaux.

Article accepté pour publication dans *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, vol. 50, no. 6 (2001).

Optimization Study of a Microwave Differential Technique for Humidity Measurement in Gases

J. F. Rouleau, Jacques Goyette, Tapan K. Bose, and M. F. Fréchette

Abstract—We present a simulation study of precision humidity sensing in gases by a microwave differential technique. We investigate the conditions for the optimization of the system capabilities. The small quantity at the parts per million (ppm) level of water vapor in gases is determined by measuring a shift of the resonant frequency of a measuring resonator relative to a reference one. Because of some unavoidable differences in the physical dimensions and electrical characteristics of the setup components, we studied the variation of the circuit parameters that could significantly have an impact on the sensitivity of the method. We also considered possible asymmetries between each branch of the circuit. It is concluded that our circuit design can tolerate imperfect symmetry of the components and still provide good sensitivity, as shown by our experimental results.

Index Terms—Cavity, humidity, microwave, moisture content, resonator.

I. INTRODUCTION

ON-LINE monitoring of humidity in some industrial process gases and in the food industry in order to prevent irreversible damage, or to ensure low-cost production, has attracted much attention in recent years. From the semiconductor industry [1] to the agricultural sector [2], on-line moisture sensors are critical to avoid the downgrade of the quality of chips and microprocessors and to avert microbial degradation. Several conventional sensor-based methods, like the chilled mirror, electrolytic, vibrating quartz, and capacitive hygrometers [3], have advantages and limitations and are dependent on specific applications. On the other hand, microwave techniques offer flexibility because of their sensitivity to moisture from solid-like materials to gases. Several microwave methods can be properly adapted for the determination of physical properties for material characterization; those methods are often based on the measurement of the dielectric constant of the material under test. While the cavity perturbation technique and the open-ended coaxial probe represent practical ways to determine moisture content for bulk, powdered or particulate samples [4]–[6], the dielectric cavity resonator is particularly well suited for humidity determination in gases.

Manuscript received September 7, 1999; revised March 12, 2001. This work was sponsored by Hydro-Québec. The first author (J. F. R.) is thankful for the financial support of the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada and of Le Fonds pour la Formation de Chercheurs et l'Aide à la Recherche.

J. F. Rouleau, J. Goyette, and T. K. Bose are with the Institut de Recherche sur l'Hydrogène, Département de Physique, Université du Québec à Trois-Rivières, Trois-Rivières, P.Q., Canada.

M. F. Fréchette is with the Institut de Recherche d'Hydro-Québec, Varennes, P.Q., Canada.

Publisher Item Identifier S 0018-9456(01)04686-1.

We have recently reported on a resonant-cavity, microwave-differential model [7] to measure low water vapor content in gases down to the parts per million (ppm) level. The presence of a contaminant at some concentration of the gaseous mixture results in the variation of the permittivity, which is related to the change of the resonant frequency of a measuring resonator compared to a reference one. Preliminary results [8] show a detection limit of around 6 ppm, while the estimated detection threshold turns out to be about 2 ppm. This detection limit corresponds to the quantity of water vapor one can measure when the output signal is equal to the noise signal of the setup. The sensitivity of this technique is dependent on geometrical differences between both resonators, as well as the electrical characteristics of the setup devices. In this paper, we present a numerical simulation aimed at demonstrating a sensitivity analysis by varying physical parameters relative to the setup which might influence its performance. We then briefly compare experimental results before and after considering some observations based on the simulation.

II. MICROWAVE DIFFERENTIAL MODEL

A. Differential Setup

The principle of operation of the microwave differential technique is essentially based upon the difference of the reflected signal coming out of a measuring resonator with respect to a reference one (see Fig. 1). More specifically, the amplified output modulated signal coming from a hybrid junction V_{m12} is mixed with a carrier signal V_3 and is then filtered and detected by a lock-in amplifier, so we have [8]

$$(\Delta V)_{\text{out}} = K \{ \Delta \Gamma' \cos \Delta \phi' + \Delta \Gamma'' \sin \Delta \phi' \} \quad (1)$$

where K is a constant depending on the initial amplitudes of the signals generated by the microwave synthesizer and the lock-in amplifier, and $\Delta \Gamma'$ and $\Delta \Gamma''$ are, respectively, the differences of the real and imaginary parts of the reflection coefficients of both resonators. The phase variation $\Delta \phi' = \Delta \phi \pm \phi_{\text{ref}}$ where $\Delta \phi = \phi_1 - \phi_3$ arises from the phase difference of the signals coming out of the power divider and going to both double-balanced mixers. The adjustable phase ϕ_{ref} comes from the signal reference of the lock-in amplifier. For the sake of the demonstration, we shall consider $\phi_{\text{ref}} = 0^\circ$. If we assume identical resonators, the imaginary part of the reflected coefficient at resonance varies as

$$\Delta \Gamma'' \approx \frac{Q}{2} \left(\frac{\Delta \epsilon_r'}{\epsilon_r'} \right) \quad (2)$$

where ϵ'_r is the real part of the permittivity of a lossless gas and Q the quality factor of a resonator. If we consider $\Delta\phi = 90^\circ$, (1) reduces to

$$(\Delta V)_{\text{out}} \approx \frac{KQ}{2} \left(\frac{\Delta\epsilon'_r}{\epsilon'_r} \right). \quad (3)$$

B. Cavity Resonator Design

In principle, the differential technique requires that both resonators have similar resonant frequencies and high Q -values for optimal sensitivity. From the vector wave equation for the magnetic field in a charge-free region [9], one can compute the field components (i.e., E_r , E_ϕ , E_z , H_r , H_ϕ , and H_z) of the transverse electric (TE) modes of a cavity resonator where it is supposed that conduction currents exist only on the inner wall surfaces. For a cylindrical cavity resonator of diameter D and length l , the TE_{01p} modes are interesting because of their high, unloaded Q -values. Furthermore, the resonant frequencies associated with those particular modes are easy to shift by inserting a movable shorting plate, i.e., the absence of conduction currents between the side wall and the movable plate avoids bad ohmic contacts. For the TE_{011} mode, only the azimuthal component is considered $E = E_\phi$ [10] and the quality factor is computed from the peak value of E_ϕ and is given by

$$Q = \frac{\lambda_r}{2\pi\delta_s} \frac{[(q'_{01})^2 + (p\pi D/2l)^2]^{3/2}}{(q'_{01})^2 + (D/l)(p\pi D/2l)^2} \quad (4)$$

where δ_s is the skin depth at f_r , $q'_{01} = 3.832$, and $D = 2a$. This function is maximum for $D/l \approx 1$, so that for a silver-plated resonator with $\delta_s = 0.73 \mu\text{m}$ and $f_r \approx 10$ GHz, one should expect a theoretical Q -value of about 35 000.

III. SIMULATION OF THE DIFFERENTIAL TECHNIQUE

The differential technique presented above assumes that a change in the reflection coefficients arises only from a variation in the resonance frequency or a change in the permittivity of the gas of the measuring cavity. In fact, many of the components of the setup possess specific tolerances that may impact, in a significant way, the sensitivity of the method. Furthermore, both resonators do not have identical geometry, and the coaxial lines connected to each of them are not of the same length. A more generalized version of (3) may be written in the form

$$\begin{aligned} (\Delta V)_{\text{out}} = & \frac{KQ}{2} \frac{\Delta\epsilon'_r}{\epsilon'_r} + \frac{\partial V_{\text{out}}}{\partial f_r} \Delta f_r + \frac{\partial V_{\text{out}}}{\partial Q} \Delta Q \\ & + \frac{\partial V_{\text{out}}}{\partial R_0} \Delta R_0 + \frac{\partial V_{\text{out}}}{\partial L_a} \Delta L_a + \frac{\partial V_{\text{out}}}{\partial \ell} \Delta \ell \\ & + \frac{\partial V_{\text{out}}}{\partial A_r} \Delta A_r + \frac{\partial V_{\text{out}}}{\partial \theta} \Delta \theta \end{aligned} \quad (5)$$

where Δf_r , ΔQ , ΔR_0 , and ΔL_a are the differences between the resonant frequencies of the two cavities not originating from $\Delta\epsilon$, the quality factor of cavities, the resistance at resonance, and the inductances of the antennas, respectively. Also, $\Delta \ell$ is the difference between the length of the lines joining each resonator to the hybrid junction. Finally, A_r is the relative amplitude of the signals transmitted through the branches ABD and

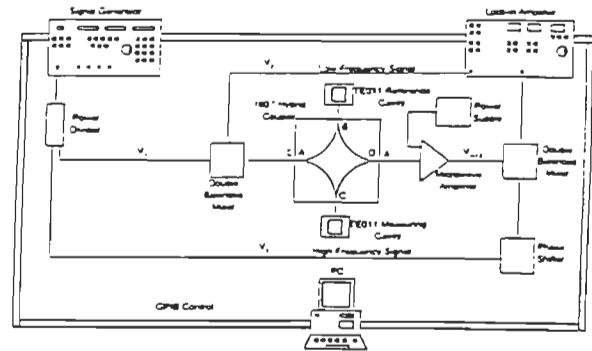


Fig. 1. Experimental setup of the cavity resonator microwave differential technique for contaminant (humidity) detection in gases.

ACD (see Fig. 1) of the hybrid circuit ($\Delta A_r = A_r - 0.5$), while θ is the relative phase shift of the signals in both branches ($\Delta\theta = \theta - 180^\circ$). In this section, we investigate the importance of those parameters on the performance of the system based on a numerical simulation.

