高誘電損失材料の誘電特性の新測定法とその応用†

新井 智一・一条 文二郎

静岡大学工学部 浜松市城北 3-5-1

(昭和 46 年 8 月 5 日 受付)

A New Method of Measuring Dielectric Property of Very-High-Loss Materials and Its Applications

Tomokazu ARAI and Bunjiro ICHIO

(Faculty of Engineering, Shizuoka University, Hamamatus)

(Received August 5, 1971)

This paper presents a circuit system functioning as a capacitance and resistance meter suitable for very-high-loss materials with a wide range of application in various fields of scientific research and industrial operation.

The system for the capacitance meter has two measuring arms; thus, it requires a pair of specimens. An apparent positive reactance variation caused by the low resistance of the specimen placed in one arm is cancelled by the apparent negative reactance variation in the other arm. Therefore, the error due to a large shunt conductance is eliminated from the capacitance measurement.

The system for the resistance meter is a resonance circuit having a very-high Q coil and a differential condenser with a series resistor which acts variable resistance at radio frequencies. The resistance variation caused by inserting the resistance of the specimen into the capacitance measuring circuit is detected as a change in the output of the amplifier circuit. This value is measured by the differential condenser and the series resistor.

The minimum equivalent parallel resistance of the specimen to be measured reaches as low as 50Ω and the measuring range of the capacitance is about $0.1\sim 1200\text{ pF}$ at 2 MHz .

As an application of this circuit system, the dielectric property of wet paper, textile fibers and wood is measured. From the result of the measurement, it becomes clear that the capacitance of woods is proportioned to the moisture content in a region of free water. And the capacitance deviation due to the moisture content is proportioned to the apparent density of wet wood, but not affected by the kind of wood.

1. ま え が き

各種材料の物性を調べる方法の1つである誘電率法は、比較的簡単な装置によって測定を行なうことができるので古くから用いられている。この装置の代表的なものとしては Q メータやキャパシタンス・ブリッジがある。ところで、たとえば Q メータについてみると、この装置は Q 値が非常に高い材料の静電容量の測定は

容易であるが、その損失の測定は不可能となる。逆に Q 値の低い材料、すなわち、電気伝導性の良い材料や半導体材料に対しては、共振曲線が平坦になってしまい、共振点をみつけることができなくなり、材料の静電容量すなわち比誘電率を求めることも、また損失を測定することも不可能になる。キャパシタンス・ブリッジについても Q メータの場合と同じようなことがいえる。以上のように Q 値の低い高誘電損失材料についてその誘電特性を測定することは非常に困難なことで

† 電気学会全国大会で発表(昭 46・3)

ある。そのためと思われるが電解質の希薄水溶液の比誘電率を古くから多くの人たちによって測定されているが、その結果はまちまちで中には矛盾するようなものもみられる¹⁾。したがって高誘電損失材料を対象とする誘電特性測定回路の開発については物性研究者はもとよりであるが、応用研究にたずさわっている者にとっても待ち望まれている課題といえる。最近における研究成果としては、測定試料に直列と並列に静電容量を接続して誘電分散をおこさせて比誘電率と誘電損失とを求めている神吉らの研究²⁾、市販のブリッジに新しい検出器を付加した S.E. Young らの研究³⁾、4 電極零位法を用いた H.P. Schwan らの研究⁴⁾、変成器ブリッジを用いた D. Rosen ら、および M.A. Seitz らの研究^{5), 6)}があるが、筆者らは共振回路を用いた新しい測定法を開発したので、原理・特性およびその応用例について報告する。

2. 測定原理および方法

1. で述べたように、外国におけるこの種の測定回路はほとんど変成器ブリッジの改良によっている。これははん用の変成器ブリッジが市販されており、容易に入手できるためと思われる。しかるにわが国では、変成器ブリッジはそれほど普及されていないため、ブリッジを製作するとなると変成器でいさづまってしまう。その点筆者らの回路は初期の調整に多少手数を要するが、使われている部品は簡単なものばかりで、製作が容易である点が特長といえる。以下順に測定回路の詳細を述べる。

