

Sur la variation avec la fréquence de mesure de la constante diélectrique et de la conductibilité des mélanges hétérogènes solides

Par

Rauf NASUHOĞLU

*Institut de Physique Expérimentale.
Faculté des Sciences, Université d'Ankara*

Özet : Bu çalışmada, katı halde bulunan grafit tozu trolitul karışımlarının dielektrik sabitleri ile iletkenliklerinin ölçü frekansına bağlı olarak değişimleri incelenmiş ve iki Mc/sn de bir dispersiyon bölgesi tesbit edilerek karışımın rölaksasyon zamanı tayin edilmiştir. Bu dispersiyon bölgesinden faydalanmak suretiyle grafitin dielektrik sabitinin ve iletkenliğinin bazı limit değerleri tayin edilmiştir.

* * *

I. Introduction

Dans une étude théorique antérieure[1] nous avons obtenu des formules exprimant la variation de la constante diélectrique et de la conductibilité des suspensions de types différents en fonction des fréquences de mesure. Le but de ce travail est de vérifier si les formules obtenues expriment bien les faits expérimentaux dans le cas d'une suspension solide de poudre de graphite dans le «trolitul» (polystyrène), et par l'étude d'une région de dispersion, si celle-ci existe, d'obtenir de renseignement sur ces mélanges hétérogènes.

Rappelons les formules donnant la constante diélectrique des mélanges hétérogènes [2] :

Wiener :

(1)

$$\varepsilon = \varepsilon_1 v_1 + \varepsilon_2 v_2$$

(Pour les mélanges de lamelles parallèles au champ de mesure)

$$(2) \quad \varepsilon = \frac{1}{\frac{v_1}{\varepsilon_1} + \frac{v_2}{\varepsilon_1}} \quad (\text{mélanges de lamelles perpendiculaires au champ de mesure})$$

Bruggeman :

$$(3) \quad \varepsilon = \varepsilon_2 \frac{3\varepsilon_1 + 2v_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{3\varepsilon_2 - v_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)} \quad (\text{suspensions de grains de forme lamellaire})$$

$$(4) \quad 1 - v_2 = \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \sqrt[3]{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon}} \quad (\text{suspensions de grains sphériques})$$

Ces formules ont été généralisées [1] dans le cas où l'un des constituants n'est pas une diélectrique parfaite, mais a une conductibilité notable. Comme on sait, les diélectriques hétérogènes de cette espèce ont des constantes diélectriques ε et des conductibilités λ qui varient en fonction des fréquences de mesure; c'est-à-dire, ces mélanges se comportent comme des mélanges liquides polaires. Pour obtenir les formules générales donnant les constantes diélectriques et les conductibilités des mélanges en fonction des fréquences de mesure, les constantes diélectriques des constituants doivent être prises sous la forme complexe :

$$\bar{\varepsilon}_{(1,2)} = \varepsilon_{(1,2)} - i \frac{4\pi}{\omega} \lambda_{(1,2)}$$

dans les quatre formules citées plus haut. Ici $\varepsilon_{(1,2)}$ est la constante diélectrique, $\lambda_{(1,2)}$ la conductibilité, en unités électrostatiques, des constituants. Les conditions qui ont servi à obtenir les constantes diélectriques réelles des mélanges sont valables pour les constantes diélectriques complexes. Donc, en identifiant les parties réelles et imaginaires des formules relatives aux mélanges, où les constantes diélectriques sont prises sous la forme complexe, on obtient des formules qui expriment ε et λ du mélange en fonction des fréquences de mesure. Les calculs faits pour les quatre formules citées ont donné pour les formules (1), (2) et (3) :

$$(5) \quad \varepsilon = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2 \tau^2}$$

$$(6) \quad \lambda = \lambda_0 + \frac{\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2 \tau^2} \cdot \frac{\omega^2 \tau}{4\pi}$$

qui sont les mêmes que les formules de Debye pour la région de dispersion. Ici ε_0 et λ_0 sont les valeurs des constantes diélectriques et des conductibilités pour les fréquences bien inférieures aux fréquences de dispersion ($\omega \rightarrow 0$), ε_∞ et λ_∞ les mêmes constantes bien au delà de même région, et τ le temps de relaxation qui caractérise cette région. Ces valeurs limites qui sont différentes pour chaque cas, peuvent être exprimées en fonction de ε_1 , ε_2 , λ_1 , λ_2 et v_1 , v_2 . Pour les suspensions de lamelles de graphite dans le trolitul, sans orientation définie ces valeurs limites sont données par les formules :

$$(7) \left\{ \begin{array}{l} \text{(a)} \quad \varepsilon_\infty = \frac{3\varepsilon_1 + 2v_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{3\varepsilon_2 + v_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)} \\ \text{(b)} \quad \varepsilon_0 = \frac{\varepsilon_1(1 - v_1) + v_2\varepsilon_2 \left(\frac{\lambda_1^2 + 2\lambda_2^2}{3\lambda_2} \right) - \frac{2v_2(\lambda_2 - \lambda_1)^2}{9\lambda_2^2}}{\left(1 - v_2 \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{3\lambda_2} \right)^2} \\ \text{(c)} \quad \lambda_0 = \lambda_2 \frac{3\lambda_1 + 2v_2(\lambda_2 - \lambda_1)}{3\lambda_2 - v_2(\lambda_2 - \lambda_1)} \\ \text{(d)} \quad \tau = \frac{1}{4\pi} \frac{3\varepsilon_2 - v_2(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{3\lambda_2 - v_2(\lambda_2 - \lambda_1)} \end{array} \right.$$

En se servant des formules (5) et (6) il est possible de prévoir le lieu de la région de dispersion si on connaît les constantes relatives aux constituants ; ou au contraire, si par des mesures faites on connaît la région où la dispersion se produit, on peut, par d'autres mesures faites loin de cette région, et en se servant d'une des formules (7) calculer une des constantes qu'on ne connaît pas. Si l'une des conductibilités est trop grande vis à-vis de l'autre ($\lambda_2 \gg \lambda_1$) les formules (7) se simplifient :

$$(7') \left\{ \begin{array}{l} \text{(b')} \quad \varepsilon_0 = \frac{\varepsilon_1(1 - v_1) + 2v_2\varepsilon_2 \left(1 - \frac{v_2}{3} \right) / 3}{\left(1 - \frac{v_2}{3} \right)^2} \\ \text{(c')} \quad \lambda_0 = \frac{\lambda_1 + 2v_2\lambda_2/3}{1 - \frac{v_2}{3}} \\ \text{(d')} \quad \tau = \frac{1}{4\pi} \frac{\varepsilon_2}{\lambda_2} \end{array} \right.$$

D'autre part, il n'a pas été possible d'obtenir les formules générales donnant les conductibilités et les constantes diélectriques pour la porphyre sphérique, c'est-à-dire, de calculer τ , mais on a pu obtenir les valeurs limites de ε_0 et λ_0 pour $\lambda_2 \gg \lambda_1$ qui sont :

$$(8) \quad \varepsilon_0 = \frac{\varepsilon_1}{(1 - v_2)^3} \quad \lambda_0 = \frac{\lambda_1}{(1 - v_2)^3}$$

Par les mesures faites jusqu'à la fréquence de 40 Mc/sec, nous avons essayé d'explorer la région de dispersion. Pour discuter les résultats obtenus nous avons employé des formules relatives aux suspensions de grains lamellaires et de grains sphériques qui conviennent bien au cas de l'exemple qui nous occupe.