A. System Modeling

The input impedance Z_c of an ideal RLC circuit near resonance can be written as [11]

$$Z_c = \frac{R_0(1 - jQ(f/f_r) - (f_r/f))}{1 + Q^2((f/f_r) - (f_r/f))^2}. \quad (6)$$

The cavity resonator is aperture coupled to a rectangular waveguide operating in the dominant TE_{10} mode so that it is converted to a TE cavity mode. The series impedance Z_{fg} of the cavity-resonator system is then

$$Z_{fg} = Z_g \left[\frac{Z_c + jZ_g \tan 2\pi f l_g / c}{Z_g + jZ_c \tan 2\pi f l_g / c} \right] \quad (7)$$

where

- Z_g waveguide characteristic impedance;
- l_g waveguide length;
- c velocity of light in the guide.

The impedance Z_b at the end of the waveguide including the antenna is

$$Z_b = Z_{fg} + j2\pi f L_a. \quad (8)$$

The total impedance Z_c at the input of the hybrid junction is

$$Z_c = Z_0 \left[\frac{Z_b + jZ_0 \tan 2\pi f l / c}{Z_0 + jZ_b \tan 2\pi f l / c} \right] \quad (9)$$

where $Z_0 = 50 \Omega$ is the characteristic impedance of the line joining the waveguide to the hybrid junction. The reflection coefficient Γ at ports B and C of the hybrid junction is

$$\Gamma^* = \frac{Z_{ci} - Z_0}{Z_{ci} + Z_0} \quad (10)$$

where $i = B$ or C . Assuming that the hybrid junction is excited at port A with a signal V_A , the output signal V_D at port D will be

$$V_D^* = A_B \Gamma_B \cos \theta + A_C \Gamma_C \quad (11)$$

where A_B and A_C are the incident signal amplitudes at ports B and C, respectively. Finally, if V_D' and V_D'' are respectively the real and imaginary parts of V_D , the signal V_s at the output of the phase shifter is

$$(\Delta V)_{out} = V_D' \cos \Delta\phi - V_D'' \sin \Delta\phi \quad (12)$$

where $\Delta\phi$ is the phase shift. The first part of the simulation consists of varying the parameters of (6)–(12) with the values reported in Table I. For a given set of parameters, V_s is computed as a function of frequency for specific values of $\Delta\varepsilon$ ($0 \leq \Delta\varepsilon \leq 10^{-6}$). The sensitivity data are then reported from the slope of V_s as a function of $\Delta\varepsilon$ at three frequencies, one of which is the resonant frequency of the reference resonator. The other two frequencies should be closely located on both sides of the resonance because, in practice, it might prove difficult to estimate precisely the resonant frequency. This resonant frequency is set at 7.8 GHz, which would correspond to the dimensions of a cylindrical resonator of about 5 cm in height \times 5 cm in diameter.

B. Simulation of an Ideal System

The first part of the simulation considers an ideal system, which is composed of similar resonators, a perfect hybrid junction, and identical transmission lines. Only one parameter at a time is varied, and the optimum value is thus found for best system operation.

We first vary the length of the lines around 10.89 cm. This corresponds to 12 half-wavelengths minus the waveguide length, since the speed of light in the line is 2.1×10^{10} cm/s. Figs. 2 and 4 show the signals as a function of frequency that we should expect at the output of the hybrid junction when $\Delta\phi = 90^\circ$ and $\Delta\phi = 0^\circ$, respectively, for $\ell_{ref.} = \ell_{meas.} = 0.1089$ m. Figs. 3 and 5 show the signals as a function of $\Delta\varepsilon$ at three frequencies for the same line length when $\Delta\phi = 90^\circ$ and $\Delta\phi = 0^\circ$. Table II reports the sensitivity data computed from the slopes of Figs. 3 and 5 for different line lengths. We observe that we obtain maximum sensitivity when $\Delta\phi = 90^\circ$ at $\ell = 6\lambda$, since the signal is proportional to $\Delta\Gamma''$, which varies linearly with $\Delta\varepsilon$, while for $\Delta\phi = 0^\circ$, the signal is proportional to $\Delta\Gamma'$, a quantity that varies only quadratically with $\Delta\varepsilon$. This is also found in the relative error which is higher at $\Delta\phi = 0^\circ$, endorsing the quadratical behavior. On the other hand, the sensitivity is constant when the line length changes by $-\lambda/8$ with a phase shift of $\Delta\phi = 90^\circ$, or when the line length changes by $\lambda/2$ by keeping the phase constant. This is an interesting characteristic since it would be possible to adjust the phase without taking into account the line length in order to keep the output signal proportional to $\Delta\Gamma''$ where the sensitivity is maximum. Nevertheless, one needs to make sure that both lines have the same length. Furthermore, the sensitivity is less dependent on the measuring frequency when the signal is proportional to $\Delta\Gamma''$, and the maximum value is achieved if one measures slightly above the resonant frequency ($f \approx 7.8004$ GHz).

Now we continue the simulation according to $\ell_{ref.} = \ell_{meas.} = 10.89$ cm, $\Delta\phi = 90^\circ$, and $f = 7.8004$ GHz, which are the optimal sensitivity conditions. Fig. 6 shows the sensitivity data

TABLE I
INITIAL VALUES OF THE PARAMETERS OF
(12) AND (13) USED IN THE SIMULATION

Parameters	Reference and measuring resonators
f_r (Hz)	7.8000×10^9
Q	35000
R_0 (ohms)	50
ℓ (m)	0.1089
L_s (H)	1.00×10^{-10}
A	0.5
θ (rad)	3.1415926
ϕ (rad)	1.5707963

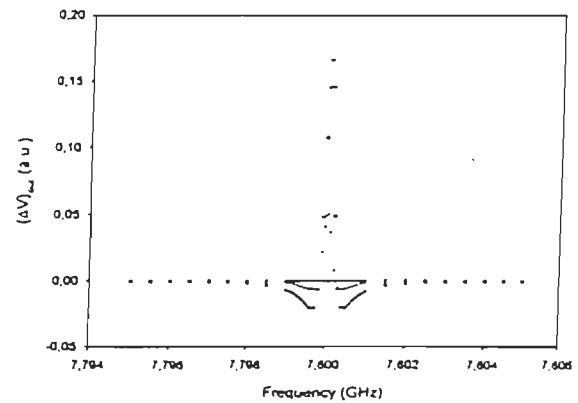


Fig. 2. Hybrid coupler output voltage as a function of frequency at $\Delta\phi = 90^\circ$ for three values of $\Delta\varepsilon$: circle: $\Delta\varepsilon = 0$; plus: $\Delta\varepsilon = 6 \times 10^{-6}$; lozenge: $\Delta\varepsilon = 2 \times 10^{-5}$.

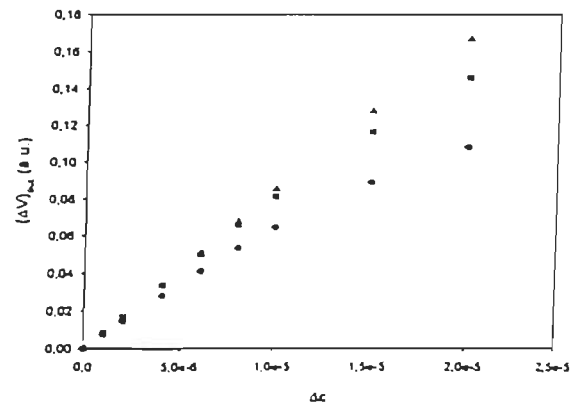


Fig. 3. Hybrid coupler output voltage as a function of $\Delta\varepsilon$ at $\Delta\phi = 90^\circ$ for three frequencies: circle: 7.79996 GHz; square: 7.80000 GHz; triangle: 7.80004 GHz.

for five Q -values with their associated TE_{01p} mode $1 \leq p \leq 5$ computed from (4). One can easily conclude, in this case, that the sensitivity increases linearly with Q , which is in conformity

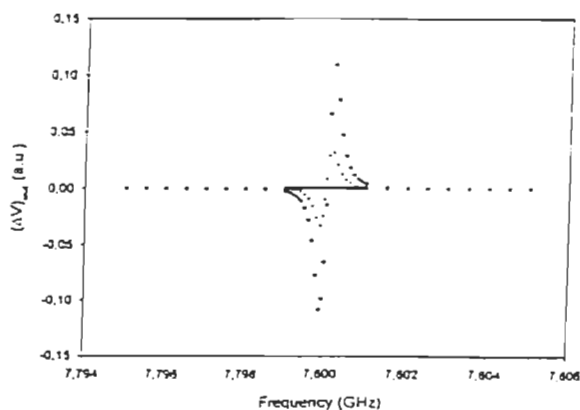


Fig. 4. Hybrid coupler output voltage as a function of frequency at $\Delta\phi = 0^\circ$ for three values of $\Delta\varepsilon$: circle: $\Delta\varepsilon = 0$; plus: $\Delta\varepsilon = 6 \times 10^{-4}$; lozenge: $\Delta\varepsilon = 2 \times 10^{-3}$.

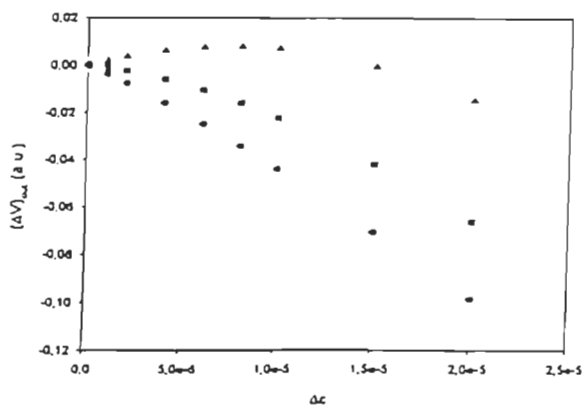


Fig. 5. Hybrid coupler output voltage as a function of $\Delta\varepsilon$ at $\Delta\phi = 0^\circ$ for three frequencies: circle: 7.7996 GHz; square: 7.8000 GHz; triangle: 7.8004 GHz.

with (2) and (3). The resonator is said to be critically coupled to the waveguide when its resistance at resonance R_0 is equal to the characteristic impedance of the waveguide Z_0 . Thus, the energy stored by the resonator interacts with the dielectric inside it, and the reflection coefficient is zero. Since, in our case, $Z_0 = 50 \Omega$, as well as for the characteristic impedance of the line, simulations were carried out for values of R_0 around 50Ω . Fig. 7 gives the results for several values around R_0 and the sensitivity varies about 1% for deviations of 10Ω . The influence of the antenna inductance brings a change of only 5% on the system performance when the inductance increases 30 times, as shown in Fig. 7.