Fig. 1 は測定回路の概略図であって、図の AB から左側の amp. II を除く部分が高誘電損失材料の静電容量測定部であり、AB から右側の部分および amp. II が等価並列抵抗測定部である。

Fig. 1 Measuring circuit

2.1 静電容量測定部

前報⁷⁾において高誘電損失材料を測定対象とした静電容量（以下容量と略記）測定回路について一部を発表してあるので必要限度の事項のみを述べる。図において OSC は高周波発振器、 L_1 – L_2 – C_1 – C_2 – C_p は直列

共振回路、 C_{2v} と C_2' は標準可変空気コンデンサで歯車をかいして連動するようになっており、ダイヤル 1 目盛当たりの C_{2v} と C_2' の容量変化は正確に等しくなるようにしてある。

回路が電源周波数に共振したとき、電圧 e_x と e_p との間の位相差は 90° となり、高感度の位相検波増幅器 amp. I の出力指示計 I_{g1} は零点を示す。

測定する試料 (R_x, C_x) は C_2 と C_2' とにそれぞれ並列に接続する。しかるときは指示計 I_{g1} が振れるから、 C_2 と C_2' を減少させて再び I_{g1} の振れを零にすれば、そのときの標準コンデンサの容量変化 $\Delta C_2 = \Delta C_2' = C_x$ から未知容量を求めることができる。

このようにして測定した容量値は等価並列抵抗 R_x の影響を受けないようにすることができる。それには回路の構成にあたって、

$$L_e/(L_1+L_2)=C_1/C_2(1+C_p/C_e) \quad (1)$$

$$\omega^2 L_e C_2(1+C_1/2C_2) \approx 1 \quad (2)$$

$$C_p \approx 3C_1/4(1+C_2/C_1) \quad (3)$$

ただし、 $L_e = L_2/(1-\omega^2 L_2 C_2')$,

$$C_e = C_1 C_2/(C_1+C_2), \quad \omega: \text{電源の角周波数}$$

なる条件が満足されるようにすればよい。

2.2 等価並列抵抗測定部

これは L_3 – C_3 – C_d の並列共振回路とピックアップコイル e_y および差動増幅器 amp. II から構成されている。 R_3 はコイル L_3 の等価並列抵抗であって、この値は非常に高くなるようにコイルを作るようにする。 C_3 は可変空気コンデンサであり、 C_d は差動コンデンサである。 C_d の一方の極板側には抵抗器 r をそう入して高周波可変抵抗器⁸⁾として動作させる。

いまスイッチ S を閉じて試料 (R_x, C_x) を測定回路に接続した場合、AB から左側をみた等価並列抵抗 R_p' は、

$$R_p' = R_x/2 \cdot (1+C_2/C_1)^2 \quad (4)$$

となる。

つぎに S を開き、AB から右側をみた等価並列抵抗 R_p'' は、

$$R_p'' = R_3/(1+\omega^2 C_{10}^2 r R_3)$$

いま、 $\omega^2 C_{10}^2 r R_3 \gg 1$ とすれば、

$$R_p'' = 1/\omega^2 C_{10}^2 r \quad (5)$$

となる。ただし C_{10} は r をそう入した側のコンデンサの容量とする。

したがって、S を閉じ (S_1 も同じ) たときの I_{g2} の振れを読みとり、S を開いて r と C_{10} とを調整し、さきの I_{g2} の振れにすれば $R_p'' = R_p'$ となるから、試料の R_x は、

$$R_x = 2/\omega^2 C_{10}^2 r (1+C_2/C_1)^2 \quad (6)$$

より求められる。

3. 測定回路の構成および特性

3.1 構 成

測定回路の使用周波数範囲は一般に使われている Q メータと同じような範囲が可能であるが、製作の容易さから固定周波数の 2 MHz で使えるように試作した。コイル L_1 , L_2 はステアタイト製ボビンにホルマル線を密着巻きにして作り、自己インダクタンスの値は $L_1=14.7\mu\text{H}$, $L_2=1.48\mu\text{H}$ というように約 10:1 になるように決めた。コンデンサ C_1 , C_2 としては可変空気コンデンサおよびスチロールコンデンサを用い、多少の調整は可変空気コンデンサで行なった。 C_1 の容量値は約 400 pF として (1) 式の条件を満足するような C_2 の容量値は約 4000 pF となったが、ほぼこの値で回路は正常に作動した。標準コンデンサの C_2' , C_{20} は 0~100 pF の可変空気コンデンサと固定容量のスチロールコンデンサとを併用した。これは既製の大容量の可変コンデンサがなかったため、 C_x は 0.1~1200 pF まで測定可能である。

