INFLUENCE DE LA PRÉSENCE D'UN MÉNISQUE DANS LA DÉTERMINATION DES PROPRIÉTÉS DIÉLECTRIQUES PAR LA MÉTHODE DE VON HIPPEL EN LIGNE COAXIALE

Par J.-M. NEU, G. ROUSSY et J.-L. RIVAIL,

Laboratoire de Chimie Théorique, Faculté des Sciences, Nancy.

(Reçu le 1^{er} juillet 1968.)

Résumé. — On tient compte de la présence d'un ménisque à la face d'entrée d'un échantillon coaxial en le traitant comme perturbation d'une face plane. On montre ainsi que dans le cas des pertes élevées ($\tan \delta > 0,4$) la méthode de von Hippel appliquée à un plan d'entrée moyen est très aléatoire. Pour des pertes moyennes et faibles, les longueurs qui réalisent les meilleures conditions de mesure sont déterminées. Elles ne correspondent toutefois pas à celles qui sont déduites de l'étude de l'influence de l'épaisseur sur la précision de la méthode.

Dans les conditions usuelles : $\varepsilon'/\varepsilon_0 < 10$, $\tan \delta < 0,1$, l'effet du ménisque peut être négligé jusqu'aux fréquences de l'ordre de 2 000 MHz et introduit une incertitude inférieure à 2 % sur ε'' à 4 000 MHz.

Abstract. — The meniscus shaped surface of a coaxial sample is treated as a perturbation of a plane surface. It is shown that when the losses are high ($\tan \delta > 0.4$), the method of von Hippel, used with the assumption of an average plane of incidence, is very uncertain. In the case of medium or low losses, the sample lengths which lead to the best accuracy, are determined. They are not the same as those which are deduced from the influence of the sample length on the accuracy of the method.

In the usual conditions ($\varepsilon'/\varepsilon_0 < 10$; $\tan \delta < 0.1$), the influence of the meniscus can be neglected for frequencies lower than about 2 000 MHz, and at 4 000 MHz the uncertainty on ε'' is less than 2 %.

La mesure de la permittivité diélectrique complexe dans un large domaine de température et de fréquence constitue une méthode d'étude importante de la structure moléculaire, en particulier dans le cas des liquides.

Une des techniques les plus utilisées en ondes décimétriques et centimétriques est celle de Roberts et von Hippel [1]. Elle revient à déterminer le coefficient

de réflexion dans le plan S_1 considéré comme face d'entrée d'un échantillon de longueur d (fig. 1 a).

On en connaît les difficultés expérimentales (mesure du taux d'ondes stationnaires) et celles que soulève la résolution de l'équation transcendante :

$$\frac{\text{th}(Te^{j\tau})}{Te^{j\tau}} = Ce^{-j\xi}. \quad (1)$$

Plusieurs variantes de cette méthode : échantillons à pertes faibles, mesures en circuit ouvert et en court circuit, mesures à d et $2d$, méthodes à longueur variable, permettent d'éviter certaines des difficultés originales. Les méthodes utilisant une cavité résonnante conduisent par ailleurs à d'excellents résultats tant que les pertes de l'échantillon restent faibles.

Dans le domaine des pertes moyennes, le physico-chimiste cherche souvent à tirer parti de la simplicité du dispositif expérimental de von Hippel, par exemple pour l'étude de l'absorption des gaz sur des solides pulvérulents ou celle de liquides et de solides à différentes températures.

La précision de cette méthode a fait l'objet de nombreuses études qui s'accordent à conclure que la

FIG. 1.

longueur de l'échantillon doit être choisie en fonction de la permittivité ϵ^* de la substance et de la fréquence à laquelle s'effectue la mesure. Nous retiendrons en particulier les conclusions de Montgomery [2] et de Mandel et Marco [3], où ces auteurs montrent que la précision est optimale si on réalise la condition :

$$d \simeq \frac{(2m+1)\lambda}{\sqrt{\epsilon'/\epsilon_0}} \frac{1}{4} \quad \text{avec } m = 0 \text{ ou } 1. \quad (2)$$

Mais dans les conditions habituelles ($\epsilon'/\epsilon_0 \leq 5$; $\text{tg } \delta \leq 0,1$), Mandel et Marco indiquent que le choix de la longueur n'est pas critique et que l'incertitude de mesure reste inférieure à 2 % pour une longueur arbitraire de l'échantillon.