C. Simulation with Asymmetries

In this section, we verify the influence of the setup inherent asymmetries when our measurement and reference circuits are not identical. The sensitivity will then be computed by varying a given parameter of the measuring circuit branch while keeping it constant for the reference circuit branch. We first study the influence of a difference in the resonant frequencies of the two resonators. We change the resonant frequency of the measuring

TABLE II
VALUES OF THE SENSIBILITIES WITH RELATIVE ERROR AT THREE MEASURING FREQUENCIES FOR DIFFERENT LINE LENGTHS AND PHASE

Line length (m)	$\Delta\phi$	$f = 7.7996$		$f = 7.8000$		$f = 7.8004$	
		(GHz)	(%)	(GHz)	(%)	(GHz)	(%)
2.4 = 0.1025	0	4939	2.4	3265	7.4	643	49.3
	90	-5474	4.3	-7394	2.4	-8394	0.6
2.3 = 0.1057	0	5474	4.3	7394	2.4	8394	0.6
	90	4939	2.4	3265	7.4	643	49.3
6.2 = 0.1039	0	4939	2.4	3265	7.4	643	49.3
	90	-5474	4.3	-7394	2.4	-8394	0.6
1.3 = 0.1121	0	-5474	4.3	-7394	2.4	-8394	0.6
	90	4939	2.4	3265	7.4	643	49.3
1.4 = 0.1153	0	4939	2.4	3265	7.4	643	49.3
	90	-5474	4.3	-7394	2.4	-8394	0.6

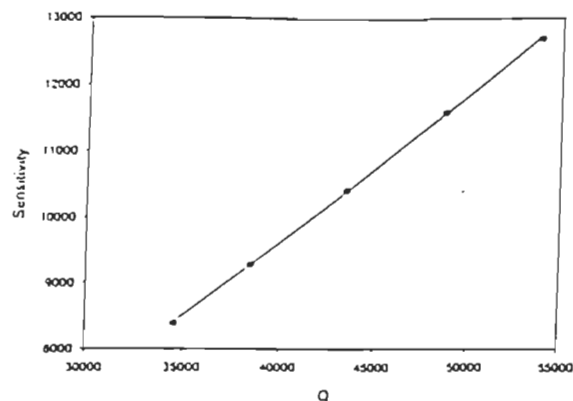


Fig. 6. Sensitivity as a function of the quality factor Q for five TE_{10} modes for arbitrary dimensions of both resonators ($D/l = 1$).

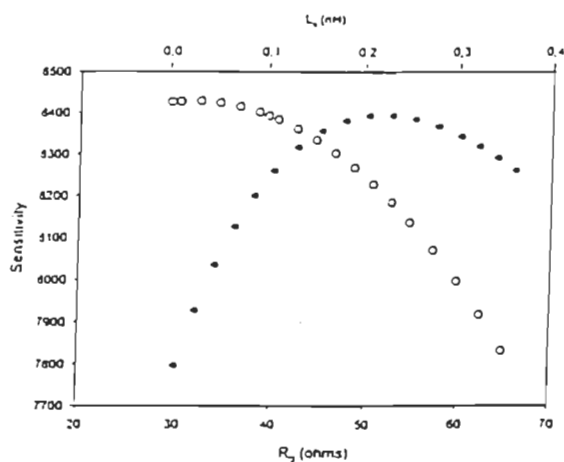


Fig. 7. Sensitivity as a function of the resistance at resonance R_0 (dark circles) and the antenna inductance L_s (open circles).

cavity f_r^m and the results are presented as $\Delta f_r = f_r^m - f_r^r$, where f_r^r is the resonant frequency of the reference cavity. This same format is used for the other simulations. Fig. 8 presents the output signal of the hybrid junction as a function of $\Delta\varepsilon$ for

different values of Δf_r . Since there is an equivalence between Δf_r and $\Delta \varepsilon$, one could have foreseen the fact that when $\Delta f_r \neq 0$, the signal V_s is not zero even for $\Delta \varepsilon = 0$. Also, there are situations when $V_s = 0$ even if $\Delta \varepsilon \neq 0$, but we still have a linear relation between V_s and $\Delta \varepsilon$ so that

$$(\Delta V)_{out} - (\Delta V)_{out=0} \propto \Delta \varepsilon \quad (13)$$

where $(V)_{out=0}$ is the output signal when $\Delta \varepsilon = 0$. Table III shows that the sensitivity varies much less at $f = 7.80004$ GHz compared to lower frequencies around Δf_r . Fig. 9 shows clearly that the sensitivity varies quadratically with Δf_r and reaches a maximum near $\Delta f_r = 0$ when $f = 7.80004$ GHz. For the variation of the length of the line of the measuring cavity relative to the reference cavity, as well as for the phase shift produced by the hybrid junction, where $\Delta \theta (\pm 10^\circ) = \theta - 180^\circ$, the sensitivity varies once again quadratically with $\Delta \ell$ (see Fig. 10). For that case, when $\Delta \ell$ is not zero, the signal $V_s \neq 0$ for $\Delta \varepsilon = 0$. The relative change of the amplitude of the signal due to a possible phase shift by the hybrid coupler induces a maximum variation of only 0.57%. Interestingly, this change in the signal-to-noise ratio has no effect on the sensitivity of the system. According to the specifications of the hybrid junction, an amplitude imbalance of ± 0.50 dB is possible during signal division. This means the signal reaching the measuring circuit branch can have values ranging from 0.485 to 0.515 times the value of the input signal, the signal in the reference circuit branch having the complementary value. Once again, when $\Delta A_m \neq 0$ then $V_s \neq 0$ for $\Delta \varepsilon = 0$. Fig. 11 shows that the sensitivity varies linearly with ΔA_m . Conversely, increasing the signal amplitude up to $\Delta \varepsilon = 0$ could raise the signal to a level where saturation of the microwave amplifier is likely, thus reducing the system sensitivity. Finally, bringing a change in the quality factor of the measuring cavity would give a linear behavior of the sensitivity as a function of the ΔQ , in conformity to (3) (see also Fig. 11). This is not surprising since an increase in ΔQ means that we would improve the Q -value of the measuring resonator and, consequently, the sensitivity of the system.

D. Comparison with Experimental Results

We have reported [8] the estimated detection threshold for water vapor in a variety of industrial related gases to be close to 2 ppm at atmospheric pressure and room temperature. For investigation purposes, we have also conducted, prior to this simulation [7], [8], differential pressure measurements on two nonpolar gases like argon and helium. The equivalent concentration of humidity resulting from the variation of the dielectric constant is between 6–10 ppm for the same thermodynamic conditions. Those measurements were realized using cylindrical resonators at $f_r = 3.48$ GHz with the TE₁₁₂ mode excited by an antenna connected to a 3.5 mm coaxial line. The resonant frequencies of both resonators were closely matched by inserting metallic rods inside the cavities. The estimated value of the Q -factor associated with the TE₁₁₂ mode turns out to be around 32 000, but the measured value is about 7000 under vacuum. This difference is not unusual and can be partly explained by the nonperfect ohmic contacts between the covers and the walls of the resonators and by some oxidation of the inner-wall silver-plated surface.

Among the most influential and controllable factors enhancing the performance of the differential technique are the lengths of the lines joining each resonator to the hybrid coupler, the quality factor, and the resonant frequency difference. Accordingly, we have altered our original setup by adding two adjustable coaxial lines for phase variation and modified both resonators. For the latter case, the TE₀₁₁ mode was selected for its high Q -factor (see (4)), because of the absence of axial conduction currents and also for better resonant frequency adjustment. The measured Q -factor is now about 15 000 at $f_r \approx 7.8$ GHz. We have measured the above parameters when both resonators are initially filled at equal pressure with sulfur hexafluoride (SF_6), a gas whose dielectric strength is sensitive to humidity. Table IV shows the values of the difference of four measured parameters between the measuring and the reference resonators where $\Delta \Phi$ is the phase difference between the signals going to each resonator. According to Figs. 7 and 10, we can neglect the influence of $\Delta \Phi \equiv \Delta \theta$, of ΔR_0 and, implicitly, of $\Delta \ell$. We can suppose that the amplitudes of the signals reaching each resonator are sufficiently close so that $\Delta A_m \rightarrow 0$ when the signal division at the hybrid coupler is well balanced. The absolute value of the Q -factor of each modified resonator ($\sim 15 000$) is twice the previous value so the sensitivity would double when considering the linear behavior. On the other hand, the relative difference of the Q -factor is not high enough to significantly lower this sensitivity (see Fig. 11). The sensitivity might be otherwise influenced by the resonant frequency difference $\Delta f_r = -102$ kHz. As we can see from Fig. 9, for negative values of Δf_r , it might be a challenge to estimate accurately the measuring frequency where the sensitivity would be maximum. This problem can be easily overcome by scanning on a frequency window large enough in order to locate this maximum, and in our case the measuring frequency is $f = 7.77142 \pm 0.00001$ GHz. Finally, it was specified in Section III-B that both lines joining each resonator need to be of the same length in order to have $V_{out} \propto \Delta \Gamma''$. This condition is satisfied because $\Delta \Phi \approx 0^\circ$ near the resonant frequency. The detection threshold is now two times lower (3–4 ppm) [12] compared to the previous setup, essentially because of the improved Q -factor.

