棒状 Si 電極による弱電解液液位計測法の基礎的研究[†]

白井 義人*・北山 正文*

川畑 敬志*・田中 武*

A Fundamental Study on the Measurement Method for the Weak Electrolyte Liquid Surface Level with Square Pole Si Electrode[†]

Yoshito SHIRAI*, Yoshifumi KITAYAMA*,
Keishi KAWABATA* and Takeshi TANAKA*

In the paper, we discuss the technique that the small width about 10mm of the weak electrolyte surface level is measured with square pole electrode. And the electrical characteristics at a relative position between the liquid surface level and the electrode in weak electrolyte were analyzed from the resistance model. It was obtained from the simulation result that the pole electrode with a higher resistivity is useful. The liquid level meter was fabricated with several square pole Si electrodes with different resistivity. We have confirmed that the liquid surface level is able to measure with a accuracy of $\pm 8\%$.

Key Words: Si-semiconductor, liquid surface level, weak electrolyte

1. はじめに

液位を計測する方法としては、すでに、点電極式、圧力式、気泡式、浮子式、音波式などさまざまな手法^{1)~3)}が提案されている。しかし、点電極方式を除いた、これらの手法は、大きな容器に入った液体で、しかも、液位の変化が比較的大きな場合の液位計測手法として用いるものが多い。

液位の変化を利用した傾斜計を考える場合、小容器に入った液体の液位を連続的に計測できる手法を考案すれば、傾斜計を小さくすることができる。

具体的には、直径 20mm 程度の球形容器に入った弱電解液で、液位の変化幅が 10mm 程度と小さい場合でも液位の計測ができるものがあれば、小型傾斜計の構成要素として利用できる。このような目的で、すでに点電極を用いた方式のものが著者らによって提案されているが^{4)~6)}、その計測値は離散値的なものである。

そこで、本論文では、小容器内の弱電解液の液位を連続的に計測できる手法について提案し、検討することにした。

まず、弱電解液の液位を棒状電極で計測するために必要な電極の電気抵抗特性を検討するためのシミュレーション手法の提案をした。この手法を用いて、液位計測の際に、弱電解

液と棒状電極の抵抗率の違いによって、液位の検出信号がどのようなようになるかを確認した。

その結果を受けて、数種類の抵抗率の異なる棒状電極を製作し、シミュレーション結果の確認実験と液位計測実験を行ない、その計測精度の検討を行なった。

2. 棒状電極の材質と弱電解液液面の挙動と電気抵抗特性の関係について

本計測法は、弱電解液に対して垂直に挿入した液位計測用の棒状電極と常時液中にある電極間のインピーダンス変化が、棒状電極が弱電解液に浸かっている長さの変化に対応していることを計測に利用するものである。このインピーダンス変化特性は、弱電解液、および、棒状電極の電気抵抗率に影響されることが予想される。そこで、本章では、常時弱電解液中にある電極と、液位計測用の棒状電極間のインピーダンス変化について検討をすることにした。

2.1 弱電解液の液面と棒状電極の位置関係による抵抗変化モデル

Fig. 1 に棒状電極を円筒型の器に入れた状態図 (a) と、この状態で考えられる等価回路図 (b) を示した。a, b, c, d 点は、それぞれ、ベース電極面、棒状電極最下端面、液面、および、弱電解液を器一杯にしたときの液面の位置である。

また、Fig. 1 の (b) 図の EZ_i は、棒状電極を n 等分した場合の長さ ΔL あたりの抵抗値 [Ω] で、電極の最下端から i 番目の要素を意味し、 eZ_i は、棒状電極の最下端の位置、すなわち、b 面から i 番目と $i-1$ 番目の EZ_i の接点までの

[†] 第 44 回自動制御連合講演会で発表 (2001・11)

* 広島工業大学 広島市佐伯区三宅 2-1-1

* Hiroshima Institute of Technology, Hiroshima
(Received December 3, 2001)

(Revised July 24, 2002)