A notre connaissance, peu d'études font état de l'influence de la non-planéité de la face d'entrée de l'échantillon. Cette influence est souvent négligée dans le cas d'un ménisque dans une ligne coaxiale [4, 5]. Fatuzzo et Mason [6] tiennent compte du bombement d'une fenêtre de mica dans un guide en le traduisant par un déplacement du plan d'entrée.

On peut penser [2] que cette non-planéité a d'autant moins d'influence que la face d'entrée est située dans une région de champ plus faible, ce qui revient à choisir d satisfaisant à la condition :

$$d \simeq \frac{m}{\sqrt{\epsilon'/\epsilon_0}} \frac{\lambda}{2}. \quad (3)$$

Le choix de d conduit à une difficulté, les deux relations (2) et (3) étant contradictoires.

Dans le cas de nos mesures dans une cellule coaxiale de 50 Ω réalisée à partir des conducteurs GR 09009508 et GR 09009509, la surface libre d'un liquide de tension superficielle ordinaire prend approximativement l'allure d'un tore demi-circulaire. Cette forme de la surface d'entrée du liquide nous a semblé exiger une étude de son influence sur la précision des mesures. Dans le présent travail, nous tentons d'évaluer quantitativement l'erreur commise en assimilant cette surface à un plan limitant un échantillon de même volume et définissons les limites de validité de ce modèle.

Notations. — Nous convenons d'appeler :

- a : le rayon du conducteur interne de la ligne,
- b : le rayon interne du conducteur extérieur de la ligne,
- d : la longueur de l'échantillon,
- m : entier positif,
- V_p : le volume dans lequel sont modifiées les permittivités lorsqu'on passe du circuit théorique au circuit réel,
- S : la section droite de référence où s'effectue la mesure,
- ϵ_0 : la permittivité du vide (et de l'air),
- $\epsilon^* = \epsilon' - j\epsilon'' = \epsilon'(1 - j \text{tg } \delta)$: la permittivité de l'échantillon,
- ω : la pulsation du champ électromagnétique,

λ : la longueur d'onde dans le vide (et dans l'air),
 Γ : le coefficient de réflexion dans le plan de référence S ,

$\gamma = \alpha + j\beta = j\omega \sqrt{\epsilon^*/\epsilon_0}$: le coefficient de propagation dans le milieu,

$j\beta_0$: le coefficient de propagation dans le vide (et dans l'air).

Les indices p et a correspondent respectivement au circuit réel et au circuit théorique.

Le champ électromagnétique est décrit par les vecteurs $\mathbf{E}$ (champ électrique) et $\mathbf{H}$ (champ magnétique).

Principe du calcul. — Nous considérons le ménisque comme une modification affectant les caractéristiques géométriques d'un volume fini de diélectrique appartenant à un circuit (fig. 1).

Pour la modification qui nous intéresse, on a (annexe), en suivant le calcul de Steele [7] :

$$\Gamma_p - \Gamma_a = \frac{\iiint_{V_p} (\epsilon_a^* - \epsilon_p^*) \mathbf{E}_p \cdot \mathbf{E}_a dV}{2 \iint_S (\mathbf{E}_{\text{incident}} \wedge \mathbf{H}_{\text{incident}})_z dS}. \quad (4)$$

Le calcul de cette expression nécessite la connaissance des configurations des champs dans le circuit théorique et le circuit réel. Comme il est très difficile sinon impossible de connaître la répartition des champs dans le circuit réel, nous poursuivons notre calcul en faisant l'approximation suivante, classique pour un calcul de perturbation :

$$\mathbf{E}_p = \mathbf{E}_a \text{ dans le volume } V_p.$$

La hauteur de V_p (2 mm) toujours petite devant la longueur d'onde (75 mm à 4 000 MHz) justifie cette approximation.