IV. CONCLUSION

It was shown that this microwave differential technique can be optimized for the measurement of humidity in gases. The first part of the simulation proves that the sensitivity is maximum when the output voltage of the hybrid coupler is proportional to $\Delta \Gamma''$. This is possible when the relative phase difference between the lock-in amplifier input signal and its reference signal is 90° . The resistance at resonance and the antenna inductance do not have much influence on the system performance, while the sensitivity varies linearly as expected with the quality factor.

The second part of the simulation presents the effects of asymmetries between the measuring and the reference branches of the circuit. The sensitivity has a quadratic behavior with differences in the line length and a linear behavior with differences in the amplitude of the hybrid coupler and the quality factor. The phase variation produced by the hybrid coupler

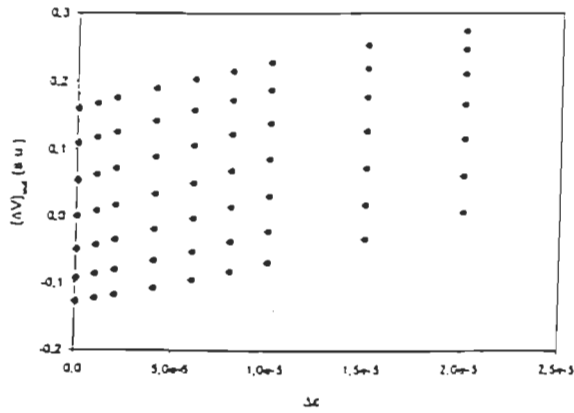


Fig. 8. Hybrid coupler output voltage as a function of $\Delta\epsilon$ for $\Delta f_r = -75$ kHz (bottom curve) to $\Delta f_r = +75$ kHz (top curve).

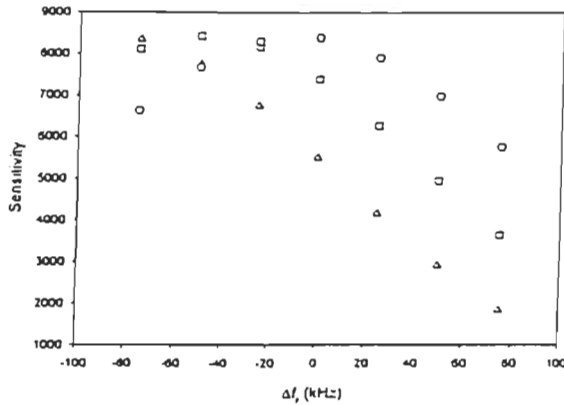


Fig. 9. Sensitivity as a function of Δf_r for three frequencies: circle: 7.800 04 GHz; square: 7.800 00 GHz; triangle: 7.799 96 GHz.

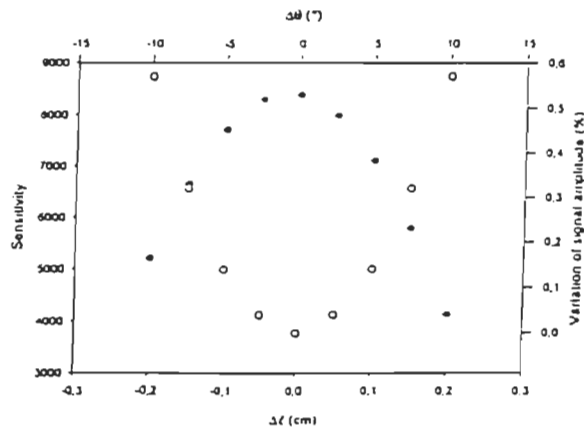


Fig. 10. Sensitivity as a function of Δl (dark circle) at $f = 7.800 04$ GHz and variation of the signal amplitude as a function of $\Delta\theta$ (open circle) at $\Delta\epsilon = 2 \times 10^{-5}$.

within its specific tolerance does not influence the sensitivity and has a small effect on the output voltage. In all cases, the

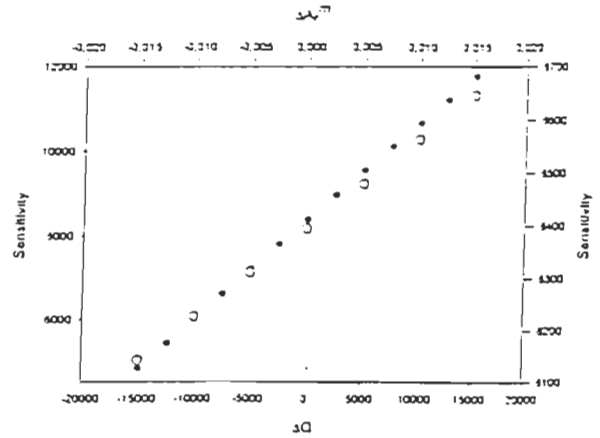


Fig. 11. Sensitivity as a function of ΔQ (dark circle) and $\Delta\phi$ (open circle) at $f = 7.800 04$ GHz.

TABLE III
VALUES OF THE SENSIBILITIES WITH RELATIVE ERROR AT THREE MEASURING FREQUENCIES FOR DIFFERENT FREQUENCY SHIFTS

Δf_r (kHz)	$f = 7.79996$ (GHz)	\pm (%)	$f = 7.80000$ (GHz)	\pm (%)	$f = 7.80004$ (GHz)	\pm (%)
-75	8343	0.8	8113	1.3	6623	3.2
-50	7760	1.9	8429	0.3	7673	2.0
-25	6742	3.1	8171	1.2	8307	0.8
0	5474	4.3	7394	2.4	8394	0.6
+25	4146	5.5	6252	3.6	7915	1.7
+50	2906	6.9	4938	4.7	6969	2.9
+75	1839	9.1	3631	6.0	5734	4.0

TABLE IV
VALUES OF THE MEASURED DIFFERENCE OF FOUR PARAMETERS WHEN BOTH RESONATORS ARE FILLED WITH SF₆ AT TWICE THE ATMOSPHERIC PRESSURE AT $T = 296$ K. THE VALUE OF ΔR_0 REPRESENTS THE AVERAGE DIFFERENCE OF THE RESISTANCE AT RESONANCE OF BOTH RESONATORS COMPARED WITH THE CHARACTERISTIC IMPEDANCE OF THE COAXIAL LINE (50 Ω)

Parameters	difference
Δf_r (kHz)	-102 ± 14
ΔQ	1196 ± 635
ΔR_0 (ohms)	10 ± 1
$\Delta\phi$ °	0.75 ± 0.15

output signal $(\Delta V)_{out=0}$ is not zero when $\Delta\epsilon = 0$. Since it would be technically impossible to have perfect symmetry, a calibration procedure becomes imperative to determine the value of $(\Delta V)_{out=0}$, and one needs to sufficiently balance both branches of the circuit in order to avoid a nonlinear regime of the microwave amplifier and consequently a decreased sensitivity. Comparison of the experimental data with the simulation results shows good agreement with the improved detection threshold while the asymmetries do not influence significantly the performance of the system.

REFERENCES

- [1] T. K. Mehrhoff, "Comparison of continuous moisture monitors in the range 1 to 15 ppm," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 56, pp. 1930-1933, 1985.
- [2] R. J. King, "On-line moisture and density measurement of foods with microwave sensors," *Appl. Eng. Agriculture*, vol. 13, pp. 361-371, 1997.
- [3] S. Solomon, *Sensors Handbook*. New York: McGraw-Hill, 1998.
- [4] J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose, S. Yagihara, and N. Shinyashiki, "Dielectric study on dynamical structure of water in moist materials using dielectric resonator," in *Proc. Third Workshop Electromagn. Wave Interaction Water Moist Substances*, Athens, GA, Apr. 11-13, 1999, pp. 97-101.
- [5] S. Trabelsi, A. W. Kraszewski, and S. O. Nelson, "A microwave method for on-line determination of bulk density and moisture content of particulate materials," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, vol. 47, pp. 127-132, 1998.
- [6] S. O. Nelson and P. G. Bartley Jr, "Open-ended coaxial-line permittivity measurement on pulverized materials," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, vol. 47, pp. 133-137, 1998.
- [7] J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose, and M. F. Fréchet, "Microwave methods to measure traces of contaminants in gases," in *Proc. 10th Int. Symp. High Voltage Eng.*, Montreal, P.Q., Canada, Aug. 25-29, 1997, pp. 311-314.
- [8] J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose, and M. F. Fréchet, "Investigation of a microwave differential cavity resonator device for the measurement of humidity in gases," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 70, 1999.
- [9] P. R. Karmel, G. D. Colef, and R. L. Camisa, *Introduction to Electromagnetic and Microwave Eng.*. New York: Wiley, 1998.
- [10] D. M. Pozar, *Microwave Eng.*, 2 ed. New York: Wiley, 1998.
- [11] R. A. Chipman, *Transmission Lines*. New York: McGraw-Hill, 1968.
- [12] J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose, and M. F. Fréchet, "Performance of a microwave sensor for the precise measurement of water vapor in gases," *IEEE Trans. Dielect. Electr. Insul.*, Sept. 2000.

J. F. Rouleau was born in Montréal, P.Q., Canada, on March 18, 1969. He received the M.Sc. degree in physics in 1995 from the Université du Québec, Trois-Rivières, and he is currently pursuing the Ph.D. degree in energy and materials sciences from the Institut National de la Recherche Scientifique (INRS), Varennes, P.Q., and the Hydrogen Research Institute, Trois-Rivières.

His interests are microwave measurements and development of RF and microwave techniques for dielectric characterization of materials.

Dr. Rouleau was the recipient of NSERC postgraduate scholarships from 1992 to 1996 and of the IEEE Microwave Theory and Techniques Society Fellowship in 1998.