L_3 のコイルは Q の高いものほどよいが、試作したものは直径 80 mmφ、長さ 150 mm のステアタイト製ボビンに巻線直径 1.6 mmφ のホルマル線をピッチ 0.7 mm の間隔巻きに 55 回巻いたものである。このインダクタンスは 115 μH , R_3 は約 630 k Ω , Q は 370 であった。 C_d はステアタイト製の可変空気コンデンサ 30 pF を 2 個組み合わせて作った。

C_x を測定するための検出用 amp. I を Fig. 2 (a) に、 R_x を測定するための検出用 amp. II を Fig. 2 (b) に示す。

(a) circuit of amp. I (b) circuit of amp. II
Fig. 2 Detector circuit

3.2 特 性

Fig. 3 は試料として炭素皮膜抵抗器を用い、その抵抗値 R_x を 0.05~100 k Ω まで変化したときの標準コンデンサの容量偏差 ΔC_x (試料が接続されないときを 0) を実験により求めたものであり、 C_2' をパラメータとして示してある。炭素皮膜抵抗器自体の容

Fig. 3 Relationship between ΔC_x and R_x

量は約 0.4 pF であるから、 C_2' の調整をうまく行なえば $C_2'=1721$ pF の例にみられるように $R_x=50\Omega$ 以上であるならば、 R_x の値に無関係に試料の C_x を測定することができる。

この測定法は 1 組の試料を同時に L_2 と C_2 に接続しなければならないが、そのため 1 組の試料が同じでなければ、それにとまなう誤差が生ずることが予測されるこれを実験によって調べたのが Fig. 4 である。

Fig. 4 Relationship between C_x and $\Delta R_x/R_x$

図から明らかなように、 R_x が 1000 Ω 以上であれば 1 組の R_x の値が 30 % 程度相異してもその影響はほとんど認められないが、 R_x が 500 Ω 以下になるとその値が低くなるほど著しくなる。図では $R_x=220\Omega$ の例が示してあり、 C_2 側に接続される試料の等価並列抵抗が大きい場合は容量値が見掛け上増加し、反対に L_2 側に接続される試料の等価並列抵抗のほうが多い場合は容量値が見掛け上減少する。しかしながら、容量増加や減少はほとんど対称的になるから、このような試料の測定にあたっては測定を 2 回くりかえせばよい。すなわち、試料の接続を L_2 側と C_2 側とお互いに取り換えて行ない、2 回の測定から得られた C_{x1} と C_{x2} の平均をとれば、これが C_x の真値を示すことになる。

静電容量測定部の容量感度 $\Delta I_{g1}/\Delta C_x$ と R_x との関

Fig. 5 Relationship between $\Delta I_{G1}/\Delta C_x$ and R_x

係を Fig. 5 に示す。12AX7 1 段のみの場合 (detector D_1) は最大でも $0.8 \mu\text{A/pF}$ の感度しかないが、Fig. 2 (a) に示したようにトランジスタ 2SC183 を付加した場合 (detector D_2) は最大感度約 $14.2 \mu\text{A/pF}$ となり、 $\Delta C_x = 0.1 \text{ pF}$ の検出が容易である。

等価並列抵抗測定部の検出には e_y の電圧をダイオードで検波して直流電流計 (mA) で読み取る場合と、Fig. 2 (b) のような差動増幅器を用いた場合とでは Fig. 6 に示すような相異がある。すなわち、 L_1 - L_2 -