Si l'on considère le circuit théorique, on a :

$$\Gamma_a = \frac{\text{th } \gamma d - \sqrt{\epsilon^*/\epsilon_0} e^{-2j\beta_0(z-d)}}{\text{th } \gamma d + \sqrt{\epsilon^*/\epsilon_0}} \quad \text{pour } z > d. \quad (5)$$

Du fait de la non-planéité de la face d'entrée, les mesures vont conduire à une valeur du coefficient de réflexion Γ_p , différente de Γ_a , l'application de la formule (5) donnera à la permittivité complexe une valeur apparente $\epsilon_1^* = \epsilon^* + \Delta\epsilon^*$.

L'écart $\Delta\epsilon^*$ est relié à $\Delta\Gamma = \Gamma_p - \Gamma_a$ par :

$$\Delta\Gamma = -j \frac{\beta_0}{\gamma} \frac{\text{ch } \gamma d \text{ sh } \gamma d - \gamma d}{\left(\text{sh } \gamma d - j \frac{\gamma}{\beta_0} \text{ch } \gamma d \right)^2} \frac{\Delta\epsilon^*}{\epsilon_0} \quad (6)$$

que l'on obtient en différenciant l'expression (5).

Le présent calcul part donc de la connaissance des caractéristiques électriques exactes de l'échantillon et permet d'atteindre les valeurs que donnerait la mesure de celles-ci sur un échantillon présentant un ménisque (fig. 1 b) en appliquant la méthode de von Hippel à un échantillon théorique (fig. 1 a) ayant le même volume.

Résultats. — Les paramètres intervenant dans le calcul des erreurs relatives $\Delta\epsilon'/\epsilon'$ et $\Delta\epsilon''/\epsilon''$ dues au ménisque sont ϵ' , ϵ'' , d et λ qui définissent les conditions expérimentales. Nous avons choisi de représenter en premier lieu nos résultats par les courbes $\Delta\epsilon'/\epsilon'$;

FIG. 2. — Pertes faibles :

— $\epsilon' = 15,96$; $\text{tg } \delta = 0,1$; Fréquence = 4 000 MHz.
 ---- $\epsilon' = 3,99$; $\text{tg } \delta = 0,1$; Fréquence = 4 000 MHz.
 -.-.- $\epsilon' = 15,96$; $\text{tg } \delta = 0,1$; Fréquence = 500 MHz.

FIG. 3. — Pertes élevées :

— $\epsilon' = 13,44$; $\text{tg } \delta = 0,95$; Fréquence = 4 000 MHz.
 ---- $\epsilon' = 3,36$; $\text{tg } \delta = 0,95$; Fréquence = 4 000 MHz.
 -.-.- $\epsilon' = 13,44$; $\text{tg } \delta = 0,95$; Fréquence = 500 MHz.

$\Delta\epsilon''/\epsilon''$ fonction de la longueur électrique de l'échantillon ⁽¹⁾ L pour $0 < L \leq 2$:

$$L = \frac{d}{\lambda} \sqrt{\frac{\epsilon'/\epsilon_0}{1 - \text{tg}^2(\delta/2)}}. \quad (7)$$

Les figures 2 et 3 correspondent respectivement aux pertes faibles et aux pertes élevées.

Discussion. — L'allure de nos courbes est très semblable à celle des résultats de Mandel et Marco [3]. La définition de la longueur électrique utilisée par ces auteurs $\chi = \sqrt{(\epsilon'/\epsilon_0)} (d/\lambda)$ est différente de celle que nous avons choisie, mais l'écart n'apparaît que pour les valeurs élevées du facteur de pertes.