Jacques Goyette was born in Cap-de-la-Madeleine, P.Q., Canada, on April 13, 1952. He received the B.S. degree in physics from Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR) in 1975 and the Ph.D. degree in physics from Harvard University, Cambridge, MA, in 1986.

He has held different positions at UQTR. From 1986 to 1991, he was a post-doctoral fellow and a research fellow with the Dielectric Research Group of the physics department of UQTR. Since then, he has been a Professor with the same department. He is presently associated with the Institut de Recherche sur l'Hydrogène of UQTR. His current research interests include the study of the dielectric properties of materials, the storing of hydrogen in metal hydrides, and the development of ultrasonic, nondestructive evaluation methods that can be used to inspect hydrogen reservoirs.

Tapan K. Bose received the Ph.D. in physics from the University of Louvain, Belgium, and did his post doctoral studies at Brown University, Providence, RI.

Presently, he is a Professor of physics and Director of the Hydrogen Research Institute at the University of Québec, Canada. He is also Chairman of ISO/TC 197 for hydrogen technologies and President of the Canadian Hydrogen Association. Currently, he is a member of the Hydrogen Technical Advisory Group of the government of Canada and a member of the Board of Directors of the National Hydrogen Association in the United States.

He is author and co-author of more than 125 publications and four books. He is also author of 14 patents and numerous technical reports. He has delivered more than 90 invited lectures.

Dr. Bose has received the following awards: Medal of the Governor General of Canada for services rendered to Canada on the occasion of the 125th anniversary of the Confederation on April 23, 1993; Laureate of Research and Development, Fifth Energia Gala, Association of québécoise pour la maîtrise de l'énergie (AQME) on October 1994; Medal of Merit from the Université du Québec à Trois-Rivières for his scholarly achievements on March 26, 1994; Meritorius Service Award from the National Hydrogen Association (Washington, DC) for his outstanding leadership for both ISO/TC 197 (for hydrogen technologies) and the Canadian Hydrogen Association on March 8, 2001.

M. F. Fréchet has a graduate background in physics.

He joined the Institut de recherche d'Hydro-Québec, Varennes, Canada, in 1981. Since then, he has performed applied basic research in various fields related to electrical insulation and insulating materials. His major contributions concern discharge physics and dielectric phenomena.

2.3 TROISIÈME ARTICLE

PERFORMANCE D'UN DÉTECTEUR MICRO-ONDE POUR LA MESURE PRÉCISE DE LA VAPEUR D'EAU DANS LES GAZ

Résumé

Un détecteur micro-onde conçu pour la mesure de l'humidité dans l'hexafluorure de soufre (SF_6) a été développé comme instrument en mode *in-situ* pour l'industrie de production d'électricité. Cette technique peut être utilisée pour mesurer efficacement le niveau d'humidité pour prévenir l'accumulation excessive de vapeur d'eau afin de conserver l'intégrité de certains équipements électriques. Le principe du système de mesure est basé sur les propriétés diélectriques d'un mélange gazeux à la pression atmosphérique et à la température ambiante. La différence de tension venant d'une cavité de mesure par rapport à une cavité de référence est reliée à la quantité de vapeur d'eau dans le SF_6 . Le montage est assez sensible pour détecter un taux d'humidité jusqu'à 3 ppmv.

Article accepté pour publication dans *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 7, no. 6, p. 825 (2000).

Performance of a Microwave Sensor for the Precise Measurement of Water Vapor in Gases

J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose

Institut de Recherche sur l'Hydrogène
Département de Physique
Université du Québec Trois-Rivières
Trois-Rivières, Québec, Canada

and M. F. Fréchette

Institut de Recherche d'Hydro-Québec
Varembes, Québec, Canada

ABSTRACT

A microwave sensor designed for the measurement of humidity in sulfur hexafluoride (SF₆) has been developed for possible in-line use in the electrical utilities industry. This technique could be used to measure efficiently the humidity level to prevent excess moisture and to keep the electrical integrity of sensitive electrical equipment. The measuring system is based on the dielectric properties of the gas mixture at atmospheric pressure and ambient temperature. The voltage difference coming from a measuring cavity resonator and a reference one is related to the amount of water vapor in SF₆. The setup is sensitive enough to detect moisture levels down to 3 ppm.

1 INTRODUCTION

MOISTURE level measurement and control are important to proper operation of SF₆ equipment [1]. It has been a well established fact in the electrical industry for years that excessive moisture degrades the electrical performance of insulating systems. When the moisture level is too high, a risk of flashover across the surface of solid insulation becomes possible. This phenomenon has detrimental effects [2] on the dielectric strength of SF₆. In circuit breakers and disconnect switches, where arcing routinely happens, chemical breakdown of SF₆ occurs and releases free fluorine. Fluorine is very active chemically and combines with water to form hydrofluoric acid (HF). Keeping the humidity level acceptably low can minimize the undesirable presence of these substances in SF₆ switchgear.

The presence of moisture in originally dry SF₆ of a gas-insulated system (GIS) comes from the migration of adsorbed humidity in the micropores of the insulation material. After a given period of time, the moisture concentration can reach a level higher than that required for safe operation of the equipment, which in many cases should not exceed 600 ppm.

In order to keep the integrity of GIS, it therefore becomes imperative to monitor the level of moisture as a means of prevention and damage control. The technologies for on-line determination of moisture for process control is reviewed extensively by Carr-Brion [3]. Aside from solid-state based sensors (e.g. capacitive technique) which are sensitive to reactive gases or require frequent calibration, we find that infrared (IR) gas spectrometers measuring the IR absorption lines or microwave spectrometers measuring the water rotation line at 22.235 GHz [4] and gas chromatography offer good performance but are very expen-

sive, bulky and difficult to use on-line. On the other hand, microwave aquametry has found widespread use for on-line moisture detection in an extensive variety of solid-like materials during manufacturing processes [5]. From that viewpoint, we have developed a resonator-based microwave differential technique for the detection of humidity in SF₆. The instrument is able to measure moisture levels <10 ppm, and can be used on line with an appropriate filter for moisture removal connected to the reference resonator. This apparatus has a fast response time and good stability. It requires minimum maintenance and can be used with reactive gases so that it should remain insensitive to SF₆ products. It also can be effective over a wide concentration range of humidity in optimized conditions at atmospheric pressure and room temperature. The on-line monitoring of the humidity level with this system should prove useful in preventing excess moisture levels and irreversible damage in GIS.

2 THEORETICAL BACKGROUND

2.1 DETERMINATION OF THE DIELECTRIC VIRIAL COEFFICIENT

For a cylindrical cavity resonator of diameter D and length l filled with a gas of permittivity ϵ_r , the resonant frequency f_r , is given by [6]

$$f_r = \frac{c}{\sqrt{\mu_r \epsilon_r}} \sqrt{\left(\frac{q'_{nm}}{\pi D}\right)^2 + \left(\frac{p}{2l}\right)^2} \quad (1)$$

where c is the velocity of light in free space, μ_r the relative permeability, ϵ_r the relative permittivity, p the number of half wavelengths from one end of the cavity to the other, and q'_{nm} (for TE mode) is the m th

root of the first derivative of the n th order Bessel function J_n of the first kind. For any TE mode, the relative permittivity can be found by

$$\varepsilon_r = \left(\frac{f_0}{f_r}\right)^2 \quad (2)$$

where f_0 is the resonant frequency of the resonator under vacuum.

The virial form of the Clausius-Mosotti equation in powers of molar density ρ is [7]

$$\left(\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2}\right) = A_\varepsilon \rho + B_\varepsilon \rho^2 + C_\varepsilon \rho^3 + \dots \quad (3)$$

where A_ε , B_ε , and C_ε are, respectively, the first, second, and third dielectric virial coefficients. This equation, strictly speaking, is only valid for the permittivity in the non-dispersive frequency region. As we shall see later, the measurement of $(A_\varepsilon)_{SF_6}$ at microwave frequencies allows us to check that there is no dispersion in SF_6 and that, as a consequence, Equation (3) is also valid in the microwave region. The virial equation of state is [8]

$$\frac{P}{RT} = \rho + B_p \rho^2 + C_p \rho^3 + \dots \quad (4)$$

where P is the pressure, R is the universal gas constant, T the absolute temperature, and B_p and C_p are respectively the second and third pressure virial coefficients. Using Equations (3) and (4) we find

$$\chi \frac{RT}{P} = A_\varepsilon + \frac{B_\varepsilon - A_\varepsilon B_p}{A_\varepsilon} [CM] + \dots \quad (5)$$

where $\chi = (\varepsilon - 1)/(\varepsilon + 2)$. A graph of $\chi(RT/P)$ as a function of χ will therefore give a straight line having A_ε as its intercept, assuming that the contribution of the third term will be negligible in the measured pressure range. The determination of ε necessary to compute χ can be done from Equation (2) at constant temperature.

2.2 DETERMINATION OF THE CONTAMINANT CONCENTRATION

For a gas mixture at low pressure, the relative change in the measured permittivity $\Delta\varepsilon$, induced by the presence of a contaminant can be found from Equation (3) and from the first dielectric virial coefficient of a binary gas [7]

$$\Delta\varepsilon \approx 3x\rho[(A_\varepsilon)_c - (A_\varepsilon)_p] \quad (6)$$

where x is the molar fraction of the contaminant, $\rho \approx P/RT$ and $(A_\varepsilon)_c$ and $(A_\varepsilon)_p$ are the first dielectric virial coefficients of the gaseous contaminant and the pure gas respectively. On the other hand, it can be seen from Equation (2) that a small shift in f_r will occur due to the presence of a contaminant

$$\frac{\Delta\varepsilon_r}{\varepsilon_r} = -2 \frac{\Delta f_r}{f_r} \quad (7)$$

The microwave differential technique consists in measuring the reflection coefficient difference $\Delta\Gamma$, between the reference and the measuring resonators; it has been shown [9] that the resulting output voltage that can be detected on a lock-in amplifier is

$$V_L \approx K[\Delta\Gamma' \cos(\Delta\phi - \phi_{ref}) + \Delta\Gamma'' \cos(\Delta\phi + \phi_{ref}) - \Delta\Gamma' \sin(\Delta\phi - \phi_{ref}) - \Delta\Gamma'' \sin(\Delta\phi + \phi_{ref})] \quad (8)$$

where K is a constant, $\Delta\Gamma'$ and $\Delta\Gamma''$ respectively are the real and imaginary parts of the reflection coefficient and $\Delta\phi \pm \phi_{ref}$ is the phase difference between the lock-in input signal and its reference signal.