II. Partie Expérimentale

1) Les matières employées.

Pour nos mesures nous avons préparé des mélanges solides de poudre de graphite dans le trolitul de pourcentages en volume différents. L'étude microscopique de la poudre de graphite a montré qu'elle est formée des lamelles aplaties de dimensions bien différentes. Comme on sait que les dimensions des grains n'ont pas d'influence sur la constante diélectrique du mélange, nous n'avons pas essayé de séparer les grains de grandeurs différentes. Les suspensions solides sont obtenues en dissolvant le trolitul dans le benzène et le mélangeant avec la poudre de graphite de volume déterminé. En versant le mélange sur une surface plane on a laissé dessécher pendant une semaine à la température ambiante et une semaine dans l'étuve à 90° C. Des pièces circulaires coupées de ces lames sont empilées dans une forme cylindrique de diamètre 2,80 cm, et pressées par une force de 12000 Kg. De cette façon nous avons obtenu des échantillons de 2,50 à 4,34 mm d'épaisseur, de densité égale à celle calculée à partir des constituants. Les mesures ont été possibles jusqu'à $v = 0.08$ de graphite.

2) L'appareil de mesure.

Les mesures sont faites avec le «Circuit Magnification Meter or Q.Meter» de Marconi Instrument Co. [2]. Comme il s'agit de mesurer les constantes diélectriques et les

conductibilités des mélanges solides, on s'est servi de «Dielectric Loss Test JIG» de l'appareil qu'on relie à ses «Capacitor» bornes. Cette «Loss Test JIG» consiste en deux condensateurs, l'un plan parallèle, dont la distance des armatures entre lesquelles on place l'échantillon à mesurer, peut être réglée à volonté, l'autre cylindrique de capacité variable, tous les deux montés parallèlement au circuit de mesure (Fig. 1).

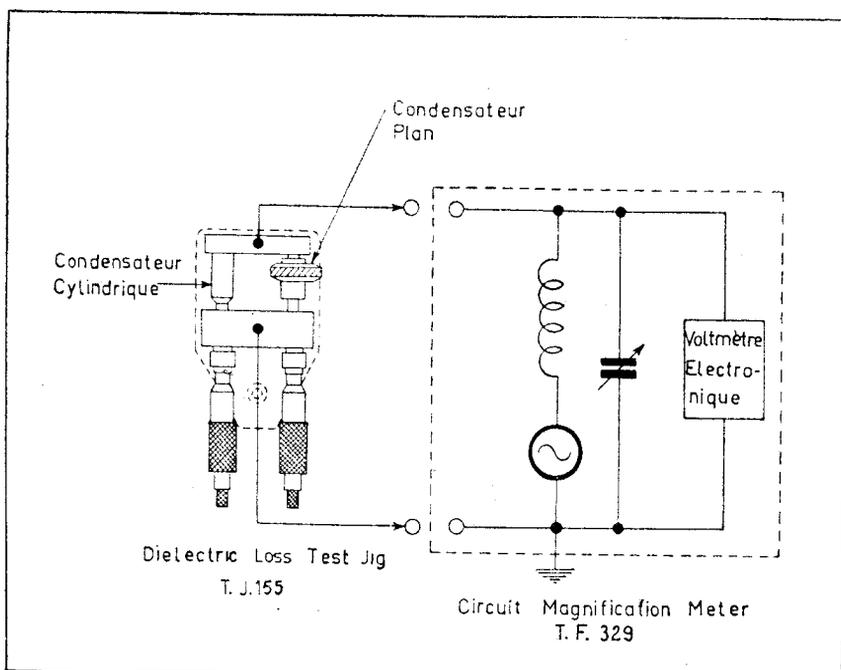


Fig. 1

3) La méthode de mesure.

(a) Pour mesurer les constantes diélectriques, les mélanges solides étant placés entre les armatures du condensateur plan parallèle, on inscrit la distance des armatures et on établit la résonance par le condensateur intérieur de l'appareil. Puis, après avoir retiré l'échantillon du condensateur, en rapprochant les armatures du condensateur plan - parallèle, on rétablit la résonance pour une autre distance (plus petite) des armatures. La constante diélectrique sera $\epsilon = \frac{d}{d'}$. Les corec-

tions nécessaires relatives aux déformations du champ au contour des armatures sont faites.

(b) *La conductibilité.* Les mesures des conductibilités sont faites par les mesures des largeurs des courbes de résonance de circuit de mesure quand le corps solide est entre les armatures du condensateur et quand il est retiré ; c'est-à-dire, quand le condensateur est vide, la largeur du circuit de résonance est mesurée comme la variation ΔC de la capacité nécessaire pour faire varier la valeur de Q d'une certaine proportion. Avec notre appareil cette variation ΔC_i est mesurée par le condensateur cylindrique du «Test JIG». La conductibilité, ou l'inverse de la résistance parallèle équivalente est obtenue par la formule [3] :

$$\lambda_i = \frac{1}{R p_i} = \frac{\pi \nu \Delta C_i}{\sqrt{n^2 - 1}}$$

où ν est la fréquence de mesure $n = \frac{V_r}{V}$ le rapport du voltage de résonance au voltage diminué d'une certaine proportion. En prenant $n = 2$ par exemple, cette formule devient :

$$\lambda_i = \frac{1}{R p_i} = \frac{\pi \nu \Delta C_i}{1,73}$$

la conductibilité du condensateur vide pour le même cas étant

$$\lambda_0 = \frac{1}{R p_0} = \frac{\pi \nu \Delta C_0}{1,73}$$

la conductibilité à mesurer sera :

$$(9) \quad \lambda_i - \lambda_0 = \frac{\pi \nu (\Delta C_i - \Delta C_0)}{1,73} = \frac{\pi \nu \delta C}{1,73}$$

où $\delta C = \Delta C_i - \Delta C_0$. Si δC est exprimé en farads, λ sera donné en ohm^{-1} . C étant la capacité du condensateur, la conductibilité spécifique sera

$$(10) \quad \lambda_s = \frac{\pi \nu \delta C}{4 \pi C \cdot 1,73} = \frac{\nu \delta C}{6,92 C}$$

L'erreur relative calculée sur ε est de l'ordre de 0,01. Comme la valeur de ε va de 2,56 pour le trolitul pur jusqu'à 7,23 pour le mélange de graphite de pourcentage en volume 0,08, l'erreur

absolue sera de l'ordre de $\Delta \varepsilon = \frac{1}{\tau}$ (de 0,02 à 0,07). Quant aux conductibilités, le support en céramique du plateau du «Lost Test JIG» ayant une conductibilité de 10^{-7} ohm^{-1} à 1 Mc/sec, les conductibilités spécifiques inférieures à $\lambda_s = 7 \cdot 10^{-9} \text{ ohm}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ seront difficiles à mesurer. Ainsi, la mesure des conductibilités du trolitul et des mélanges de faible pourcentage en volume qui va jusqu'à 0,02 sont bien imprécises. Les conductibilités étant données par la formule (10) et les valeurs de ν et de C étant connues avec des erreurs inférieures à 0,01, l'erreur qui pesera plus sur λ_s sera celle de δC . L'erreur moyenne quadratique sur δC étant relativement grande, l'erreur relative sur λ_s atteint 0,20 dans les cas les moins favorables et reste de l'ordre de 0,10 dans les cas favorables.