1. PERTES FAIBLES : $\text{tg } \delta < 0,1$ (fig. 2). — On remarque d'abord que $|\Delta\epsilon'/\epsilon'|$ est toujours inférieur à $|\Delta\epsilon''/\epsilon''|$. Ce sera donc surtout cette dernière grandeur que nous considérerons pour préciser les longueurs optimales.

Les deux courbes $\Delta\epsilon'/\epsilon'$ et $\Delta\epsilon''/\epsilon''$ vs L sont pseudo-périodiques. Les conditions expérimentales pour lesquelles la longueur électrique L est voisine d'une des valeurs suivantes :

0,22; 0,42; 0,69; 0,90; 1,18; 1,40; 1,68; 1,90...

sont les plus favorables à la mesure des pertes. Dans chacun des cas, la détermination de ϵ' reste bonne en raison de l'amplitude plus réduite des oscillations des courbes $\Delta\epsilon'/\epsilon'$ vs L .

La longueur électrique de l'échantillon n'est pas le seul facteur qui conditionne l'erreur : l'amplitude des courbes de la figure 2 croît séparément avec $\sqrt{\epsilon'}$ et $1/\lambda$ sans être fonction de $\sqrt{\epsilon'}/\lambda$ uniquement. Ces deux paramètres ne jouent pas en effet un rôle équivalent : une modification de ϵ' correspond à une modification du volume du ménisque, tandis qu'une variation de la longueur d'onde doit être comparée à une variation de la hauteur de la zone perturbée.

2. PERTES ÉLEVÉES : $\text{tg } \delta \simeq 1$ (fig. 3). — Les courbes présentent pour $1/2 < L < 3/4$ une discontinuité. Les variations de $\Delta\epsilon'/\epsilon'$ et $\Delta\epsilon''/\epsilon''$ s'amortissent très vite ensuite et tendent vers des valeurs limites non nulles.

L'origine de cette discontinuité se trouve dans le numérateur de l'expression (6). Les solutions de l'équation :

$$\text{sh } 2\gamma d = 2\gamma d \quad (8)$$

définissent des « cols » sur l'abaque général de la fonction (1). Au voisinage de ces points, les conditions expérimentales conduisent intrinsèquement à une mauvaise précision de la méthode de von Hippel, voire à une impossibilité de lever l'indétermination sur les solutions de l'équation (1).

La figure 3 relative aux pertes élevées ($\text{tg } \delta = 0,95$)

⁽¹⁾ Si $n^* = n(1 - jk) = \sqrt{\epsilon^*/\epsilon_0}$ est l'indice complexe de l'échantillon, on a $L = n d/\lambda$.

montre l'accident correspondant au premier col dont les coordonnées exactes sont :

$$T = 3,99... \text{ et } \tau = 69^\circ 41'...$$

avec les notations de la référence [1].

Les longueurs L telles que $0,25 < L < 0,40$ et $0,75 < L < 0,90$ sont à retenir pour effectuer une mesure où l'erreur introduite par le ménisque n'excède pas quelques pour cent.

3. PERTES MOYENNES : $\text{tg } \delta$ de 0,2 à 0,4. — La région du premier col est évitée, mais le second ($T = 7,15...; \tau = 76^\circ 26'...$) peut être atteint pour $L > 1$. Lorsque $L < 1$, l'allure des courbes donnant les erreurs relatives en fonction de la longueur électrique est comparable à celle de la figure 2, l'amplitude des oscillations étant cependant plus importante. Les conditions optimales sont donc analogues, il convient de choisir $L \simeq 0,42$ ou 0,67.

Enfin, tant que le calcul des erreurs dues au ménisque conduit à des valeurs assez faibles ($< 5\%$), on peut estimer que les approximations faites lors du calcul, sont justifiées. Les valeurs élevées obtenues dans certains cas n'ont pas de signification absolue, les approximations n'étant certainement plus valables. Cependant, elles traduisent certainement une grande imprécision de la méthode de von Hippel elle-même.