Fig. 1 Resistance model between weak electrolyte and square pole electrode

弱電解液の抵抗値 $[\Omega]$ を、そして、 λ_i は、b 面から a 面までの弱電解液の抵抗値 $[\Omega]$ を示す。

また、ベース電極 B と棒状電極 A 点間の抵抗値を $R_{AB,k}$ として、液位が $i = k$ にあるときの B-A 間の抵抗値を EZ_i 、 eZ_i 、および、 λ_i を用いて関係式を示すとつぎのようになる。 $k \geq 2$ のとき

$$R_{AB,k} = \frac{\{R_{AB,k-1} - EZ_k \cdot (n - k + 1)\} \{\lambda_k + eZ_k\}}{R_{AB,k-1} - EZ_k \cdot (n - k + 1) + \lambda_k + eZ_k} + EZ_k \cdot (n - k + 1) \quad (1)$$

$k=1$ のとき

$$R_{AB,1} = eZ_1 + \lambda_1 + EZ_1 \cdot n$$

また、

$$EZ_i = \int_0^{\Delta L} \frac{\rho_s}{S} dl \quad (2)$$

ただし、 ρ_s ：棒状電極材料の抵抗率 $[\Omega m]$

S ：棒状電極の断面積 $[m^2]$

$$eZ_i = \int_0^{i\Delta L} \frac{\rho_w}{\pi r^2} dl \quad (3)$$

ただし、 ρ_w ：弱電解液の抵抗率 $[\Omega m]$

r ：容器の内半径 $[m]$

$$\lambda_i = \int_{\text{点 } a}^{\text{点 } b} \frac{\rho_w}{\pi r^2} dl \quad (4)$$

2.2 シミュレーション方法

シミュレーションは、Table 1 に示す条件で行なった。なお、No.1 は、一般金属抵抗材料、No.2~No.4 は高抵抗材料を仮定したものである。また、弱電解液としては、一般的な水道水を使用する予定なので、その抵抗率 ρ_w は、水道水の平均的な値である $8300 \Omega cm$ とした。a-b 間の距離に 2 つの条件を設定して、シミュレーションをする理由は、ベース電極と棒状電極間の距離が、液位計測結果に及ぼす影響を確認するためである。

Table 1 Simulation parameters

Parameter	No.1	No.2	No.3	No.4
$\rho[\Omega cm]$	142×10^{-6}	8	50	100
$S[mm^2]$	0.25	0.25	0.25	0.25
$\Delta L[mm]$	0.15			
Length of a-b[mm]	4 and 15			
Length of a-d[mm]	30			
$r[mm]$	9

Fig. 2 The circuit for translating resistance to voltage

(a) Simulation result with short distance between base electrode and Si electrode

(b) Simulation result with long distance between base electrode and Si electrode

Fig. 3 Simulation result

また、 $R_{AB,k}$ 値のシミュレーション結果は、実験時に液位を電圧値として計測することを考慮して、Fig. 2 に示すような回路によって、 $R_{AB,k}$ 値の変化を抵抗 R の両端電圧 $E_{R,k}$ 値の変化に変換してグラフ化することにした。

2.3 シミュレーション結果とその考察

$E=5V$, $R=10k\Omega$ とした場合のシミュレーション結果を、Fig. 3 に示す。Fig. 3(a) はベース電極と棒状電極間の距離が 4mm, Fig. 3(b) は、ベース電極と棒状電極間の距離が 15mm の場合についてシミュレーションをしたものである。この結果より、No.2~No.4 の条件で、線形に近い計測結果が得られることがわかった。さらに、感度の良くなる条件は、No.3, および、No.4 のように、 ΔL あたりの抵抗値が弱電解液の抵抗値に近いものか、数倍高いもの、すなわち、 $EZ_i > eZ_i$ であることが必要条件であることがわかった。また、a-b 間