With appropriate phase adjusting one can optimize that signal to make it proportional to $\Delta\Gamma''$ [9].

3 EXPERIMENT

Figure 1 shows a simplified schematic diagram of the differential system. The block diagram of the differential setup has been described elsewhere [10]. Here we present in more detail the design of the cavity resonators and the surrounding components. Figure 2 shows the dimensions of the silver-plated cylindrical resonators which are aperture coupled with coaxial adapted rectangular waveguides (WR-112) operating in the dominant TE_{10} mode. According to the dimensions of the resonator and Equation (1) for a TE_{10} mode, the resonant frequency under vacuum should be $f_0 \approx 7.3$ GHz and can be varied with the movable piston. The rod mounted on the piston next to the turning knob keeps the metallic surface parallel to the bottom surface. Transmission of the energy into the resonators is achieved through a circular iris where the TE_{10} electric field is converted to a TE_{011} fundamental cavity mode. The diameter d of the iris has been adjusted experimentally so that the cavity is nearly critically coupled to the waveguide. We added a movable plate to adjust easily the resonant frequencies of both resonators. This innovative approach avoids erratic ohmic contacts between different parts of a resonator because of the absence of axial conduction currents. The 180° hybrid coupler (Narda model 4343) divides a modulated input signal and sends parts of it to each tuned cavity. When the gas and the pressure inside both cavities are identical ($\Delta P=0$), the output signal at a given frequency should be zero, in ideal conditions. An adjustable line is connected to the measuring cavity in order to shift the phase of the reflected signal with respect to the reflected signal of the reference cavity.

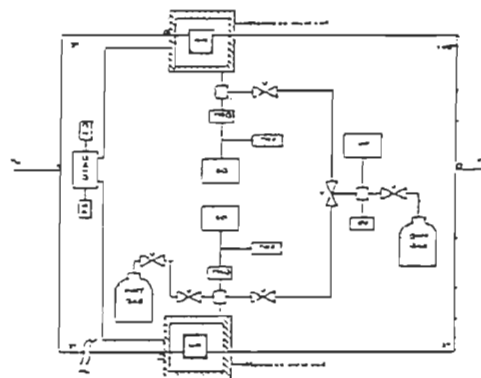


Figure 1. Schematic diagram of the differential system. RR: reference resonator, MR: measuring resonator, SO: signal output, TRF: transformer, TRD: transducer, V: valve, VP: vacuum pump, SV: safety valve, DTRD: differential transducer, PS: power source, AL: adjustable line, V_m : amplitude modulated signal from microwave synthesizer, V_{out} : mixed amplified output signal to lock-in amplifier.

The measuring and the reference resonators are mounted inside stainless steel cells. Small holes in the bottom part of the resonators permit to equilibrate the pressure of the gas inside the resonators with the one inside the cells. The pressure in each cell is measured with a calibrated pressure transducer (Keller 0 to 2 MPa) and the pressure

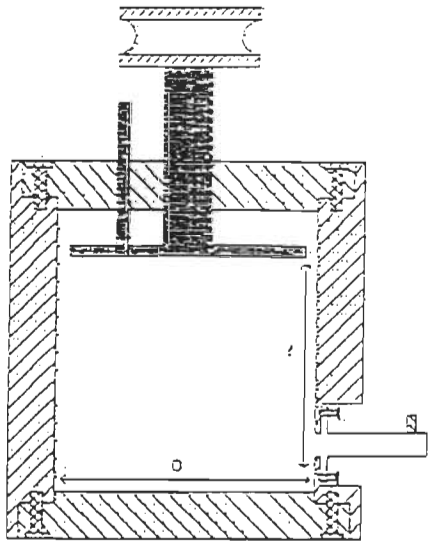


Figure 2. Microwave cylindrical cavity resonator with rectangular waveguide. The cavity dimensions are $D=4.925$ cm and $l=6.300$ cm.

difference between the cells is measured with a calibrated differential pressure sensor (Sensotec 0 to 2 MPa). The voltage output readout is precise enough to detect pressure differences of ~ 40 Pa.

The mixture of SF_6 and water vapor is prepared by circulating dry SF_6 (purity 99.8%) in a saturator filled with pure water according to a hygrometry technique [11]. The resulting mixture passes through a condenser to remove excess moisture and is stored in a stainless steel cylinder at room temperature. The partial pressure of water vapor p_{H_2O} of a saturated mixture at $T=296$ K can be found in the CRC Handbook [12] and $p_{H_2O}=2800$ Pa. Thus for a mixture with a total pressure of $P_{tot}=343540$ Pa, the concentration of water vapor is $x_{H_2O}=8150$ ppm. Several dilutions are necessary to bring down the concentration below 1000 ppm. The aqueous vapor concentration of the mixture in thermodynamic equilibrium is determined with a hygrometer (MCM Dewmatic 600D, 1–1000 ppm) connected on-line. Further dilutions with dry SF_6 are done on the differential setup. In the next Section, we first performed experiments to confirm the system reliability for two different gaseous environments, i.e. SF_6 and CO_2 .

4 RESULTS AND DISCUSSION

4.1 EVALUATION OF THE FIRST DIELECTRIC VIRIAL COEFFICIENTS OF SF_6 AND CO_2

The determination of $(A_2)_{SF_6}$ and $(A_2)_{CO_2}$ is done with the measuring cavity resonator being one-port connected to a network analyzer (HP8510B) which is fed by a microwave synthesized sweeper (HP8341B). The permittivity is measured from Equation (2) at $T=296$ K, to a pressure 8.75×10^5 Pa, which is well below the saturating pressure of SF_6 and CO_2 . Figure 3 shows a graph of $\chi RT/P$ as a function of χ and the computed value of the first virial coefficients

are $(A_2)_{SF_6}=(15.471 \pm 0.014) \times 10^{-3}$ m³/mol and $(A_2)_{CO_2}=(7.405 \pm 0.004) \times 10^{-3}$ m³/mol which are consistent with the high precision low frequency value of Hosioka and Bose [13] and Obriot *et al.* [14].

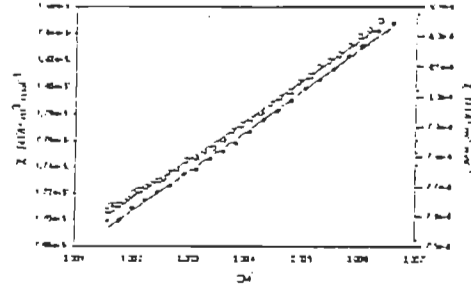


Figure 3. Experimental results of $[(\epsilon - 1)/(\epsilon + 2)](RT/P)$ vs. P/RT at $T=296$ K. Open circles: CO_2 (right vertical axis), filled circles: SF_6 (left vertical axis).

4.2 MEASUREMENT OF THE SENSITIVITY

We first report measurements of the output signal by considering small pressure differences between the reference and measuring resonators filled with dry SF_6 . We take into account the optimized conditions described in a previous paper [15]. A network analyzer (HP8510B) is used to measure the resonant frequency f_r , the quality factor Q (± 3 dB), the input impedance, Z_c and the phase of the reflected signal of each resonator. The gas pressure inside each resonator is $\sim 2 \times$ the atmospheric pressure and the initial pressure difference between both resonators is zero, as verified by the differential pressure sensor. Figure 4 shows for both resonators, the variation of the amplitude of the reflection coefficient Γ as a function of the frequency near the resonant frequency, while Figure 5 shows the behavior of the phase of the reflection coefficient under the same conditions. Figure 6 gives the corresponding input impedance on a Smith chart format. Those parameters deduced from the graphs, after the phase of the measuring cavity has been shifted to equal that of the reference cavity, are given in Table 1. This phase adjusting is important, since the sensitivity now will depend only on the phase difference between the lock-in input signal and its internal reference signal [15]. For each $\Delta P \approx 83$ Pa we perform a frequency sweep from the microwave synthesizer between 7.7705 and 7.7725 GHz and for each sweep we vary the phase of the reference signal ($f_m \approx 50$ kHz) originating from the lock-in amplifier between 0° and 180° in steps of 15° . For a localized specific phase, the maximum sensitivity at a given synthesizer frequency is then computed from the slope of the output signal as a function of the pressure difference. A Labview™ 4.0 routine is used for data acquisition and control of the microwave synthesized sweeper and lock-in amplifier.

Figure 7 shows the amplitude of the output signal V_i of the lock-in, as a function of the frequency for several pressure differences. From Equation (3), for a gas at low pressure, one finds

$$\Delta \epsilon = 2.01 \times 10^{-2} \Delta P \quad (9)$$

i.e. for each ΔP there is an equivalent $\Delta \epsilon$ at constant temperature with $(A_2)_{SF_6} = (15.471 \pm 0.014) \times 10^{-6}$ m³/mol.

Table 1. Measured parameters for each resonators at $\Delta\varepsilon = 0$ for SF₆, from Figures 4, 5 and 6.

