液体のマイクロ波複素比誘電率の迅速な 測定法に関する一提案†

杉 野 徹*・伊 藤 保 之*・梅 野 正 義**

A Proposal for the Methods of Rapidly Measuring Relative Complex Permittivities of Liquids at Microwave Frequency Region

Touru SUGINO*, Yasuyuki IRO* and Masayoshi UMEMO**

The rapid measuring method which determines V.H. F relative complex permittivities of liquids and solutions was proposed by M. G. Corfield et al. Then, it was revised by R. G. Bennett and J. H. Calderwood to be applicable to high loss liquids. This method is generally applicable to the measurement of coaxial-line frequency region (below 3000 MHz). The method, however, has two difficulties when it is applied at the higher microwave frequency region where waveguide must be used as instrumentation system.

One is that the diaphragm separating the liquid-filled section from the air-filled section causes errors in calculation results, and the other is the complexity of the formula which relates the relative complex permittivities to the propagation constant of the liquid-filled line in TE_{10} propagation mode.

In this paper, a new measuring technique is proposed to overcome these difficulties.

The measurement has been performed at 9.50 GHz on several liquids using the WRJ-10 waveguide measuring system, and reasonable results have been obtained. The graphs convenient to determine relative complex permittivities of liquids from measured values are introduced.

Key Words: proposal of new measuring method, microwave relative complex permittivity of liquid, graphs to determine measuring results

† 電気学会電気測定研究会で発表(昭 46・10)

* 鈴鹿工業高等専門学校 鈴鹿市白子町

** 名古屋工業大学 名古屋市御器所町

* Suzuka College of Technology, Suzuka

** Nagoya Institute of Technology, Nagoya

(Received May 20, 1986)

(Revised November 4, 1986)

1. ま え が き

マイクロ波周波数領域での液体の複素比誘電率の測定は、有極性分子の分極による異常分散などで物性研究の立場からも重視されているが、マイクロ波を誘電加熱に応用する場合やマイクロ波による海洋のリモートセンシングなどを行うに必要な資料としてこれを測定する方法においては、特に測定手順の迅速さと、低損失から高損失に渡る広い測定範囲が要求される。

定在波法の一変形で、M. G. Corfield たち¹⁾によって提唱され、R. G. Bennett²⁾ たちによってこれを比較的高損失の試料の測定にも適用できるよう加筆された方法は、同軸線路周波数領域 (3,000 MHz 以下) においては一応上記の主旨に適合するものと考えられる。しかしながら、同様の方法を測定系を導波管によって構成せざるをえないより高い周波数領域での測定に適用すると、二つの障害に遭遇する。

その一つは、液体試料区間と定在波測定用空気区間とを隔離する間隔膜の存在が試料の複素比誘電率の算定結果に誤差を生ぜしめることであり、もう一つは TE_{10} 波においては試料の複素比誘電率と試料で満たされた線路の伝搬定数とを関係づける公式が複雑になるため、測定量と試料の誘電定数とを直接結びつける測定図表が TEM 波において有したような測定周波数によらない普遍性を保持できなくなることである。

本論文では、上に指摘した二つの障害を克服した新しい測定技術を提案すると共に、10 GHz 導波管測定系による各種液体試料の実測例を通じて測定上の問題点などについても言及した。

2. 測定原理

2.1 測定手順と関係式の誘導

本測定法を回路モデル的に表わすと Fig. 1 のごとく特性インピーダンスおよび伝搬定数がそれぞれ異なる三つの伝送線路が縦続接続され、最後の区間が終端短絡された三層構造と考えることが出来る。図中 $\gamma = \alpha + j\beta$ は伝搬定数 (α : 減衰定数, β : 位相定数), Z は特性インピーダンス, d は各区間の長さで定在波測定区間(空気), 間隔膜区間および液体試料区間に対して, それぞれ 0, 1, 2, の suffix を付けて使用する。測定はつぎの二つの手順により行われる。

- (i) 最初に可動短絡板を間隔膜背面にもちきたしたときの定在波パターンを調べ, その電界最小位置に定在波測定用プローブを固定し, この場合の定在波比 $\rho_0 = E_{\max}/E_{\min}$ ($E_{\max}, E_{\min}$ は電界の極大および極小値) を測定する。
- (ii) 可動短絡板を右方に移動すると, 液体試料区間が挿入されるので, (i) のプローブ位置が再度電界最小となる距離 d_{2m} およびその場合の定在波比 ρ_m ($m=1, 2, \dots$) を順次測定する。↗