III. Les résultats de mesure.

La variation en fonction des fréquences de mesure de la constante diélectrique et de la conductibilité des mélanges dont le pourcentage en volume va jusqu'à 0,08 est mesurée entre les fréquences 100 Kc/sec et 40 Mc/sec. Les mélanges de pourcentage en volume plus élevé étant trop conducteurs comme on le voit sur les graphiques de la Fig. 2, les constantes diélectriques des mélanges de $v_2 = 0,06, 0,07, 0,08$ restent constantes à des fréquences basses jusqu'à 750 Kc/sec, où elles commencent à diminuer. Ces diminutions continuent jusqu'aux environs de 10 Mc/sec où elles deviennent de nouveau constantes. Ces variations indiquent que dans cette région de fréquence il existe une dispersion.

Les différences $\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty$ des valeurs des constantes diélectriques obtenues pour les fréquences de mesure inférieurs et supérieurs à cette région de dispersion augmentent avec les pourcentages en volume de graphite dans le trolitul (Fig. 3). La fréquence de mesure qui donne la moitié de cette différence est de 2 Mc/sec, et est la même pour ces trois mélanges. Le terme $\omega^2 \tau^2$ de la formule (5) ou (6) doit être égale à 1 pour cette fréquence de 2 Mc/sec. Donc on peut calculer par cette condition le temps de relaxation τ caractérisant cette région de dispersion,

$$\tau = \frac{1}{\omega} = \frac{1}{2\pi \cdot 2 \cdot 10^6} = 0,80 \times 10^{-7} \text{ sec.}$$

qui sera le même pour ces trois mélanges. Pour les autres mélanges de pourcentage en volume plus faible, les différences $\epsilon_0 - \epsilon_\infty$ sont très petites. Par exemple, elle est $\epsilon_0 - \epsilon_\infty = 0,03$ pour $v_2 = 0,05$ et $0,03$ pour $v_2 = 0,04$, restent donc de l'ordre de grandeur de nos erreurs de mesure. Mais, comme la courbe

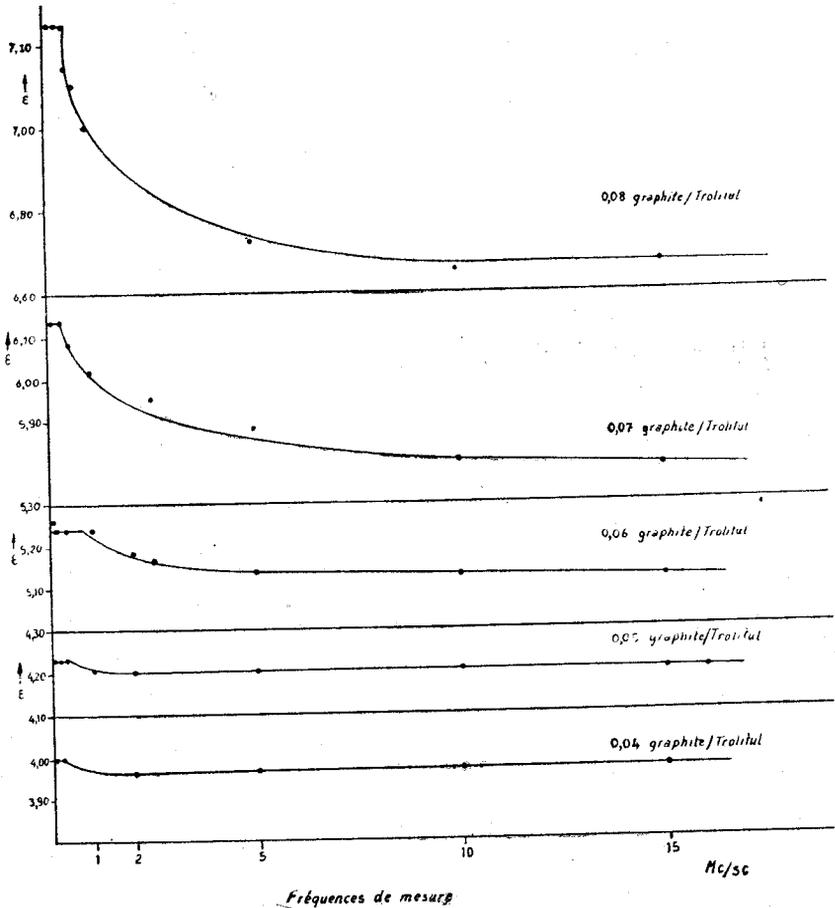


Fig. 2

de la Fig. 3 est linéaire après $v_2 = 0,06$ il est raisonnable d'accepter qu'elle serait également linéaire pour les pourcentages en volume plus faible. Le graphique se composerait alors de deux parties linéaires de pentes différentes.

Le fait que la différence $\epsilon_0 - \epsilon_\infty$ subit une brusque variation

entre les valeurs de 0,05 et 0,06 peut désigner la formation d'une structure particulière dans le mélange pour ces valeurs de v_2 .

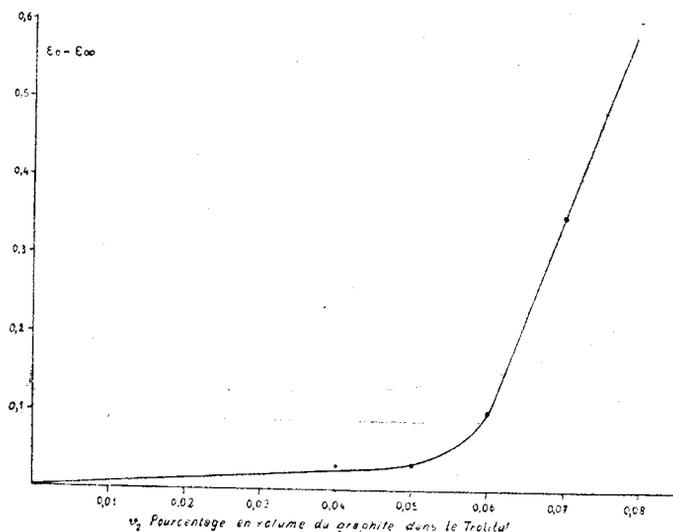


Fig. 3

Les Fig. 4 montrent les variations de ϵ en fonction de $\log \nu$, fréquence de mesure, pour les trois mélanges qui laissent observer une dispersion. Nous avons plutôt tracé entre les valeurs ϵ_0 et ϵ_∞ des courbes de Debye avec le temps de relaxation $\tau = 0,80 \cdot 10^{-7}$ sec. Les points qui représentent les valeurs mesurées étant assez bien alignées le long des courbes, on peut dire que la variation de ϵ peut être bien exprimée par une courbe de dispersion de Debye.