Parameter	Measuring resonator	Reference resonator	Unit
f_r	7.771255000	7.771357500	GHz
Q	16360	15164	= 3 dB
Z_c	41 + 27i	40 + 29i	Ω
Phase	89.98	90.73	'

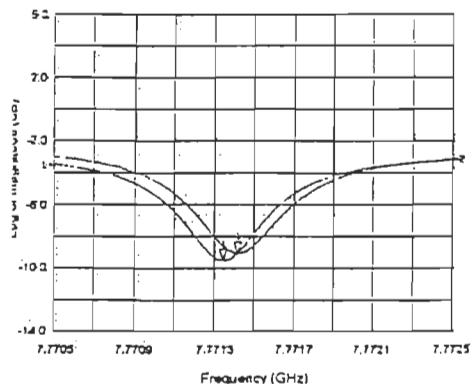


Figure 4. Resonant curves of the measuring resonator (left curve) and the reference resonator (right curve) filled with dry SF₆ at equal pressure. The markers (I) are located at the resonant frequencies of both resonators.

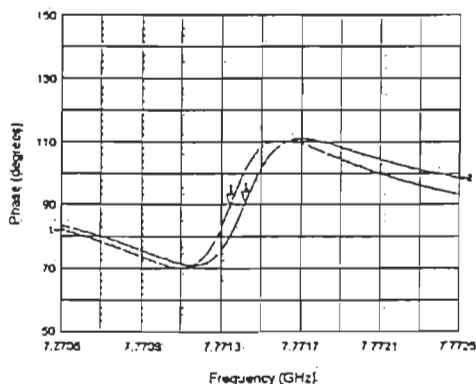


Figure 5. Phase of the measuring signal (left curve) and the reference signal (right curve) of both resonators filled with dry SF₆ at equal pressure as a function of frequency with the markers (I) located at the resonant frequency.

Figure 8 reports the output voltage as a function of $\Delta\varepsilon$ for different phase values of the reference signal at the synthesizer frequency $f=7.77142$ GHz. The maximum sensitivity S , defined by $V_l = S\Delta\varepsilon$, is located when the phase of the lock-in reference signal is near 0° and in that case $S = (7.10 \pm 0.07) \times 10^6 \mu\text{V}$. This curve is reported again in Figure 9, where the upper x axis gives from Equation (6) the equivalent water vapor concentration that would result in the same $\Delta\varepsilon$. The computation of $(A_e)_{\text{H}_2\text{O}} = 75.31 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}$ has been determined with the assumption that, at low concentration in the vapor

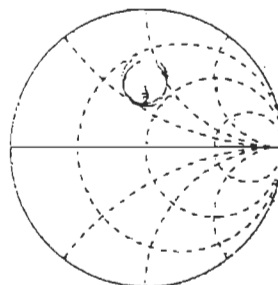


Figure 6. Smith chart of the real and imaginary parts of the impedance of both resonators near the resonance, see Table 1 for values.

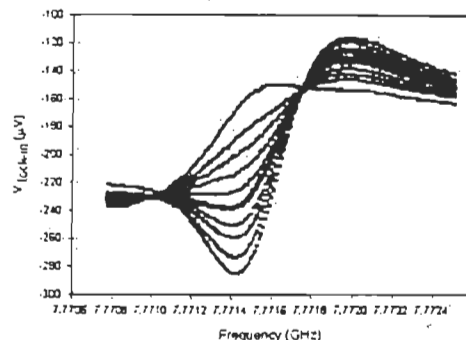


Figure 7. Output signal of the lock-in as a function of the frequency for dry SF₆ at several pressure differences from $\Delta\varepsilon = 0$ (bottom curve) to $\Delta\varepsilon = 1.66 \times 10^{-5}$ (upper curve) for the phase of the reference signal set at 0° .

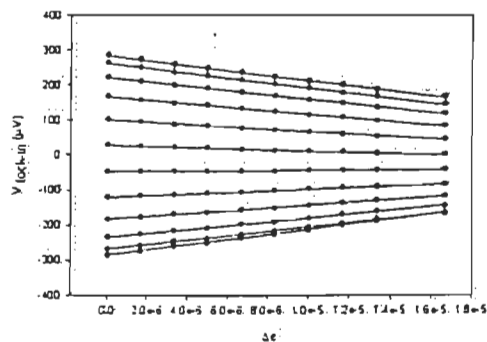


Figure 8. Output voltage as a function of $\Delta\varepsilon$ for different phase values of the reference signal from 0° (bottom curve) to 180° (upper curve) at the synthesizer frequency $f=7.77142$ GHz.

state, the water molecules in SF₆ are isolated from each other. Since the polarizability α_0 and the dipole moment μ_0 of water are well known, one can compute $(A_e)_{\text{H}_2\text{O}}$ with the Debye modified Clausius-Mosotti equation

$$(A_e)_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{N_A}{3\varepsilon_0} \left(\alpha_0 + \frac{\mu_0^2}{3kT} \right) \quad (10)$$

where N_A is Avogadro's number and k the Boltzmann constant. Thus the resulting sensitivity is $S = (10.33 \pm 0.11) \times 10^{-2} \mu\text{V}/\text{ppm}$ with

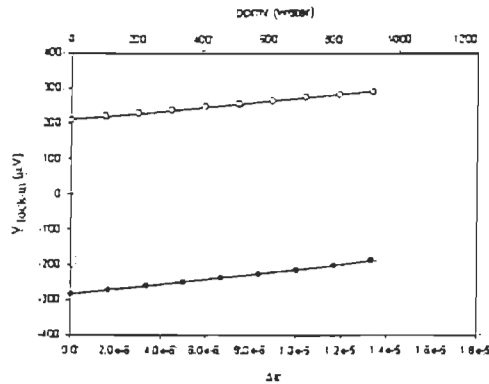


Figure 9. Output voltage as a function of $\Delta\varepsilon$ (bottom x axis) and the equivalent water vapor concentration (upper x axis) for the phase of the reference signal set at 0° for pressure differences of dry SF_6 .

the error computed from the least square method. Considering the amplitude of the noise at the output of the lock-in to be $\sim 0.2 \mu\text{V}$, the detection threshold should therefore be ~ 4 ppm at atmospheric pressure.

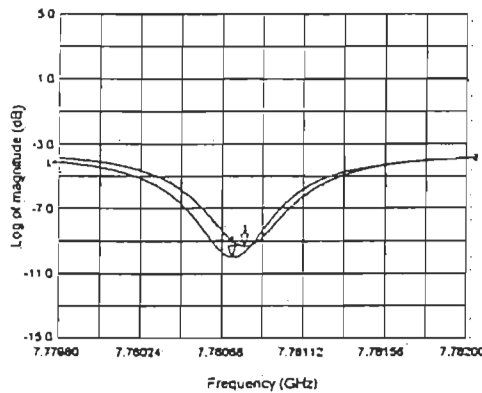


Figure 10. Resonant curves of the measuring resonator (left curve) and the reference resonator (right curve) filled with dry CO_2 at equal pressure. The markers (I) are located at the resonant frequencies of both resonators.

The same procedure has been performed also using CO_2 instead of SF_6 in order to verify the system sensitivity invariance in a different gaseous setting. Figures 10 to 12 show the behavior of both CO_2 filled resonators for the resonant curves, the phase with the markers located at the resonant frequency and the input impedance on a Smith chart format. Those measured parameters are shown in Table 2 where the phase of the reflected signal of the measuring cavity has been shifted to equal that of the reference cavity at equal pressure. From Equation (3), we now have $\Delta\varepsilon = 9.03 \times 10^{-3} \Delta P$. The maximum sensitivity S , at $f = 7.78116$ GHz is again located when the phase of the lock-in reference signal is near 0° and in that case $S = (5.93 \pm 0.11) \times 10^6 \mu\text{V}$. The equivalent sensitivity from Equation (6) for water detection is $S = (9.93 \pm 0.19) \times 10^6 \mu\text{V/ppm}$, see Figure 9.

We now use SF_6 as a nonpolar contaminant in CO_2 to verify the ef-

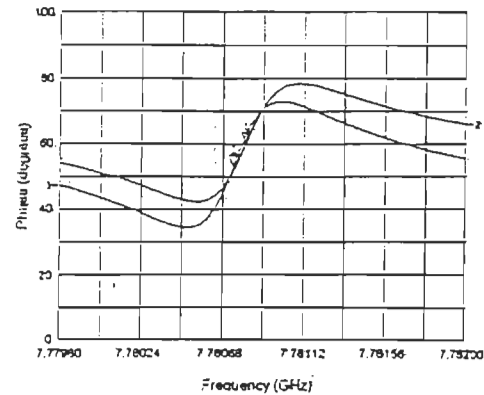


Figure 11. Phase of the measuring signal (left curve) and the reference signal (right curve) of both resonators filled with dry CO_2 at equal pressure as a function of frequency with the markers (I) located at the resonant frequency.

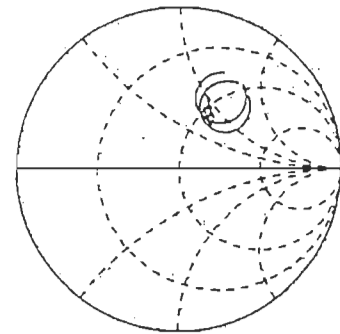


Figure 12. Smith chart of the real and imaginary parts of the impedance of both resonators near the resonance, see Table 2 for values.

Table 2. Measured parameters for each resonators at $\Delta\varepsilon = 0$ for CO_2 from Figures 10, 11 and 12.