Fig. 1 Sample filled line

↘各区間の線路寸法が変化しないと仮定し, 上記の測定が可能な場合には次式が成立する。

$$\tanh^{-1} S_0 = \gamma_0 d_0 + \tanh^{-1} \left(\frac{\gamma_0}{\gamma_1} \tanh \gamma_1 d_1 \right) \quad (1)$$

$$\tanh^{-1} S_m = \gamma_0 d_0 + \tanh^{-1} \left[\frac{\gamma_0}{\gamma_1} \tanh \left\{ \gamma_1 d_1 + \tanh^{-1} \left(\frac{\gamma_1}{\gamma_2} \tanh \gamma_2 d_{2m} \right) \right\} \right] \quad (2)$$

(1) および (2) 式より,

$$\frac{\tanh \gamma_2 d_{2m}}{\gamma_2 d_{2m}} = \frac{1}{(\gamma_0 d_{2m}/S) f(S)} \quad (3)$$

ここで

$$f(S) = \frac{(\gamma_1/\gamma_0)^2 \operatorname{sech}^2 \gamma_1 d_1 - S(\gamma_1/\gamma_0) \{(\gamma_1/\gamma_0)^2 - 1\} \tanh \gamma_1 d_1}{(\gamma_1/\gamma_0)^2 - \tanh^2 \gamma_1 d_1} \quad (4)$$

上記の各式において $S_m = 1/\rho_m$ (定在波逆比), m は試料内定在波数, $S = (\rho_0 - \rho_m)/(\rho_0 \rho_m - 1)$ である。

実用上 $\gamma_0 = j\beta = j2\pi/\lambda_0$ が成立するので, 間隔膜の存在を無視できる場合, すなわち

$$\gamma_1 d_1 \approx 0 \quad (5)$$

と考えられる場合 $f(S) = 1$ で (3) 式は, 次式と等価となる。

$$\frac{\tanh \gamma_2 d_{2m}}{\gamma_2 d_{2m}} = \frac{\lambda_0 S}{j2\pi d_{2m}} \quad (3)'$$

ただし λ_0 は定在波測定区間における伝送線路内波長である。

2.2 M. G. Corfield たちおよび R. G. Bennett たちの方法とその適用上の問題点

共に同軸線路測定系 (TEM 波) で比較的周波数の低い領域 (900 MHz 程度) を対象としており, もちろん (5) 式の成立を仮定している。M. G. Corfield たちの方法ではさらに, 低損失液体試料を対象として, $\alpha_2 \ll \beta_2$ なる条件で (5) 式を近似的に解いた測定式を与えている。R. G. Bennett たちの方法は, M. G. Corfield たちの方法の中, 高損失液体試料の測定に↗

↘も適用できるよう修正したもので (3)' 式を

$$\alpha_2 d_2 \sinh(2\alpha_2 d_2) + \beta_2 d_2 \sin(2\beta_2 d_2) = 0 \quad (6)$$

$$\frac{1}{S} = \frac{\lambda_0}{2\pi d_2} \{ \beta_2 d_2 \tanh(\alpha_2 d_2) - \alpha_2 d_2 \cot(\beta_2 d_2) \} \quad (7)$$

のごとく書き直し, これらを数値的に解いて, 被測定液体試料の複素比誘電率 $\epsilon_{2r} = \epsilon'_{2r} - j\epsilon''_{2r}$, および誘電正接 $\tan \delta_2 = \epsilon''_{2r}/\epsilon'_{2r}$ と S との関係を Sd_2/λ_0 の項で直接結合した形の図表を, 液体試料内部の定在波数が 1 の場合について与えるもので, この図表を利用して, 測定量 S および d_2/λ_0 から ϵ'_{2r} および $\tan \delta_2$ は簡単に求めることができる。