Pour les mélanges de $v_2 < 0,06$ on pourrait aussi tracer des courbes de Debye. Mais, comme nous avons souligné plus haut, les différences $\epsilon_0 - \epsilon_\infty$ étant trop petites et imprécises, nous devons prendre non pas les différences des valeurs mesurées, mais celles obtenues de la courbe de la Fig. 3, extrapolées à l'origine. De cette courbe nous avons obtenu les valeurs :

v_2	0,050	0,040	0,030	0,025	0,020	0,010
$\epsilon_0 - \epsilon_\infty$	0,035	0,028	0,021	0,018	0,014	0,001

Comme τ ne depend pas de v_2 , et est égal à $0,80 \cdot 10^{-7}$ sec pour nos mélanges, nous pouvons utiliser ces valeurs pour calculer la conductivité de ces mélanges dans cette région de dispersion.

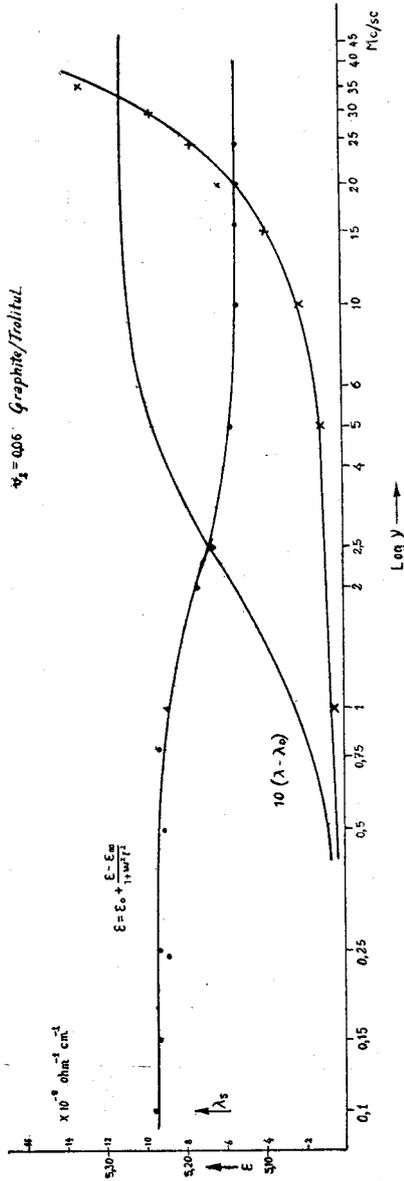


Fig. 4

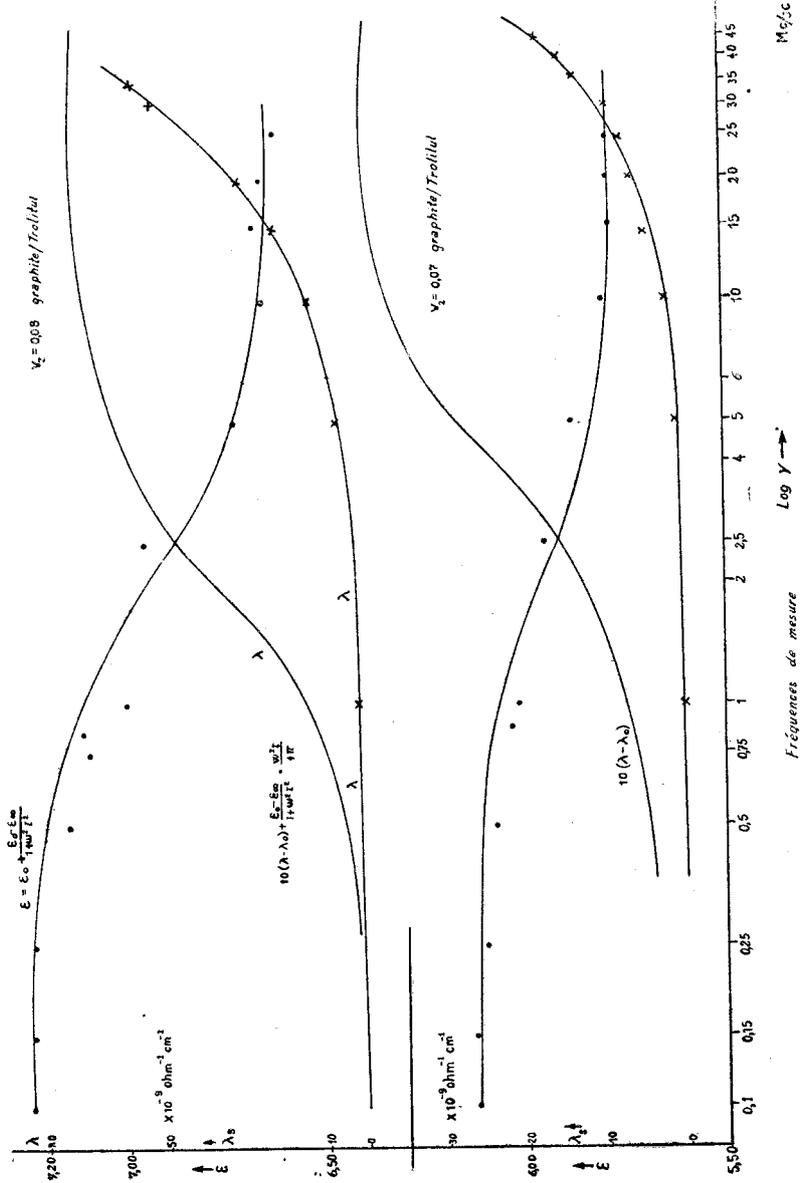


Fig. 4

Fréquences de mesure

M_0/c

TABLE 1

Pourcentage en vol. v_2	Constante diélectrique ϵ_0
0,00	2,56
0,01	2,69
0,02	3,00
0,025	3,21
0,03	3,43
0,04	4,00
0,05	4,22
0,06	5,23
0,07	6,12
0,08	7,23

La Table 1 donne les valeurs ϵ_0 de la constante diélectrique à des basses fréquences de mesure qui sont d'autre part représentées sur la Fig. 5 en fonction de v_2 . Comme on voit sur la