Parameter	Measuring resonator	Reference resonator	Unit
f_r	7.78073775	7.778079	GHz
Q	15212	13292	± 3 dB
Z_e	$63 + 35i$	$57 + 39i$	Ω
Phase	52.77	59.43	$^\circ$

fects of an inhomogeneous mixture and water vapor adsorption. When both resonators are at equal pressure and temperature, the equivalent concentration of water vapor is

$$x_{\text{H}_2\text{O}} \approx x_{\text{SF}_6} \frac{[(A_e)_{\text{SF}_6} - (A_e)_{\text{CO}_2}]}{[(A_e)_{\text{H}_2\text{O}} - (A_e)_{\text{CO}_2}]} \quad (11)$$

From the values of Figure 3, one can compute the following: $x_{\text{H}_2\text{O}} \approx x_{\text{SF}_6} \times 0.1335$. The mixtures of SF_6 in CO_2 were done from partial pressure measurements. Figure 13 shows the output voltage as a function of the concentration of SF_6 and the equivalent concentration of water vapor. For $x_{\text{H}_2\text{O}} > 800$ ppm, the sensitivity is nonlinear, so only points corresponding to water concentration < 800 ppm were used to compute the sensitivity and $S = (12.52 \pm 0.53) \times 10^{-2} \mu\text{V/ppm}$.

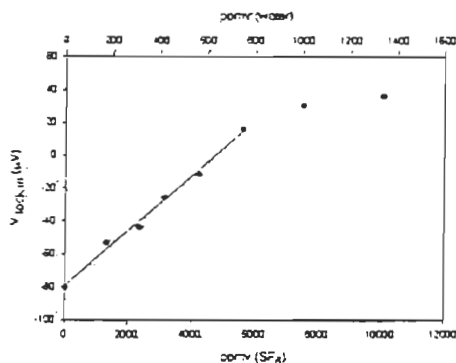


Figure 13. Output voltage as a function of the concentration of SF₆ in CO₂ (bottom x axis) and the equivalent water vapor concentration in SF₆ (upper x axis) for the phase of the reference signal set at 0°.

Table 3. Values of the average sensitivities and detection thresholds. pd = pressure difference.

Experiment type	Sensitivity 10 ⁻² μV/ppm	Detection ppm
SF ₆ pd	8.96±0.15	4.6
CO ₂ pd	10.71±0.47	3.8
SF ₆ in CO ₂	12.95±0.93	3.1
H ₂ O vapor	12.66±0.60	3.2

4.3 MEASUREMENT OF WATER VAPOR

Measurements of the output voltage of SF₆/H₂O mixtures are performed according to the same electrical and thermodynamic parameters as for the previous measurements. The phase of the lock-in internal reference signal is set at 0° and its output signal frequency is 50 kHz with an amplitude of 0.5 V. Also, the lock-in sensitivity is set at 20 mV (1 nA) and the time constant is fixed at 1 s ($\Delta\nu = 1$ Hz) with the low-pass filter slope at 12 dB/octave. The output power of the carrier signal from the synthesizer is 10 dBm (10 mW). Figure 14 shows the output voltage as a function of the water vapor concentration in SF₆ with both resonators maintained at $\sim 2 \times 10^5$ Pa as previously. The time of measurement of data points is ~ 5 min and it mostly depends on the time it takes the mixture to reach thermodynamic equilibrium. The sensitivity is $S = (12.66 \pm 0.60) \times 10^{-2}$ μV/ppm which means a water vapor detection threshold of 3.2 ppm at atmospheric pressure when the noise at the output of the lock-in is ~ 0.2 μV. Table 3 shows the computed averages of the sensitivities relative to the four types of experiments. Comparison of those results with the estimated detection thresholds and experimental values of the sensitivity from [9] shows good agreement since the sensitivity has been increased by a factor of 2 at atmospheric pressure. Better phase adjusting of the measuring circuit branch relative to the reference circuit branch might explain this improvement.

5 CONCLUSIONS

WE presented the performance of a microwave sensor aimed at the detection of water vapor in SF₆ at atmospheric pressure and am-

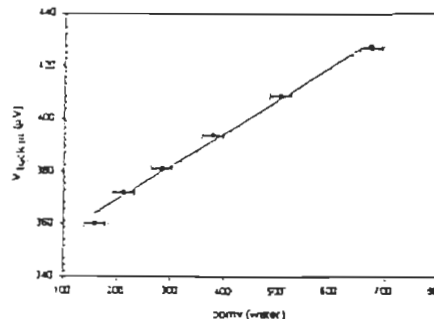


Figure 14. Output voltage as a function of the water vapor concentration in SF₆.

bient temperature. The sensitivity S , computed from the equivalent water vapor concentration, does not vary significantly whether one uses SF₆ or CO₂ (see Table 3). On the other hand, when comparing the computed sensitivity of a nonpolar contaminant such as SF₆ in CO₂ and water vapor in SF₆, there is also no appreciable difference. This could mean the SF₆/H₂O gas mixture is homogeneous inside the measuring resonator and that adsorption of water vapor on the walls of the measuring resonator is minimal. This qualitative assumption would need further experimental support since the TE electric field at the resonance inside a resonator is not only active on the mixture itself, but also on the inner metallic surface. Nevertheless, the differential setup can detect a moisture level down to 3 ppm. The sensitivity can be improved by considering higher TE_{01p} modes, because the quality factor of the resonators increases linearly with $p > 1$, and by increasing the time constant on the lock-in, which adversely increases the time of measurement. Furthermore, linearizing the signal over a wider humidity concentration range (i.e. over 800 ppm) can be achieved by minimizing the resonant frequency difference between both resonators at equal pressure. From Figures 4 and 10, that difference is ~ 100 kHz and could be reduced further by finetuning either resonator. At the same time, one needs to make sure that both lines joining each resonator are of equal length so that the phase difference near the resonance remains constant, in order to keep $V_i \propto \Delta\Gamma''$.

Our microwave method is not spectrometric and it does not detect water specifically; fundamentally our setup can measure small differences between the permittivity of two samples, the first sample is a reference one while the other is the sample under study. Since it is not water selective, it is better used in situation when we expect that water will be, by far, the main polar contaminant. Detection of water in SF₆ equipment should be a preventive measure; in that application, water should be detected and its concentration measured before it occurs in large enough concentration to induce important arcing that will produce polar chemical species like SOF₂ and SO₂F₂. So in normal use, the lack of selectivity of our method should not be a problem. Moreover, the presence of polar molecules other than water also would increase the permittivity of the gas under study; these polar molecules would therefore not hide the presence of water. Relative to water detection in SF₆ equipment, it must also be remarked that our method measures only the water content in the gas itself, like any other methods where a gas sample taken from the equipment is analyzed, it does not mea-

sure the water adsorbed on surfaces. However, since there should be an equilibrium between the adsorbed water and the water found in the gas itself, measurement of the water concentration in the gas gives a good indication of the quantity of water adsorbed on the surfaces. Finally, let us point out that because of the versatility of the differential technique, this method could be applied to other areas of application related to humidity detection.

ACKNOWLEDGMENT

This research was supported financially by Hydro-Québec. J. F. R. would like to thank the DEIS for the student fellowship granted in 1998. This research was also supported by NSERC (Canada) and FCAR (Québec) in the form of student fellowship.

REFERENCES

- [1] T. Nitta, Y. Shibuya, Y. Arahata, H. Takahashi and H. Kuwahara, "Factors controlling surface flashovers in SF₆ gas insulated systems", *IEEE Trans. PAS*, Vol. 97, pp. 959-968, 1978.
- [2] F. Y. Chu, J. M. Braun and H. A. Stuckless, "Generation and effects of low level arcing byproducts in gas insulated equipment", *Gaseous Dielectrics IV*, Pergamon press, 1984.
- [3] K. Carr-Brión, *Moisture Sensors in Process Control*, Elsevier, New York, USA, 1986.
- [4] Z. Zhu, I. P. Matthews and A. H. Samuel, "Quantitative measurements of analyte gases in a microwave spectrometer using a dynamic sampling method", *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 67, no 7, pp. 2496-2501, 1996.
- [5] A. Kraszewski, *Microwave Aquametry*, IEEE Press, New Jersey, USA, 1996.
- [6] P. A. Rizzi, *Microwave Engineering*, Prentice Hall, New Jersey, USA, 1988.
- [7] N. E. Hill, W. E. Vaughan, A. H. Price, and M. Davies, *Dielectric Properties and Molecular Behavior*, Van Nostrand, London, UK, 1969.
- [8] J. Huot and T. K. Bose, "Experimental determination of the dielectric virial coefficients of atomic gases as a function of temperature", *J. Chem. Phys.*, Vol. 95, pp. 2683-2687, 1991.
- [9] J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose, and M. F. Fréchette, "Investigation of a microwave differential cavity resonator device for the measurement of humidity in gases", *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 70, pp. 3590-3594, 1999.
- [10] J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose, and M. F. Fréchette, "Microwave methods to measure traces of contaminants in gases", 10th Int. Symp. on HV Engineering, Montreal, Québec, Canada, August 25-29, pp. 311-314, 1997.
- [11] J. M. St-Arnaud, T. K. Bose, R. Okambawa, and D. Ingrain, "Application of the permittivity measurements to study the influence of the small quantities of water vapor on the compressibility factor of methane", *Int. J. Thermophys.*, Vol. 15, pp. 685-697, 1992.
- [12] D. R. Lide, *Handbook of Chemistry and Physics* (CD-ROM), CRC Press LLC, 1999.
- [13] C. Hosticka and T. K. Bose, "Dielectric and pressure virial coefficients of imperfect gases: Hexadecapolar system", *J. Chem. Phys.* Vol. 60, pp. 1318-1322, 1974.
- [14] J. Obriot, J. Ge, T. K. Bose and J.-M. St-Arnaud, "Determination of the density from simultaneous measurements of the refractive index and the permittivity of gaseous CH₄, SF₆ and CO₂", *Fluid Phase Equilibria*, Vol. 86, pp. 315-350, 1993.
- [15] J. F. Rouleau, J. Goyette, T. K. Bose, and M. F. Fréchette, "Optimization study of a microwave differential technique for humidity measurement in gases", *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, submitted September 7th 1999.

Manuscript was received on 29 February 2000, in revised form 31 July 2000.