しかるに上記の二つの方法で対象としている周波数より, より高い周波数領域 (筆者たちは 10 GHz 帯での測定を対象としている) においては

- (i) $\gamma_1 d_1 \approx 0$, すなわち (5) 式の仮定は成立しない。

- (ii) 測定精度の点から伝送線路として導波管 (TE_{10} 波) を用いざるをえない。

(i) は間隔膜の存在が測定計算結果にかなりの影響を与えるので, その補正方法が必要なることを意味し,

(ii)は導波管測定系においては、線路の伝搬定数と線路内媒質の誘電定数との関係式が、同軸系のごとくには簡単でないで、R. G. Bennett たちの方法のごとく被測定液体試料の ϵ'_{2r} , $\tan \delta_2$ と測定量とを図表により直接結びつけてしまうと測定周波数を限定することとなり、図表の周波数によらない普遍性を失うこととなる。

2.3 筆者たちの提案する方法^{4),5)}

前節で指適した2点に対する検討および考案が筆者たちの提案の中心である。間隔膜の存在が測定計算結果に与える影響は、(3)式から検討される。この間隔膜の影響を表す項(4)式は、使用導波管、測定周波数、間隔膜の材質(誘電定数)と厚さが与えられれば S のみの関数となることに着目して、さらにこれを

$$f(S) = F \angle \theta \quad (8)$$

と極座標表示すると、 $\gamma_0 \doteq j2\pi/\lambda_0$ 。ゆえ(3)式は次式に等価となる。

$$\frac{\tanh \gamma_2 d_{2m}}{\gamma_2 d_{2m}} = \frac{1}{(2\pi F d_{2m} / \lambda_0 S)} \angle \left(\frac{\pi}{2} - \theta \right) \quad (9)$$

(9)式左辺を数値計算した結果より、 θ をパラメータとして、 $F d_2 / \lambda_0 S$ と $|\gamma_2 d_2|$ および $\arg \gamma_2 d_2$ の関係を示す図表を、試料内定在波数 m ($m=1, 2, 3, \dots$) に対して求めておけば、被測定液体試料の ϵ'_{2r} と $\tan \delta_2$ は、

$$\epsilon'_{2r}(1 - j \tan \delta_2) = \frac{u - (\lambda_0 \gamma_2 d_2 / 2\pi d_2)^2}{w} \quad (10)$$

より求められる。ただし $u = (\lambda_0 / \lambda_c)^2$, $w = 1 + u$, で λ_0 は使用導波管の遮断波長である。ここで $\gamma_1 = (j2\pi/\lambda) \{ \epsilon_{1r} - (\lambda/2a)^2 \}^{1/2}$, λ および a はそれぞれ自由空間波長および導波管内径の長辺寸法である。なお同軸線

路測定系においては(10)式において $u=0$, $w=1$ となるので(4)式による補正のみを考慮すればよいので、(10)式による ϵ'_{2r} , $\tan \delta_2$ の算定がより簡単となることを付言しておく。

3. 測定方法と液体試料容器の構造

WRJ-10 による測定系の構成図を Fig. 2 に示した。この測定法による定在波比の測定では、負荷変動がマイクロ波信号源に与える影響を極力避ける必要から信号源に内部レバリングをかけ、ソースマッチを考えアイソレータを使用した。周波数はマイクロ波カウンタで測定のつどモニタし4桁までの精度を保つよう配慮した。なおスイープオシレータの R.F. 出力はスポット周波数に設定し同器内蔵の 1 KHz 方形波変調器で変調をかけ、V. S. W. R. メータには高利得、低雑音の狭帯域指示増幅器を用いた。

3.1 測定方法

測定はつぎの二つの手順によって行われる。

- (i) 最初に可動短絡板を間隔膜背面にもちきたしたとき(この場合のマイクロメータヘッドの目盛を0位置に調整する)、定在波測定器で定在波パターンを調べ、その電界最小位置を求めこのプローブ位置を記録する。ついでプローブを左右に移動し電界最小位置での V. S. W. R. メータの指示より 3 dB 高い指示を与える移動幅 Δ_0 を求め、最初に記録した電界最小位置に再度プローブを固定する。
- (ii) 可動短絡板をマイクロメータヘッドを回転す

Fig. 2 Diagram of measuring system

に上下移動できる。下部のスライド板の左右を図のように削り取ったのは、この部分にバネ径 6 mm の引きバネを通すためである。なお詳細は省略するが②の連結軸と①、③の接続はシマリバメ方式とした。