Fig. 6 Difference of detector for e_y

C_1 - C_2 - C_p で構成される直列共振回路の Q は低いため e_y を直接電流計で読み取るのは不適當といえる。したがって、amp. II を用いて R_x のそう入にともなう直列共振回路の Q 値の変化分のみをマイクロ電流計 (μA) の読み I_{G2} として取り出すことが有効である。また I_{G2} がわかれば、高周波可変抵抗器である差動コンデンサの容量値 C_{10} と r より (6) 式によって R_x の値を求めることができる。Fig. 7 は r をパラメータとして I_{G2} と差動コンデンサ・ダイヤル目盛 C_{10} との関係を示したものである。なお参考のために R_x の値を求めた結果を右側の縦軸に示した。図から明らかなように、 R_x の値が比較的高い場合、すなわち I_{G2} の振れが少ないときは、 r の値の低いものを用い、逆に R_x の値が低い場合、すなわち I_{G2} の振れが大

Fig. 7 Characteristics of differential condensor

きいときは、 r の値の高いものを用いたほうが精度よく測定できる。

静電容量測定部の検出電流 I_{G1} と等価並列抵抗測定部の検出電流 I_{G2} との相互作用を調べたのが Fig. 8

Fig. 8 Interaction of ΔI_{G1} and ΔI_{G2}

である。実際の測定では、零位法であるから $I_{G1} = 0$ にするが、わざと $\pm 100 \mu\text{A}$ の振れを与えても、 I_{G2} は $\pm 1 \mu\text{A}$ の変化しか起きていないから、 I_{G1} と I_{G2} との相互作用は無視してさしつかえないと思う。

4. 応 用

4.1 電解質溶液の誘電特性

NaCl , KCl , LiCl , BaCl_2 , MgSO_4 , RbCl , CuSO_4 などの希薄水溶液の誘電特性を 1 組の同心円筒電極 (外径 $2r_1 = 8 \text{ mm}$ φ, 内径 $2r_2 = 45 \text{ mm}$ φ, 高さ $l = 11 \text{ mm}$) を用いて測定した。その結果の一例を Fig. 9 および Fig. 10 に示す。溶液濃度としては 4×10^{-5}

Fig. 9 Relationship between C_x and ρ

Fig. 10 Relationship between R_x and ρ

～ 1.5×10^{-2} (規定) の範囲であった。また横軸の抵抗率 ρ は東亜電波(株)製の CM-1 DB 形数字式電導度計と電導度セル CG-201 PL とを用いて導電率を測定し、その逆数を示したものである。

Fig. 9 からは蒸留水の $\rho = 3.5 \times 10^5 \Omega \text{cm}$ に対する容量と水溶液の $\rho = 2 \times 10^3 \Omega \text{cm}$ までの容量とは同じであったが、 ρ の値がさらに小さくなると、両水溶液の容量は減少した。すなわち、水の比誘電率に比べ電解質の希薄水溶液の比誘電率はある濃度以上になると減少することを示している。このような現象は Sach 効果によって説明することができる。Fig. 10 からは、 R_x と ρ の関係が 45° の直線となっており、この範囲では $R_x = \rho / 2\pi l \cdot \log r_2 / r_1$ の関係が満足される。

4.2 高含水材料の静電容量

この実験には1組の円環格子電極⁹⁾ (Fig. 11 (a)) を用いたので予備実験として、この電極を底とする容器を作り、この容器の中に比誘電率 ϵ_s の異なる

Fig. 11 Relationship between C_x and ϵ_s

る溶媒を入れて容量 C_x と ϵ_s との関係調べた。これを図示したのが Fig. 11 (b) である。なお内部電極の外径 $2R_1$ をパラメータとした。これから明らかなように C_x と ϵ_s とは比例している。すなわち、以下の実験に使えることがわかった。

4.2.1 紙 紙の含水にともなう見掛けの比誘電率変化を測定することは、紙の物理的構造を調べることや紙の比誘電率変化より水分を電的に測定する誘電率形電気水分計の水分測定範囲を明確にすることなどのために必要なことがらである。ところで水分が20%以上の高含水域になると、含水紙の等価並列抵抗値が低くなるため、一般の容量測定回路では抵抗値の影響が大きくなり、含水紙の容量を正確に測定することは困難である。そのため高含水域における容量と水分との関係を示す結果はほとんど発表されていない。