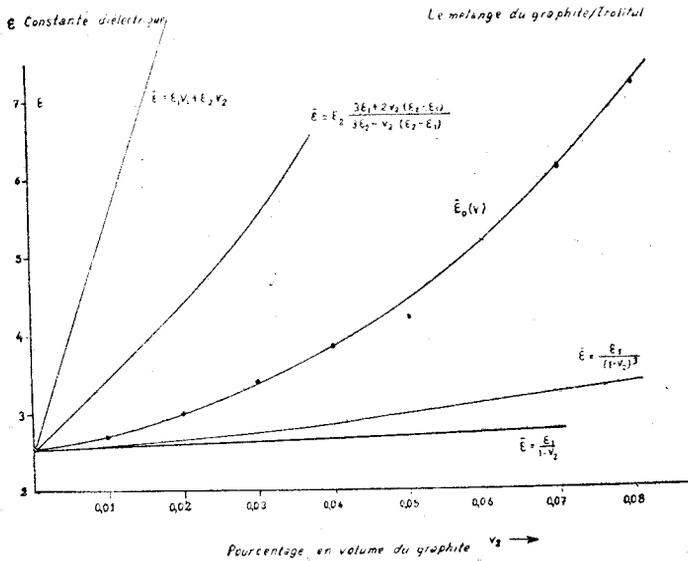


Fig. 5

figure, la courbe $\epsilon_0(v_2)$ se trouve entre les courbes qui représentent les formules limites de Wiener (1,2). Ce résultat n'est pas surprenant, car le mélange est constitué de grains non sphé-

riques suspendus sans orientation définie. D'autre part, $\varepsilon_0(v_2)$ se trouve au dessus de la courbe qui représente la formule de Bruggeman pour la porphyre sphérique (9) simplifiée pour $\lambda_2 \gg \lambda_1$. Ce fait n'est non plus contraire à la théorie. D'autre part, la courbe $\varepsilon_0(v_2)$ se trouve au dessous de la courbe qui représente l'équation (3) de suspension de lamelles longues sans une orientation définie. Cela peut signifier que les grains de graphite ne sont pas formés de lamelles trop allongées, ce qui est vérifié aussi par un examen microscopique.

Maintenant, en se servant des formules limites (7, a, b) qui donnent ε_0 et ε_∞ on peut calculer la constante diélectrique de graphite. La valeur de ε_2 obtenue de ε_0 est de 125. Cette valeur serait une limite inférieure de ε_2 car les formes des grains ont une grande influence sur la valeur de la constante diélectrique du mélange. Pour les grains sphériques cette influence est minimum, tandis que les grains de forme de lamelles longues auront une influence très grande suivant la formule (3). Si nous employons cette formule (3) au cas où les lamelles ne seront pas longues, il sera nécessaire de prendre au lieu de ε_2 une valeur de $a\varepsilon_2$ qui diminue l'influence de ε_2 . Ici a étant un facteur inférieur à 1, ε_2 est donc une limite inférieure. On peut calculer ε_2 de la même façon, mais en se servant de la formule donnant ε_∞ . La valeur obtenue est différente de celle obtenue de ε_0 . Mais il ne faut pas oublier que cette valeur de ε_∞ est relative à la première région de dispersion, et n'intéresse peut être pas toute la masse de graphite ou peut intéresser seulement une structure spéciale qui aurait alors un pourcentage en volume v_2 plus petit. Par exemple, pour $v_2 = 0,04$ la formule donne la valeur $\varepsilon_2 = 120$, qui est la même que celle obtenue de ε_0 .

De la valeur du temps de relaxation $\tau = 0,80 \cdot 10^{-7}$ sec qui caractérise cette région de dispersion, et en se servant de la formule donnant τ où on néglige ε_1 vis à vis ε_2 on obtient l'expression

$$\tau = 0,80 \times 10^{-7} = \frac{1}{4\pi} \frac{\varepsilon_2}{\lambda_2}$$

d'où l'on tire :

$$\frac{\varepsilon_2}{\lambda_2} = 1 \times 10^{-6}$$

Avec la valeur de $\varepsilon_2 = 125$ nous obtenons pour la conduc-

tibilité des grains de graphite qui causent cette dispersion la valeur $\lambda_2 = 125.10^8$ en unités électrostatiques ou $14 \cdot 10^{-5}$ ohm⁻¹.

Les conductibilités. Comme les conductibilités des mélanges de $v_2 = 0,07$ et $0,08$ augmentent très rapidement en fonction de la fréquence de mesure, nous avons représenté ces variations sur la même Fig. 4 à l'échelle logarithmique à coté de graphique de ϵ . A des fréquences suffisamment basses, c'est-à-dire bien au dessous de la région de dispersion, $\bar{\omega}^2 \tau^2$ étant alors trop petit vis à vis de 1 pourra être négligé et la formule (6) deviendra :

$$\lambda = \lambda_0 + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{4\pi} \bar{\omega}^2 \tau$$

Cela veut dire qu'au dessous de la région de dispersion les conductibilités varient proportionnellement aux carrés des fréquences de mesure. En effet, les mesures des conductibilités faites au dessous de 1 Mc/sec avec les mélanges de $v_2 = 0,04$ jusqu'à $0,08$ et qui sont données dans les tables 2 a, b, c, d, e et représentées sur les graphiques de la Fig. 6 montrent bien une telle variation $\left(\frac{\lambda \nu - \lambda_0}{\nu^2} = C^{te.} \right)$. Donc les formules de

Debye (6) expriment bien les faits à ces basses fréquences. En extrapolant les graphiques vers $\nu = 0$ on obtient la valeur $\bar{\lambda}_0$ de la conductibilité dans un champ statique. Les conductibilités des mélanges de $v_2 = 0,04$ au dessous de 1 Mc/sec étant de même ordre de grandeur que la conductibilité $\lambda_s = 6 \times 10^{-9}$ ohm⁻¹ × cm⁻¹ de l'appareil, les mesures ne sont pas précises et nous ne les avons pas données.

Les conductibilités $\bar{\lambda}_0$ dans le champ statique tirées des graphiques (6) sont représentées sur la Fig. 7 en fonction de pourcentage en volume de graphite dans le mélange. La courbe $\bar{\lambda}_0(v_2)$ se trouve comme dans le cas des courbes $\epsilon_0(v_2)$ entre les valeurs limites de Wiener, au dessus de la courbe qui représente la formule (8) de Bruggeman, ce qui s'explique facilement. La courbe $\bar{\lambda}_0(v_2)$ a une allure tout à fait analogue à celle de $\epsilon_0 - \epsilon_\infty$, ce fait peut avoir la même origine.

En se servant de la formule 7 b' de Bruggeman on peut calculer une valeur pour λ_2 où l'on peut prendre $\lambda_1 = 0,5 \cdot 10^{-9}$ ohm⁻¹. On obtient alors une valeur $\lambda_2 = (3 - 5) \cdot 10^{-7}$ ohm⁻¹ qui