最後に短絡板の構造であるが、この部分を導波管 E 面中心部で垂直に切った断面を模式的に拡大して示した図が Fig. 3 (c) である。この場合短絡板の短辺と導波管内径の短辺の長さとの関係が問題となるが、試料容器が可動短絡器として滑らかな動きをすると同時にリン青銅板による短絡が十分な接触圧力をもって行われることが重要である。導波管内径短辺寸法が 10.2 mm であるのに対して、リン青銅板の厚さを含めた短絡板の寸法を 9.6 mm とし両者の間に片側で 0.3 mm の余裕をもたせることによって上記二つの要求を満たすことができた。図だけから見ると短絡板前面で完全接触していないように誤解されやすいが、同図はこの部分をかなり誇張して描いたことと板バネとしてコの字形に曲げたリン青銅板と短絡板をはんだ付けした場合の寸法増加分を考えていないからで、これは間隔膜を挿入した銅板フランジを取りはずし本器を可動短絡器としてその特性を実測した結果から短絡板前面で回路が完全短絡されているとして扱ってよいことが実証された。

4. 測定図表

本章では第 2 章で検討した間隔膜補正図表と $\gamma_2 d_{2m}$ を測定量から求めるに必要な測定図表を示す。

4.1 間隔膜補正図表

測定に使用したテフロン間隔膜の 10 GHz、298.2 K における誘電定数は文献 6) によると $\epsilon'_{1r}=2.08$, $\tan \delta_1=3.7 \times 10^{-4}$ である。測定周波数 (9.5 GHz) におい

て、また 308.2 K までこれらの値はほとんど変化しないので、この値をもとに、これを WRJ-10 測定系に使用した場合の補正式を (4) 式より求めると、 $d_1=1$ mm の場合

$$f(S) \doteq 1.043 - j0.2969S \quad (11)$$

となる。これを極座標表示して示したのが Fig. 4 である。なお同図において θ は計算の都合上、度を単位とした。

4.2 測定図表 ($m=1$ および 2 の場合)

$\gamma_2 d_{2m} = T \angle \tau$ と極座標表示し (9) 式左辺を

$$\frac{\tanh T \angle \tau}{T \angle \tau} = C \angle \zeta \quad (12)$$

とおいて、これを ζ が $80^\circ \sim 95^\circ$ の範囲でコンピュータを使用して数値計算した結果から、

$$90^\circ - \theta = \zeta \quad (13)$$

$$(Fd_{2m}/\lambda_{g0}S) = 1/2\pi C \quad (14)$$

となることに留意し、 θ をパラメータとして $Fd_2/\lambda_{g0}S$ と $|\gamma_2 d_2|$ および $\arg \gamma_2 d_2$ の関係を示す図表を求めたのが Fig. 5(a), (b), ($m=1$ の場合) と Fig. 6(a), (b) ($m=2$ の場合) である。 $m=3, 4, \dots$ に対する図表も同様の計算で得られ、低損失試料の測定に有効であるが、ここでは省略した。 $Fd_2/\lambda_{g0}S$ が $\arg \gamma_2 d_2$ の極小値、たとえば $m=2$ の場合 $(Fd_2/\lambda_{g0}S) \doteq 0.85$ で生ずる、を与える値よりも大なる領域が本測定法の成立する範囲で、この限界値は m によって増加するので、高損失の試料で測定可能な m の数はごくわずかなことがわかる。すなわち $\arg \gamma_2 d_2$ が極小値に近い試料の測定においては、3.1 節の測定手順(ii)での d_{2m} の実測が非常に困難 (定在波比の実測も同様) となり、 ϵ'_{2r} および $\tan \delta_2$ の算定値に大きな誤差を生ずることが予想される。同様のことは損失のより小

Fig. 4 Graphs of correction for diaphragm (from eqn. (4)) Waveguide: WRJ-10 Diaphragm material: tefron, Measuring frequency: 9,500MHz Temperature: 299.2K

Fig. 6 Graphs to determine r_{d2} in case of $m=2$
 (a) $|r_{d2}|$ vs. $Fd_2/\lambda_{00}S$ (b) $\arg r_{d2}$ vs. $Fd_2/\lambda_{00}S$