の距離が大きいと、 $EZ_i < eZ_i$ で、かつ、液位が低い場合の計測において、計測結果は、強い非線形特性を示すこともわかった。

3. 棒状 Si 電気材料について

2.3 節で示したように、棒状電極を用いて弱電解液の液位の計測を可能にするためには、 $EZ_i > eZ_i$ を満たす必要があることがわかった。弱電解液が水道水の場合、この条件を満たすように、一般金属抵抗材料で棒状電極を製作しようとすると、きわめて細く電極を加工しなければならず現実的ではない。

そこで、著者らは、ドーピングにより抵抗率を $10^{-4}\Omega\text{cm} \sim 5.5 \times 10^{14}\Omega\text{cm}$ と広範囲に変えることができ⁷⁾、しかも、高精度に微細加工ができる Si 半導体に着目し、棒状に加工した Si 半導体を電極材料として用いることにした。

P 型 Si 半導体に Pt リード線を付けると、オーミックコンタクトが形成される。^{8)~12)} オーミックコンタクトとは、半導体と金属の接触部で、一般抵抗体と同様に電圧印加方向に関係なく電流が流れる接触であり¹²⁾、本研究で要求される電極の電気的特性は、オーミックコンタクトである。

そこで念のために、抵抗率の異なる数種類の Si ウエハを四角柱状に切り出し、リード線を付けて、接合部がオーミックコンタクトになっているかどうかを確認するための実験を行った。

3.1 実験装置、および、実験方法

実験に用いる棒状 Si 電極の形状、寸法とリード線接続方法を Fig. 4 に、また、実寸法と抵抗率を Table 2 に示す。また、Fig. 5 には、オーミックコンタクトの確認実験を行なった回路構成を、Fig. 6 には、棒状 Si 電極を弱電解液に浸した状態で棒状 Si 電極とベース電極間に交流を印加し、周波数に対するインピーダンス特性の測定を行なった実験装置構成図を示す。

この実験装置は、内径 17mm、長さ 50mm の円柱状の容器に弱電解液として、抵抗率 $8300\Omega\text{cm}$ 、液温 25°C 、水素イオン指数 7.04 の水道水を入れて、Table 2 に示した電極を容器内に垂直に挿入するものである。なお、試料 No.1~No.3 は、棒状に加工した Si 電極に幅約 5mm のアルミ膜を蒸着¹³⁾し、そこに導電性接着剤で白金線を接着したものである。試料 No.4 は、Si 電極との特性の比較のために用意した一般金属抵抗材料の鉄・クロム線である。

実験は、まず、Fig. 5 に示した回路構成で棒状 Si 電極とリード線の接合部の直流 V-I 特性を測定した。つぎに、Fig. 6 に示した装置を用いてベース電極と棒状 Si 電極間の周波数に対するインピーダンス特性を把握するために、液位、および、棒状 Si 電極とベース電極間の印加電圧を一定にして、周波数を変化させて行なった。

なお、この一連の実験は、棒状 Si 電極が光の影響を受けやすいことを考慮をして、装置を暗箱で覆って実験を行なった。

Fig. 4 The shape and size of silicon semiconductor test piece and connection method of lead wire

Table 2 Silicon parameters

Material No.	Type	a[mm]	b[mm]	l[mm]	$\rho[\Omega\text{cm}]$
1	P	0.6	0.6	30	8-12
2	P	0.3	0.3	30	30-50
3	P	0.4	0.4	30	110-130
4	Metal	$\phi = 0.55$		30	142×10^{-6}

Fig. 5 Wiring model for measuring DC characteristic of silicon semiconductor test piece

Fig. 6 Experiment apparatus for measuring the impedance characteristic of silicon semiconductor

3.2 実験結果とその考察

試料 No.2 の直流 V-I 特性の測定結果を Fig. 7 に、また、試料 No.2 の周波数に対するインピーダンス特性の測定結果を Fig. 8 に示す。Fig. 7 の結果より、棒状 Si 電極とリード線接合部が極性変化に対してほぼ対称の出力変化を示しており、オーミックコンタクトになっていることが確認できた。また、Fig. 8 の結果より、分極作用を抑えるために使用する交流の周波数は、周波数の変動に対してインピーダンスの変化が小さい 1kHz~1000kHz の周波数が適していることが確認できた。本実験では、弱電解液や棒状 Si 電極がもつ寄生キャパシタンスの影響を少なくするため、5kHz の周波数を用いることにした。