Le parallélisme des conclusions qui précèdent et de celles de Mandel et Marco [3] rend difficile une vérification expérimentale où l'on puisse distinguer nettement l'erreur due à la présence du ménisque des autres incertitudes expérimentales. Pour cette même raison, nous ne pensons pas devoir proposer de tenir compte de l'effet du ménisque sous la forme d'un terme correctif déduit du calcul.

Conclusion. — La mesure de la constante diélectrique complexe d'une substance par la méthode de Roberts-von Hippel suppose que l'échantillon présente, perpendiculairement à l'axe de propagation des ondes, une surface plane. La présence d'un ménisque dans le cas d'un liquide introduit une erreur qui a été évaluée ici par un calcul de perturbation pour un échantillon dans une ligne coaxiale.

L'hypothèse qui consiste à assimiler l'échantillon liquide à un échantillon de même volume limité par deux surfaces planes est valable tant que les pertes sont faibles. Une erreur systématique importante apparaît au-delà d'une certaine longueur lorsque les pertes sont élevées.

L'erreur commise est d'autant plus forte que, séparément, la fréquence, la partie réelle et la partie imaginaire de la permittivité sont plus élevées. Dans les conditions courantes ($\epsilon'/\epsilon_0 < 10$, $\text{tg } \delta < 0,1$), l'erreur est négligeable jusqu'à 2 000 MHz, elle atteint 2 % sur ϵ' à 4 000 MHz.

Lorsque les pertes sont élevées ($\text{tg } \delta \leq 1$), on peut effectuer des mesures avec des erreurs inférieures à -2% sur ϵ' et $+5\%$ sur ϵ'' . Toutefois, les erreurs

demeurent prohibitives ($> 10\%$) si la longueur électrique L de l'échantillon est voisine de 0,6.

Avec des échantillons à pertes moyennes ($\text{tg } \delta \simeq 0,4$), on devra se limiter à une fréquence d'autant plus basse que la constante diélectrique est plus élevée. On évitera en outre des longueurs électriques L voisines de 0,55; 1,1; 1,55 pour lesquelles l'erreur sur ϵ'' passe par un extremum.

Ces résultats ne sauraient être transposés simplement au cas des guides d'ondes : d'une part la forme et les dimensions relatives du ménisque sont différentes, d'autre part l'éventualité de la propagation de modes supérieurs intervient comparativement plus tôt en guide qu'en ligne coaxiale.

Les résultats obtenus ne peuvent pas s'appliquer directement aux méthodes de mesure dans lesquelles on fait varier la longueur de l'échantillon. Ils mettent cependant clairement en évidence que la forme de la surface libre du liquide n'a pas une incidence constante sur les caractéristiques électriques du circuit lorsque la longueur de l'échantillon varie.

Remerciements. — Les auteurs expriment à M. le Professeur Barriol toute leur gratitude pour avoir suggéré ce travail et pour l'intérêt qu'il lui a porté.

ANNEXE

Les deux circuits représentés figure 1 satisfont aux hypothèses du calcul de Steele [7].

Nous décomposons le volume perturbé V_p en trois

FIG. 4.

domaines (fig. 4). La modification du circuit se traduit de la manière suivante :

dans I et III :

$$\begin{aligned} \epsilon_a^* &= \epsilon_0 \\ \epsilon_p^* &= \epsilon^* \end{aligned}$$

dans II :

$$\begin{aligned} \epsilon_a^* &= \epsilon^* \\ \epsilon_p^* &= \epsilon_0. \end{aligned}$$

Nous supposons qu'il n'existe pas de courant de conduction dans le diélectrique et que la perméabilité magnétique complexe μ^* se réduit à celle du vide μ_0 .