TABLE 2. — a, b, c, d, e

Fréquences de mesure ν Mc/sec	Conductibilité mesurée λ_s ohm ⁻¹ cm ⁻¹	Différence des conduc. $\lambda_s - \lambda_0$	$\frac{\lambda_s - \lambda_0}{\nu^2}$
Table 2 a. $\nu_2 = 0,08.$		Valeur prise du graphique $\lambda_0 = 28.10^{-9}$ ohm. ⁻¹ cm ⁻¹	
0,10	29,10 ⁻⁹	1,10 ⁻⁹	1,0
0,25	35 »	7 »	1,1
0,50	54 »	26 »	1,1
0,75	95 »	67 »	1,2
1,00	130 »	102 »	1,0
Table 2 b. $\nu_2 = 0,07.$		Valeur prise du graphique $\lambda_0 = 12.10^{-9}$ ohm. ⁻¹ cm ⁻¹	
0,10	13,10 ⁻⁹	1,10 ⁻⁹	1
0,25	15 »	3 »	0,48
0,50	24 »	12 »	0,48
0,75	38 »	26 »	0,46
1,00	62 »	50 »	0,50
Table 2 c. $\nu_2 = 0,06$		Valeur prise du graphique $\lambda_0 = 2.10^{-9}$ ohm. ⁻¹ cm ⁻¹	
0,10	2,10 ⁻⁹	0,10 ⁻⁹	—
0,25	3 »	1 »	1,6
0,50	6 »	4 »	1,6
0,75	10 »	8 »	1,4
1,00	16 »	14 »	1,4
Table 2 d. $\nu_2 = 0,05$		Valeur prise du graphique $\lambda_0 = 1.10^{-9}$ ohm. ⁻¹ cm ⁻¹	
0,10	1.10 ⁻⁹	1,10 ⁻⁹	—
0,25	2 »	1 »	1,6
1,50	3 »	2 »	0,80
0,75	6 »	5 »	0,88
1,00	9 »	8 »	0,80
Table 2 e. $\nu_2 = 0,04$		Valeur prise du graphique $\lambda_0 = 1,5.10^{-9}$ ohm. ⁻¹ cm ⁻¹	
0,10	1,6.10 ⁻⁹	0,1.10 ⁻⁹	1,0
0,25	0,2 »	0,8 »	1,1
0,50	4,5 »	3,0 »	1,2
0,75	7,8 »	6,3 »	1,1
1,00	12 »	10,5 »	1,0

est trop petite devant la valeur donnée dans la littérature ($\lambda_2 = 1220 \text{ ohm}^{-1}$). Mais il n'est pas nécessaire que la conductibilité des particules de graphite qui causent cette première dispersion soit la même que celle de graphite massive. Mais, comme

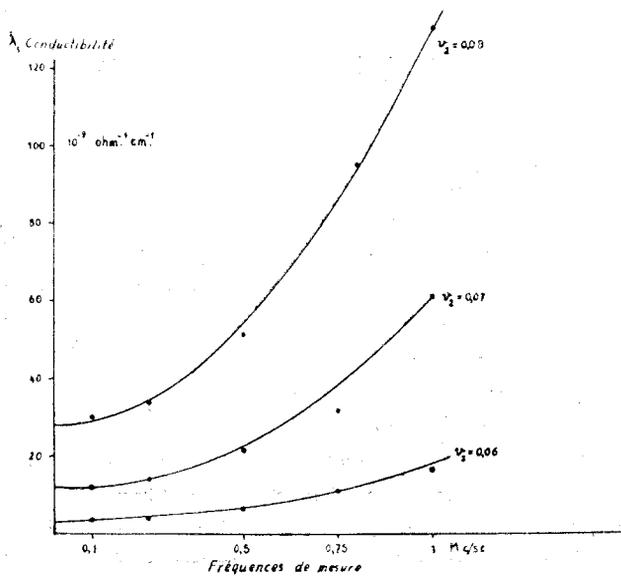
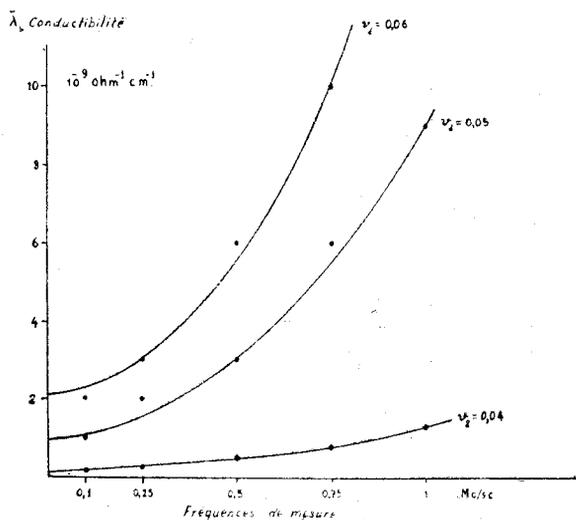


Fig. 6

dans le cas des constantes diélectriques, cela signifie que λ_2 peut avoir plusieurs valeurs limites.

Pour comprendre l'allure de la conductibilité dans la région de dispersion, nous avons calculé $(\lambda - \lambda_0)_1 = \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 + \omega^2 \tau^2} \frac{\omega^2 \tau}{4\pi}$ relatif à cette région pour les valeurs mesurées ou dans les cas

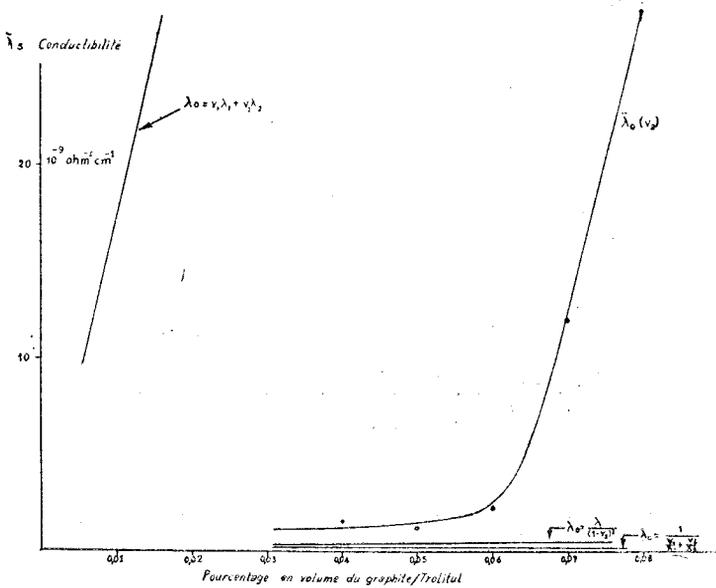


Fig. 7

où les mesures n'étaient pas satisfaisantes par les valeurs obtenues des graphiques pour le mélange considéré ($\tau = 0.80 \cdot 10^{-7}$ sec). Pour les fréquences différentes les résultats obtenus par ce calcul sont représentés sur la Fig. 4 avec une échelle 10 fois plus grande. Au delà de cette première région de dispersion, une autre peut exister, et les fréquences supérieures à 10 Mc/sec (c'est-à-dire, la région où les conductibilités mesurées sont au delà des valeurs $(\lambda - \lambda_0)_1$ sera une nouvelle région de dispersion où les conductibilités résiduelles sont encore une fois proportionnelles aux carrés des fréquences de mesure. Pour prouver ceci, nous avons dedui des valeur mesurées des conductibilités, les valeurs de $(\lambda - \lambda_0)_1$ calculées comme nous avons expliqué plus haut, relatives à la première région de dispersion. Cette