筆者らは薄紙12枚を重ねたもの(薄いと厚さの変化が大きいため)を試料として、さきの円環格子電極を用い、 C_x と湿量基準の水分 M' との関係を求めたものを Fig. 12 に示した。なお W_0 は絶乾重量、 W' は

Fig. 12 Relationship between C_x and M' with grid electrode for paper

含水状態の重量である。図より $M' = 70\%$ ぐらいまで C_x は M' に比例している。このような関係については、岸ら¹⁰⁾が織布について含水率と見掛け誘電率との関係を乾量基準の水分 M を使って考察しており、 $M = 0 \sim 20\%$ の範囲内では理論式と実験とが一致することを発表している。かように材料、水分範囲は相異なるが岸らの考え方を拡張すれば Fig. 12 の実験結果を説明することができる。なお同じ薄紙を4枚重ねてQメータ用の平行板電極で測定した例を Fig. 13 に示した。この場合の C_x および R_x の測定は複合回路法¹¹⁾によった。Fig. 12 の場合とでは薄紙の枚数、電極の構造などが異なるため紙の見掛けの比誘電率 ϵ_s と M' との関係に多少の相異が認められる。

4.2.2 織布 織布の含水状態における誘電特性は紙の場合と同じような傾向を示すので省略するが、

Fig. 13 Relationship between ϵ_s , R_x and M' with parallel-plate electrode for paper

染色などに関連する予備実験について述べる。すなわち木綿やポプリン(テロン 65%, 綿 35%)を種々の濃度の希薄電解質溶液に浸漬させた後、ローラで一定の水分にしばったものの容量を測定した。Fig. 14

Fig. 14 Relationship between C_x and content of NaCl and Na_2CO_3 in water for textile fibers

は容量を縦軸に、電解質の濃度を横軸に示したものである。同じポプリンでも電解質によって容量値は異なり、また同じ電解質でも材質によって相異している。なお純水を含んだ織布の容量値にくらべ、電解質溶液に浸漬した織布の方が容量値は大きく、実験の範囲内では濃度が大きいほど容量値は大きくなっている。溶液の濃度としては Fig. 9 の場合よりも大きな濃度であるから、水溶液の比誘電率は水の 80.9 より小さな値になっていると思われるが、それにもかかわらず、これらの水溶液に浸漬した織布の容量値が大きいのは、水溶液の浸透圧が大きくなって、織布中の空気の一部が少なくなるためと思われる。

4.2.3 木材 含水木材の誘電特性については、紙や織布などにくらべて木材の密度は大きいから、とくに高含水域におけるデータは非常に少ない。実験に

使った木材はすぎ、ひのき、ひめこまつ、かつら、およびラワンで大きさがたて 65 mm, 横 150 mm, 厚さ 20 mm のものについて C_x と M との関係を調べ、その結果を Fig. 15 に示した。図から明らかなように、材質によって C_x - M 曲線は相異しているが、傾向としては M の増加にともなって C_x は単調に増加している。

Fig. 15 Relationship between C_x and M for woods

低含水域(水分 20% 以下)における木材の誘電特性については上村の研究¹²⁾があり、そのうちの比誘電率については著しい異方性を示すことや比重の影響が大きいことなどが明らかになっている。しかし高含水域になれば木材中の水の存在状態が変わるので、低含水域における考え方を適用することはできないと思われる。以下では、この問題に対し巨視的な立場から考察した。木材を繊維質と空気との混合系とみなし、この混合系に水分を与えた場合、水分が混合系に吸収されるものとすれば、木材の比誘電率と水分との関係は次の近似式で表わされる¹³⁾。

$$\epsilon_s - \epsilon_{s0} = KM \quad (7)$$

ただし、 M : 水分 [%], K : 定数, ϵ_s : 水分 M における木材の見掛けの比誘電率, ϵ_{s0} : $M=0$ における木材の見掛けの比誘電率。