Fig. 7 DC I-V characteristic (sample No.2)

Fig. 8 Frequency characteristic of the impedance between Si semiconductor and weak electrolyte (sample No.2)

4. 棒状 Si 半導体電極を用いた液位計測法

前章までに示した結果から、弱電解液の液位と棒状 Si 電極の相対的位置関係によるインピーダンス変化を利用すると、数 mm オーダーで液位を計測できる可能性のあることがわかった。

本章では、液位変化速度に対するインピーダンス変化特性と、液位の検出信号と実際の液位の関係を実験によって確認し、その検討を行なった。

4.1 実験装置、および、実験方法

Fig. 9 に液位を検出する信号処理回路を、また、Fig. 10 には、液位計測実験のための装置を示す。

液位検出信号は、Fig. 9 に示すように、交流ブリッジの出力電圧を差動アンプで増幅し、その電圧を符号器とアナログ乗算器を用いて、容器の中心を基準とした液位の変位を電圧値として出力した。実験は、まず、Table 2 に示した、試料 No.2 の棒状 Si 電極を用いて、容器を垂直、すなわち、 $\theta=0\text{deg}$ としておき、液位を約 7.3mm/sec の速度で上昇、下降させたときのインピーダンス変化を電圧値の変化として記録することで、液位変化速度に対するインピーダンス変化特性を確認した。つぎに、Table 2 で示した試料 No.1~No.4 を Fig. 10 の実験装置の容器内にセットして、棒状 Si 電極が弱電解液に 5mm 浸かった状態を液位 0mm として、液位を 0~15mm の幅で変化させて液位計測実験を行なった。このとき、容器の傾き角度 θ は、0deg, 30deg, 45deg, 60deg に設定した。また、本実験では、液位を Fig. 11 で示すメニスカスの底部 (c 部) とした。以上の実験には、弱電解液とし

Fig. 9 Liquid Level detector

Fig. 10 Liquid level changeability experiment equipment

Fig. 11 Definition of liquid level

て抵抗率が 8300Ωcm で、液温 25°C、水素イオン指数 7.04 の水道水を用いた。液位の設定は、Z 軸ステージを用いて行ない、0.5mm ステップで変化させた。また、棒状 Si 電極が、周囲の光の影響を受けやすいことを考慮して、装置を暗箱で覆って行なった。

4.2 実験結果とその考察

棒状 Si 電極と弱電解液の液位変化速度に対するインピーダンス変化特性の確認実験は、液位の上昇と下降を同じ速度で行なった。実験結果の一例を Fig. 12 に示す。この電圧の波形の上昇は液位の上昇を、電圧の下降は液位の下降を示している。この結果とその他の結果を合わせて考えると、液位の上昇、および、下降時にはほぼ同様なインピーダンス変化をしている。しかし、厳密に検討をしてみると、棒状 Si 電極に弱電解液の液膜が上昇する場合には、その速度に対応しているが、下降する場合は電極表面の残留液膜による影響が多少あることが確認される。

Fig. 12 Getting wet and dryness characteristic to water of semiconductor

Fig. 13 Measurement result of liquid level which uses sample of No.1-No.4

つぎに、容器の傾き角度を $\theta=0\text{deg}$ にして液位を変化させた場合の液位計測結果について、Fig. 13 に示す。なお、このグラフの液位値は、Fig. 10 で示した実験装置の Z 軸ステージの目盛り値を読み取ったものである。この結果は、Fig. 3 に示したシミュレーション結果を受けて予測した、弱電解液の抵抗 eZ_i と棒状 Si 電極の抵抗 EZ_i によって変化する液位計測感度と、同じような傾向を示していることがわかる。すなわち、弱電解液の抵抗 eZ_i に対して、棒状 Si 電極の抵抗 EZ_i が低い場合には、試料 No.4 のように計測感度が均一ではなく、しかも、液位の上昇にしたがって感度が鈍くなる。一方、弱電解液に対して棒状 Si 電極の抵抗が試料 No.2, No.3 のように高い場合には、液位計測感度は高く、また、ほぼ均一になる。