Fig. 5 Graphs to determine r_{d2} in case of $m=1$
 (a) $|r_{d2}|$ vs. $Fd_2/\lambda_{00}S$ (b) $\arg r_{d2}$ vs. $Fd_2/\lambda_{00}S$

Table 1 Measuring results for various liquid samples

Measuring frequency: 9,500 MHz, Wavelength in WRJ-10 Waveguide: $\lambda_g=43.60$ mm
 Cutoff wavelength: $\lambda_{co}=45.80$ mm, $u=0.906$, $w=1.906$

No.	Liquid samples	Temperature K	m	d_{2m} (mm)	S	F	θ (deg)	ϵ_{2r}'	$\tan \delta_2$	Reference ϵ_{2r}' $\tan \delta_2$
1*	Methylalcohol	301.2	1	4.1 ± 0.1	0.140 ± 0.002	1.044	2.3	12.2 ± 0.3	0.54 ± 0.03	8.9 0.81 ⁶⁾ (10 GHz, 298.2K)
2*	Ethylalcohol	301.2	1	7.2 ± 0.1	0.194 ± 0.002	1.045	3.1	4.8 ± 0.1	0.37 ± 0.01	4.54 0.49 ¹⁰⁾ (9,375 MHz, 298.2K)
			2	14.4 ± 0.2	0.313 ± 0.003	1.047	5.1	4.67 ± 0.06	0.38 ± 0.01	
3*	Nitrobenzene	301.2	1	4.23 ± 0.05	0.139 ± 0.002	1.004	2.3	11.7 ± 0.1	0.51 ± 0.2	31.1 0.17 ⁶⁾ (3,000 MHz, 298.2K)
4*	Benzene	303.2	1	12.2 ± 0.1	0.0019 ± 0.0011	1.043	0.0	2.15 ± 0.03	0.002 ± 0.001	2.27 0.0003 ⁷⁾ (9.0 GHz, 293.2K)
			2	24.3 ± 0.1	0.0033 ± 0.0010	1.043	0.0	2.16 ± 0.02	0.0014 ± 0.0005	
			3	36.3 ± 0.1	0.0046 ± 0.0011	1.043	0.1	2.18 ± 0.01	0.0014 ± 0.0003	
5*	Chlorobenzene	301.2	1	7.7 ± 0.1	0.091 ± 0.0008	1.043	1.5	4.6 ± 0.1	0.145 ± 0.02	4.64 0.304 ¹⁰⁾ (9,375 MHz, 298.2K)
			2	15.5 ± 0.2	0.166 ± 0.0013	1.044	2.8	4.6 ± 0.1	0.142 ± 0.04	
6**	Pure water	298.2	1	1.95 ± 0.04	0.030 ± 0.001	1.043	0.6	64 ± 3	0.22 ± 0.02	65.8 0.40 ⁹⁾ (9,141 MHz, 303.2K)
			2	3.93 ± 0.08	0.051 ± 0.0015	1.043	0.9	63 ± 2	0.19 ± 0.02	

* Samples, No. 1~No. 5 are made in WAKO PURE CHEMICAL INDUSTRIES. Ltd. (99.5 v/v%)

** Sample, No. 6, the measured resistivity is 300×10^3 (Ω -m) at D.C.

い試料でも m の大きな測定では生ずる。

5. 実測結果

測定周波数 9.50 GHz で、本測定法により数種の液体試料についてその複素比誘電率を実測した結果をその精度、補正項などを併記して示したのが **Table 1** である。

6. 実測結果の考察

まず間隔膜の存在がどの程度算定結果に影響するかを **Table 1** の各試料について (3)' 式による ϵ_{2r}' , $\tan \delta_2$ の算定結果と比較したところ、No. 1 の ϵ_{2r}' (11.6), No. 2 の $m=1$ の場合の ϵ_{2r}' (4.6), $m=2$ の場合の ϵ_{2r}' (4.40), $\tan \delta_2$ (0.35), No. 3 の ϵ_{2r}' (11.2), No. 5 の $m=1$ の場合の $\tan \delta_2$ (0.149) が測定誤差の範囲をこえているところから、間隔膜の補正は不必要であると簡単に結論されない。ただこの補正式を求める場合間隔膜区間の導波管断面の広がりを見視した算式を用いたが、文献 3) による近似式を用いた算定結果とを比較すると No. 2 の ϵ_{2r}' (4.5), No. 3 の ϵ_{2r}' (11.4) が本表の値の誤差範囲よりいずれも小さな値となっている。いずれにしても間隔膜の影響ができるだけ小さくなるよう膜の材質を選定し、その寸法、厚さなどを極力小さくなるよう配慮したため両者の差異はごく