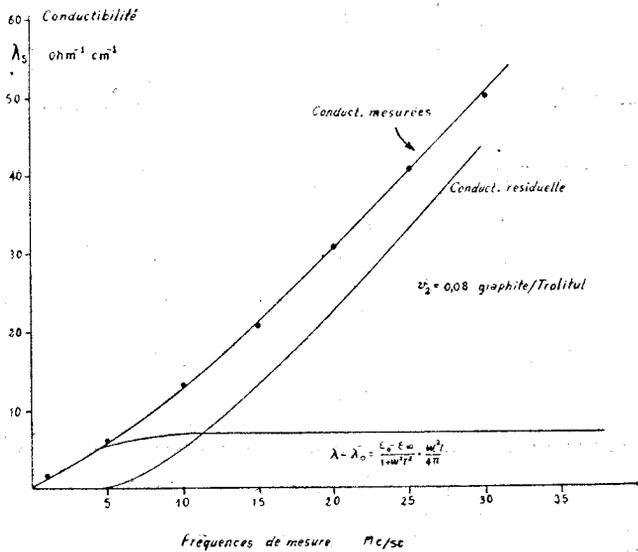
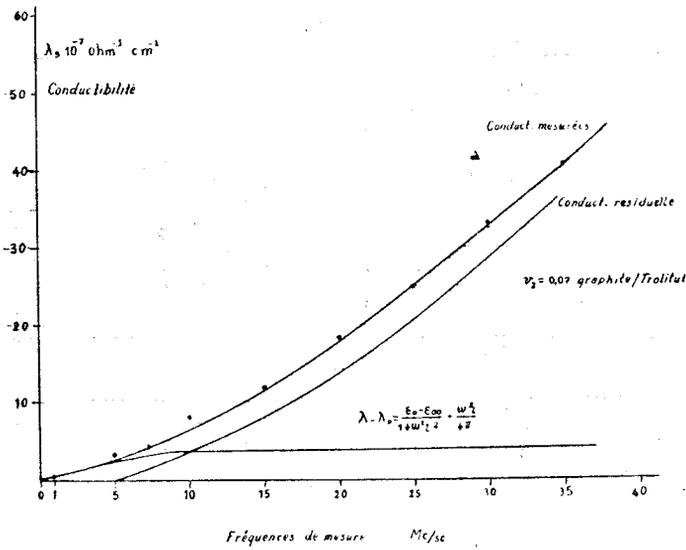
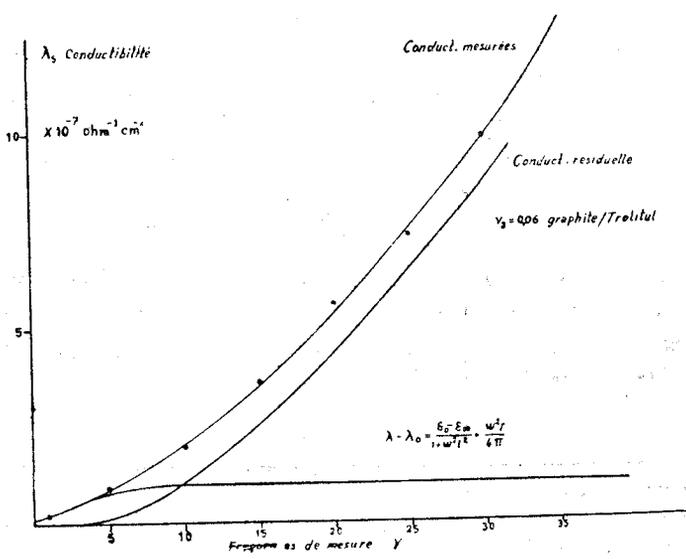


Fig. 8

façon d'agir nous a montré pour $v_2 = 0,06$, $0,07$ et $0,08$ que les conductibilités résiduelles $\lambda d = \lambda(v) - (\lambda - \lambda_0)_I$ sont proportionnelles aux carrées des fréquences de mesure comme on le voit sur les tables 3 et sur les Fig. 8, où

TABLE 3 a, b, c

Fréquences de mesure ν Mc/sec	Conductibilité mesuré λ_s ohm ⁻¹ cm ⁻¹	$(\lambda - \lambda_0)_I$	$\lambda_d = \lambda_s - (\lambda - \lambda_0)_I$	$\frac{\lambda_d}{\nu^2}$
Table 3 a. $v_2 = 0,08$				
1	1,1.10 ⁻⁷	1,3.10 ⁻⁷	—	—
5	6,0 >	5,8 >	0,2.10 ⁻⁷	8
10	13 >	6,5 >	6,5 >	6,5
15	21 >	6,6 >	14,4 >	6,4
20	31 >	6,7 >	24,3 >	6,1
25	42 >	6,7 >	35,3 >	5,7
30	52 >	6,7 >	45,3 >	5,5
Table 3 b. $v_2 = 0,07$				
1	0,62 10 ⁻⁷	0,77.10 ⁻⁷	—	—
5	3,5 >	2,9 >	0,6.10 ⁻⁷	2,4
10	7,5 >	3,7 >	3,8 >	3,8
15	12 >	3,9 >	8,1 >	3,6
20	19 >	3,9 >	15,1 >	3,8
25	26 >	3,9 >	22,1 >	3,5
30	33 >	3,9 >	29,1 >	3,2
35	42 >	3,9 >	39,1 >	3,2
Table 3 c. $v_2 = 0,06$				
5	0,98.10 ⁻⁷	0,96.10 ⁻⁷	0,02.10 ⁻⁷	0,08
10	2,1 >	1,08 >	1,0 >	1,0
15	3,6 >	1,10 >	2,5 >	1,1
20	5,5 >	1,12 >	4,4 >	1,1
25	7,3 >	1,12 >	6,2 >	1,0
30	9,3 >	1,12 >	8,7 >	0,97
35	13 >	1,12 >	11,9 >	0,97
40	16 >	1,12 >	14,1 >	0,93

$$\frac{\lambda\nu - (\lambda - \lambda)_I}{\nu^2}$$

reste constante

Pour les mélanges de pourcentage en volume inférieur à $\nu_2 = 0,06$ nous avons essayé de faire la même vérification. Mais, comme $\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty$ n'a pu être mesuré avec sûreté, nous avons pris les valeurs tirées de la courbe $\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty$ et calculé $(\lambda - \lambda_0)_I$.

Comme on peut constater en examinant les tables 4, les différences $\lambda d = \lambda\nu - (\lambda - \lambda_0)_I$ sont proportionnelles à ν^2 jusqu'à une fréquence de 20 Mc/sec. Pour les fréquences plus hautes, on trouve la même proportionnalité, mais avec une autre constante de proportionnalité. Pour le mélange de $\nu_3 = 0,03$, $\frac{\lambda d}{\nu^2}$ est constante jusqu'à $\nu = 20$ Mc/sec (Table 4 c). Pour les fréquences plus hautes le rapport devient plus petit. Les mélanges $\nu_2 = 0,025$ et 0,020 ont une $\frac{\lambda d}{\nu^2} =$ constante de 1 à 40 Mc/sec (Table 4 e, f).