つぎに、容器の傾き角度 θ を 0deg , 30deg , 45deg , 60deg に設定して行なった、試料 No.2 の棒状 Si 電極の実験結果について、Fig. 14(a) に示す。 $\theta=0\text{deg}$ 以外のものは、 $\theta=0\text{deg}$ で検出した液位検出電圧を基準に $1/\cos(\theta)$ 倍になっていることが理想的である。このことを確認するために、Fig. 14(a) の結果について $\theta=0\text{deg}$ 以外のものをそれぞれ、 $2/\sqrt{3}$, $\sqrt{2}$, $1/2$ で除算してみることにした。その結果を、Fig. 14(b) に示す。

これらの結果より、電極の設置状態により生じる計測誤差がある場合には、幾何学的な計算である程度出力電圧の補正ができることが確認できた。

4.3 計測精度について

Fig. 14(a) の結果で、 $\theta=0\text{deg}$ の場合の検出電圧 E_{obs} に対する液位 L の 3 次の近似関数を求めると、次式のように

(a) Measured liquid level with No.2

(b) Result of dividing measurement with $1/\cos\theta$

Fig. 14 Measurement result of liquid level

Fig. 15 Verification of accuracy

なる。

$$L = 4.90E_{obs}^3 - 0.153E_{obs}^2 + 22.3E_{obs} + 0.222 \quad (5)$$

Fig. 10 で示した実験装置の Z 軸ステージを操作して、液位をランダムに変化させ、そのときの液位検出電圧と容器内の実際の液位を記録した。記録をしておいた液位検出電圧から (5) 式に示す近似関数によって算出した液位 L と、容器内の実際の液位を比較することで本計測手法の計測誤差の検討を行なった。容器内の液位の観察は、容器背面にスケラを貼り、そのスケラを液位と一緒に CCD カメラで撮影しておき、出力電圧を読み取るとともに、画像中に読み取りフェーズを示すポインターを同時に記録し、実験後、読み取り出力

電圧に対する液位を画面から読み取った。以上のようにして得た結果を、それぞれ縦軸と横軸の値とし、プロットしたものを Fig. 15 に示す。これらの結果より、本計測法による計測誤差は、ほぼ $\pm 8\%$ 以内におさまることが確認できた。

この誤差の原因として、棒状 Si 電極に付着する液膜の影響が考えられる。しかし、実験装置全体について考察してみると、Fig. 9 で示す信号処理回路で、ブリッジに生ずる交流電圧を差動アンプで増幅した信号と、アナログ乗算器で掛け合わせる符号信号との間に設計仕様の範囲外の、若干の位相のずれが生じていた。これは、液位計測精度を大きく左右するものであり、このことが本実験において大きな計測誤差を生じさせる原因である。これは、信号処理の問題で、符号信号を精度よく生成することである程度改善できる。

5. おわりに

以上の結果より、弱電解液の液位の変化幅が、10mm 程度の場合では、液位の計測に最適な加工、および、抵抗率の設定が可能な棒状 Si 電極を用いることにより、数 mm オーダーの小さな液位の変化を $\pm 8\%$ の誤差で計測できることがわかった。また、3 時間程度の連続計測でも、計測結果は、 $\pm 8\%$ の誤差内であった。

今回は、弱電解液の温度変化による抵抗率の変動が本計測法に及ぼす影響や、光の影響、電気的二重層などの計測に及ぼす影響については考慮していない。また、信号処理方式の工夫による計測精度の向上にも余地を残している。したがって、今後の課題として、これらの検討を行ない、実用に耐えうる傾斜計用の液位計にするための研究を行なう予定である。