Dans un système de coordonnées cylindropolaire (r, θ, z) , l'axe z étant dirigé vers la source, la répartition des champs électromagnétiques dans le diélectrique (milieu 1) et dans l'air (milieu 2) pour le circuit correspondant à la figure 1 a est la suivante :

$$\mathbf{E}_1 \begin{cases} E_{r,1} = \frac{2A}{r} \operatorname{sh} \gamma z \\ E_{\theta,1} = 0 \\ E_{z,1} = 0 \end{cases}$$

$$\mathbf{H}_1 \begin{cases} H_{r,1} = 0 \\ H_{\theta,1} = \frac{2A}{r} \sqrt{\frac{\varepsilon^*}{\mu_0}} \operatorname{ch} \gamma z \\ H_{z,1} = 0 \end{cases}$$

$$\text{et : } \mathbf{E}_2 \begin{cases} E_{r,2} = \frac{A}{r} (B e^{j\beta_0(z-d)} + C e^{-j\beta_0(z-d)}) \\ E_{\theta,2} = 0 \\ E_{z,2} = 0 \end{cases}$$

$$\mathbf{H}_2 \begin{cases} H_{r,2} = 0 \\ H_{\theta,2} = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{A}{r} (B e^{j\beta_0(z-d)} - C e^{-j\beta_0(z-d)}) \\ H_{z,2} = 0 \end{cases}$$

A est un paramètre qui définit l'amplitude,

$$B = \sqrt{\varepsilon^*/\varepsilon_0} \operatorname{ch} \gamma d + \operatorname{sh} \gamma d,$$

$$C = \operatorname{sh} \gamma d - \sqrt{\varepsilon^*/\varepsilon_0} \operatorname{ch} \gamma d.$$

L'équation (4) obtenue directement à partir de la formule (16) de Steele [7] se transforme en :

$$\Delta \Gamma = \frac{j\omega \varepsilon_0 \int_0^{2\pi} d\theta \int_a^b r dr \int_d^z E_{r,a}^2 dz}{2 \int_0^{2\pi} d\theta \int_a^b \left(\frac{A^2}{r^2} B^2 e^{2j\beta_0(z-d)} \right) r dr}.$$

$E_{r,a}$; $E_{r,2}$; $E_{\theta,2}$ ne faisant pas intervenir θ , il vient, en faisant attention au sens d'intégration sur le domaine II :

$$\Delta \Gamma = \frac{j\omega(\varepsilon_0 - \varepsilon^*) \left(\int_a^{a+c} r dr \int_d^z E_{r,1}^2 dz + \int_{b-c}^b r dr \int_d^z E_{r,1}^2 dz - \int_{a+c}^{b-c} r dr \int_z^d E_{r,2}^2 dz \right)}{2A^2 e^{2j\beta_0(z-d)} \sqrt{\varepsilon_0/\mu_0} (\sqrt{\varepsilon^*/\varepsilon_0} \operatorname{ch} \gamma d + \operatorname{sh} \gamma d)^2 \operatorname{Log} (b/a)}.$$

La borne d'intégration :

$$z = d + \frac{\pi}{8} (b-a) - \sqrt{(b-r)(r-a)}$$

traduit la forme semi-circulaire choisie pour la section droite du ménisque et tient compte de

la définition adoptée pour le plan moyen d'entrée.

Les intégrales ne peuvent se calculer de façon entièrement algébrique et certaines ont été calculées numériquement. Finalement, l'ensemble du calcul a été programmé en Fortran et exécuté sur l'ordinateur IBM 1130 de l'Ensic.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] ROBERTS (S.) et VON HIPPEL (A.), *J. Applied Physics*, 1946, **17**, 610.
- [2] MONTGOMERY (C. G.), *Technique of microwave measurements*, traduction des Éditions Chiron (Paris, p. 650 et suiv.).
- [3] MANDEL (M.) et MARCO (C.), *Physica*, 1964, **30**, 597.
- [4] NORTH (A. M.) et PHILLIPS (P. J.), *Trans. Farad. Soc.*, 1967, **63** (6), 1537.
- [5] ROHDE et SCHWARZ, *Die Kurtz Information* 3/4, 1962, 32.
- [6] FATUZZO (E.) et MASON (P. R.), *J. Applied Physics*, 1965, **36**, 427.
- [7] STEELE (C. W.), *I.E.E.E. Transactions*, 1966, **MTT 14** (2), 70.