小さい。これについては今後の課題としてさらに検討したい。

本測定法における誤差の最大の原因は定在波測定器の寸法精度にあると考えられる。使用したこの測定器の移動最小目盛が 5/100 mm であるところから電界最小位置を最初に求め、プローブの位置を移動して定在波比を測定してから再度最初の電界最小位置にこれを固定する際、元の位置に完全に戻らないために d_{2m} (± 0.02 mm 以下) と S (± 0.0014 以下) の誤差を増加させる原因となっている。間隔膜の存在が測定結果に与える影響は $F d_2 / \lambda_{g0} S$ が小、すなわち ϵ_{2r}' が大で高損失の試料に対しては著しく大きく補正する必要があるが、高損失試料であっても ϵ_{2r}' が小である場合は影響が少なく、逆に比較的低損失であっても ϵ_{2r}' が大きい試料では影響が大となる。**Table 1** の実測例ではこの補正は比較的小きかったが、これは上記に理由を述べた。しかしこの考え方はより周波数の高い領域での測定を行う際有効となってくるものと考えられる。

7. む す び

本論文で提案した測定法により、**Table 1** に記したごとく比較的低損失から高損失に渡る広範囲の液体試料を迅速に測定できることを示した。低損失試料に対してはたとえば No. 4 のごとく、 m を大きく取ること

により ϵ'_{2r} , $\tan \delta_2$ の測定精度を上げることができる. Table 1 の実測結果は試料によっては文献^{6)~10)}と多少値を異にするものがあるが, 測定条件の違いおよび試料そのものの組成のわずかな違いを考えれば妥当と考えられる. 試料容器に用いたマイクロメータヘッドに直進式外側形のものを使用して新しい試料容器を目下試作しているが, 3.2 節の方式のものより良好なものはいまだ得られていない. 試料の ϵ'_{2r} , $\tan \delta_2$ の測定精度はスイープオシレータに外部レベリングをかけ, ソースシンクロナイザによる周波数と出力レベルの制御をコントローラで自動化すればより向上させることができるがこれについては稿を改め検討したい.

最後に本稿作成にあたり, 実測結果など種々ご検討いただいた名古屋大学工学部家田正之教授に深謝の意を表する.

参 考 文 献

- 1) M. G. Corfield, J. Horzelski and A. H. Price: Rapid Method for Determining v. h. f. Dielectric Parameters

- for Liquids and Solutions Using Standing Wave Procedures, Brit. J. Appl. Phys, **12**, p. 680 (1961)
- 2) R. G. Bennett and J. H. Calderwood: Measurement of v. h. f. Complex Permittivity of Liquids of an Adjustable Coaxial Line, Proc. IEE, **112** (2), p. 416 (1965)
- 3) 木原太郎: 導波管, 第3章, 現代工学社 (1948)
- 4) 杉野, はか: 液体のマイクロ波複素比誘電率の簡易測定法, 昭和46年電気学会全国大会予稿, 計測 1281 (1971)
- 5) 杉野, はか: 液体のマイクロ波複素比誘電率の測定法に関する一提案, 電気学会電気測定研究会資料, EM-71-26 (1971)
- 6) A. R. Von Hippel: Dielectric Materials and Applications, M. I. T. Press (1966)
- 7) A. F. Harvey: Microwave Engineering, Chapter 6, Academic Press (1963)
- 8) 水島三一郎: 電波と物質, 岩波書店 (1950)
- 9) F. Buckley and A. A. Maryott: Tables of Dielectric Dispersion Data for Pure Liquids and Dilute Solutions, N. B. S. Circular 589 (1958)
- 10) J. Ph. Poley: Microwave Dispersion of Some Polar Liquids, Appl. Sci. Res. B. 4, 337/387 (1955)