最後に、Si ウェハの微細加工に協力して頂いた(株)ディスコ岩岡様二様に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 大塚数博：液面検出用ファイバユニット，オートメーション，45-6, 76/80 (2000)
- 2) 今井敏真：超音波レベル計「リベル」，計測技術，28-10, 29/31 (2000)
- 3) 土屋喜一他：大学課程 計測工学（第3版），オーム社，133/135 (2000)
- 4) 白井，北山：独立型二足歩行ロボット用姿勢センサユニットの基礎的研究，計測自動制御学会論文集，38-9, 753/758 (2002)
- 5) 白井，北山，今元：弱電解液の液面状態を利用した姿勢センサの研究，第44回自動制御連合講演会予稿集 515 (2001)
- 6) 白井，北山：弱電解液を用いた独立型二足歩行ロボット用姿勢センサユニットの研究，計測自動制御学会論文集 11 月号掲載予定 (2002)
- 7) Murray Hill: New Jersey: Physics of Semiconductor Devices, Bell Telephone Laboratories, Incorporated
- 8) 田村，松田：現代電気化学，培風館，121/138 (1977)
- 9) 前田正雄：電極の化学，技報堂，297/331 (1962)
- 10) 玉虫伶太他：電極反応の基礎，共立出版，59/108 (1973)
- 11) 大塚頼三他：最新半導体工学，朝倉書店，64/68 (1993)
- 12) 佐々木昭夫：固体電子工学，コロナ社，101/108 (1986)
- 13) 「物性」編集委員会：半導体の基礎技術，横書店，46/59 (1970)
- 14) 白井，北山，川畑，田中：棒状 Si 電極による弱電解液位の連続測定法の基礎的研究，第44回自動制御連合講演会予稿集 507 (2001)

- 15) 廣川，小倉：工科系の物理学実験，学術図書出版社 (1992)
- 16) 福原元一：電気伝導率測定法通則，日本規格協会 (1995)

[著 者 紹 介]

白 井 義 人 (学生会員)

1996 年，広島工業大学工学部電子工学科卒業。98 年，広島工業大学大学院工学研究科博士前期課程電子工学専攻修了。2001 年，広島工業大学大学院工学研究科博士後期課程知的機能科学専攻。

北 山 正 文 (正会員)

1967 年，東北大学大学院工学研究科修了。同年広島工業大学に着任。気液二相流中の気液状態計測法などの研究に従事（工学博士（東京大学））。各種実システム，弱電解液微流速流向測定法，微粉体粒度計測法，独立型二足歩行ロボットの開発研究，次世代ロボットの目の機能システムの研究に従事。現在，工学部電子・光システム工学科教授。日本原子力学会，日本ロボット学会，情報処理学会などの会員。

川 畑 敬 志

1967 年，広島工業大学工学部電子工学科卒業。同年同大学就任，半導体素子の放射線損傷に関する研究，薄膜機能素子に関する研究，アモルファス半導体薄膜に関する研究，電子デバイス用薄膜形成と評価に関する研究（博士（工学）広島大学），透明導電膜に関する研究，スパッタ法による薄膜形成技術に関する研究に従事。現在，工学部電子・光システム工学科教授，IEEE，AVS，電子情報通信学会，応用物理学会などの会員。

田 中 武

1987 年，広島大学大学院工学研究科博士課程後期材料工学専攻単位取得後退学，同年広島工業大学に着任。レーザ誘起プロセスによる薄膜形成に関する基礎研究などの研究に従事（工学博士（広島大学））。高周波—直流結合形マグネトロンスパッタリング法による金属およびその金属化合物薄膜作成の研究，集積回路設計教育に関する研究，プラズマベースイオン注入法を用いた PET 膜の表面改質の研究，ソーラー式 LED 内照型道路標識システムの研究に従事。現在，工学部電子・光システム工学科助教授。応用物理学会，電子情報通信学会，電気学会，日本真空協会，IEEE，AVS などの会員。