したがって、 M における木材の容量を C_x , 密度を d_w , $M=0$ における木材の容量を C_{x0} , 密度を d_0 とし、含水にともなう体積変化を無視すれば、

$$C_x - C_{x0} = K_1 d_w / d_0 - K_1 \quad (8)$$

となる。ただし、 K_1 は定数とする。

(8)式から $C_x - C_{x0}$ と d_w とは比例している。そこで Fig. 15 を書き改めて Fig. 16 を作った。図のパラメータは木材の全乾密度 d_0 であり、各曲線はほ

Fig. 16 Relationship between C_s and d_w for woods

ば平行している。このことは実験結果が定性的には(8)式の関係能满足していることになる。しかし K_1 については K は木材であれば材質あるいは d_0 によらないと仮定したが、このことは実験結果に適合していない。したがって K_1 は単なる定数ではなく d_0 の関数 $K_1(d_0)$ としなければならない。また実測値から $K_1(d_0)/d_0 \approx 99 \text{ [pF} \cdot \text{cm}^3/\text{g]}$ という値が得られ、これは材質に無関係な一定値となった。これらのことから、誘電率形電気水分計を校正するには d_0 による補正を行えばほぼ十分といえると思う。

5. あとがき

本測定法は回路構成が簡単であり、操作も容易であるにもかかわらず、零位法なので測定精度も高い。ただ1組の試料を必要とするが、それら1組の試料の不均一性による容量測定誤差は容易に取り除くことができる。周波数 2 MHz における測定範囲は静電容量値が約 0.1~1 200 pF、等価並列抵抗値が約 50~1 500 Ω である。

この装置の応用として電解質希薄水溶液の誘電特性および紙、織布、木材などの高含水域における静電容

量と水分との関係を明らかにした。

終わりに、実験に協力された飯尾元秀技官、菱藤電機(株)河本 満君、図面の作成に協力された短期大学部学生森下義明君に感謝する。

参考文献

- 1) 岡 小天：誘電体論, 191 (1954-岩波書店)
- 2) 神吉ら：電気伝導のある物質の誘電率および誘電損失を測定する一つの方法, 東北大学科学計測研究所報告, 15, 2-3, 115/124 (1966)
- 3) S.E. Young & E.H. Grant: Measurement of Permittivity of Some Biological Solutions at Frequencies Below 1 MHz, J. Sci. Instrum., Series 2, 1, 4, 429/432 (1968)
- 4) H.P. Schwan & C.D. Ferris: Four-Electrode Null Techniques for Impedance Measurement with High Resolution, Rev. Sci. Instr., 39-4, 418/485 (1968)
- 5) D. Rosen et al.: Radio Frequency Measurement of the Dielectric Constant of Conducting Liquids with $\tan \delta$ up to 500, J. Sci. Instrum., Series 2, 2-1, 22/28 (1969)
- 6) M.A. Seitz et al.: A Technique for Determining the Dielectric Behavior of High Conductivity Materials, Rev. Sci. Instr., 40-6, 826/829 (1969)
- 7) B. Ichijo & T. Arai: A New Method of Measuring Dielectric Property of Very-High-Loss Materials at High Frequencies, IEEE Tran. Instrumentation and Measurement, IM-19-1, 73/77 (1970)
- 8) 一条・熊谷：差動蓄電器を用いた高周波可変抵抗器の原理ならびにその応用に就て, 理化学研究所彙報, 21-7, 677/715 (1942)
- 9) 新井・一条：置換法による粒体中の水分の誘電的測定, 計測自動制御学会論文集, 3-1, 54/61 (1967)
- 10) 岸・三野：織布の含有水分率と見掛け誘電率との関係について, 応用物理, 26-8, 347/350 (1957)
- 11) 一条・新井：半導体の誘電率, 損失角の新測定法について, 電気学会雑誌, 74-786, 263/270 (1954)
- 12) 上村：誘電率による木材含水率の測定に関する基礎的研究, 林業試験所研究報告, 119号, 95/172 (1960)
- 13) 新井：コイル電極を用いた粉, 粒体の静電容量測定とその応用, 電気学会雑誌, 90-3, 449/458 (1970)