Tandis que celui de $\nu_2 = 0,010$, ce rapport reste constant seulement jusqu'à $\nu = 15$ Mc/sec, et puis il diminue. La conductibilité propre de l'appareil qui est de l'ordre de 6.10^{-9} ohm $^{-1}$ cm $^{-1}$ rend naturellement ces mesures peu sûres. Mais il est aussi possible qu'à des fréquences élevées, on entre déjà dans une région pour laquelle $\omega^2\tau^2$ n'est plus trop petite devant 1, et les conductibilités ne sont plus proportionnelles aux carrés de ν . Ces résultats montrent qu'au dessus de cette première région de dispersion caractérisée par $\tau = 2$ Mc/sec, il en existe une autre. Nos mesures sont donc faites à des fréquences en général au dessous de cette deuxième région de dispersion. D'autre part, comme les valeurs $\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty$ prises des graphiques s'accordent bien avec les mesures de λ_ν aussi pour $\nu_2 < 0,06$, nous avons bien eu raison de prolonger la courbe $\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty$ vers l'origine.

Nous pouvons donc conclure de ce travail les points suivants :

Pour les mélanges solides de poudre de graphite dans le trolitul il existe une région de dispersion à la fréquence de mesure de 2 Mc/sec et il lui correspond un temps de relaxation de $\tau = 0,80.10^{-7}$ sec. Il est possible d'une part, à partir de la formule qui donne ε_0 en fonction de ν_2 de calculer la valeur limite inférieure de la constante diélectrique ε_2 du graphite ; d'autre part, avec cette valeur de ε_2 et la formule qui donne le

TABLE 4 a, b, c,

Table 4 a. $v_2 = 0,01$				
Fréquences de mesure ν Mc/sn	Conductibilité mesurée λ_s ohm $^{-1}$ cm $^{-1}$	$(\lambda - \lambda_0)_I$	$\lambda_d = \lambda_s - (\lambda - \lambda_0)_I$	$\frac{\lambda_d}{\nu^2}$
1	0,17.10 $^{-8}$	0,15.10 $^{-8}$	0,02.10 $^{-8}$	2,0
5	1,1 >	0,65 >	0,50 >	2,0
10	2,6 >	0,75 >	1,85 >	1,9
15	3,8 >	0,80 >	3,0 >	2,0
20	5,1 >	0,80 >	4,3 >	1,1
25	6,4 >	0,80 >	5,6 >	0,9
30	7,6 >	0,80 >	6,8 >	0,75
35	8,9 >	0,80 >	8,1 >	0,66
40	10 >	0,80 >	9,3 >	0,58
Table 4 b. $v_2 = 0,02$				
1	0,29.10 $^{-8}$	0,31.10 $^{-8}$	—	—
5	1,6 >	1,3 >	0,4.10 $^{-8}$	2,2
10	3,7 >	1,5 >	2,2 >	2,2
15	6,5 >	1,6 >	4,9 >	2,2
20	11 >	1,6 >	9,4 >	2,3
25	14 >	1,6 >	12,3 >	2,0
30	20 >	1,6 >	18,4 >	2,1
35	25 >	1,6 >	23,4 >	1,9
40	30 >	1,6 >	28,4 >	1,8
Table 4 c. $v_2 = 0,025$				
1	0,32.10 $^{-8}$	0,40.10 $^{-8}$	— .10 $^{-8}$	—
5	2,2 >	1,7 >	0,3 >	2,0
10	4,3 >	1,9 >	2,4 >	2,4
15	7,4 >	2,0 >	5,4 >	2,4
20	12 >	2,0 >	10,0 >	2,5
25	16 >	2,0 >	14,0 >	2,2
30	22 >	2,0 >	20,0 >	2,2
35	29 >	2,0 >	27,0 >	2,2

TABLE 4. d, e, f

Table 4 d. $v_2 = 0,03$				
Fréquences de mesure ν Mc/sn	Conductibilité mesurée λ_s ohm ⁻¹ cm ⁻¹	$(\lambda - \lambda_0)_I$	$\lambda_d = \lambda_s - (\lambda - \lambda_0)_I$	$\frac{\lambda_d}{v^2}$
1	0,48.10 ⁻⁸	0,44.10 ⁻⁸	0,03.10 ⁻⁸	3,0
5	2,7 »	1,9 »	0,8 »	3,2
10	5,3 »	2,1 »	3,2 »	3,2
15	8,8 »	2,1 »	6,7 »	3,0
20	14 »	2,2 »	11,9 »	3,0
25	19 »	2,2 »	16,8 »	2,7
30	25 »	2,2 »	22,8 »	2,5
35	31 »	2,2 »	28,8 »	2,4
Table 4 e. $v_2 = 0,04$				
1	1,2.10 ⁻⁸	0,63 10 ⁻⁸	0,57.10 ⁻⁸	5,7
5	7 »	2,7 »	4,3 »	1,7
10	15 »	3,0 »	12,0 »	1,2
15	25 »	3,1 »	22,1 »	0,99
20	36 »	3,1 »	32,9 »	0,83
25	50 »	3,1 »	46,9 »	0,75
Table 4 f. $v_2 = 0,05$				
1	0,86.10 ⁻⁸	0,78.10 ⁻⁸	0,06.10 ⁻⁸	8
5	5,3 »	3,4 »	1,9 »	7,6
10	12 »	3,8 »	8,2 »	8,2
15	22 »	3,9 »	18,1 »	8,0
20	32 »	3,9 »	28,0 »	7,0
25	40 »	3,9 »	36,1 »	5,8
30	50 »	3,9 »	47,1 »	5,3
35	65 »	3,9 »	61,1 »	5,0
40	79 »	3,9 »	75,8 »	4,8

temps de relaxation il est possible d'obtenir une valeur minimum pour sa conductibilité. Il serait raisonnable d'accepter que cette première région de dispersion provient d'une agglomération lâche des grains de graphite, de telle sorte que, la conductibilité de

le temps de relaxation il est possible d'obtenir une valeur minimum pour sa conductibilité. Il serait raisonnable d'accepter que cette première région de dispersion provient d'une agglomération lâches des grains de graphite, de telle sorte que, la conductibilité de ces particules agglomérées (lâchement) reste bien inférieure à celle du graphite ordinaire. Le fait que la conductibilité du graphite calculée à partir des valeurs de τ est bien plus petite que celle du graphite donnée dans la littérature, est de nature d'appuyer cette vue. La deuxième région de dispersion qui apparaît clairement par la variation des conductibilités en fonction de fréquence peut être une région de dispersion causée par les grains non agglomérées du graphite. Dans cette région, la valeur élevée de la conductibilité sera efficace et d'après la formule qui donne le temps de relaxation celui-ci sera plus petit, c'est-à-dire, la région de dispersion se déplace vers les hautes fréquences. Ainsi, il serait intéressant d'explorer aussi cette région.

Je suis très reconnaissant à M. le Prof. Dr. Erich Fischer, de la Faculté des Sciences d'Ankara, qui a suggéré ce travail et qui a aidé généreusement pour l'accomplir.

Littérature

- [1] Fischer. E. und Nasuhoğlu, R., *Comm Faculté Sc. Univ. Ankara*, t. IV, Fasc. 1, p. 132.
- [2] Nasuhoğlu, R., *Ibid.*, t. IV. Fasc. 1, p. 108.
- [3] Hartshorn, *Radio Frequency Measurement by Bridge and Resonance Methods*. p. 144.

(Manuscrit reçu le 8.2.1956).