

研究トピックス



導電性材料の測定で 誘電率が負に見える理由

The reason why the permittivity seems to be a negative at the measurement of the conductive material

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 杉山 順一
〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 中央第5
e-mail: sugiyama-j@aist.go.jp

1. はじめに

電磁波に対する物性値の1つに誘電率がある。誘電率の測定にはいろいろな手法が知られているが、どのような物理現象を前提とした測定方法であるかを理解した上で測定値を議論しなければ、正しい意味をなさない。本報では誘電率の原義、測定方法、およびその測定値について述べると共に、ある現象で生じる「誘電率実部が負に見える」理由について考察する[1]。

2. 誘電率が負に見える現象例1

誘電率の評価として摂動法がある。空洞共振器の共振周波数 f_c とQ値を測定し、ここに微小体積の試料を入れた時の共振周波数 f_s とQ値の変化量より、周波数 f_c における複素誘電率を求める方法である(図1)。

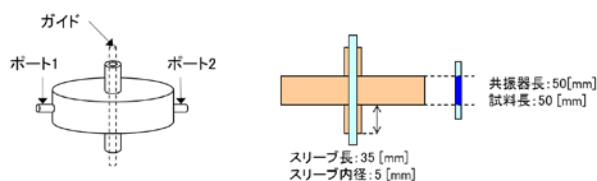


図1 摂動法

複素比誘電率 ϵ_r^* の実部を比誘電率 ϵ_r' 、虚部を比誘電損率 ϵ_r'' とする。水道水の ϵ_r^* を測定すると、25°Cから100°Cまでの範囲では温度上昇と共に ϵ_r' 、 ϵ_r'' が減少する(表1)。これは緩和時間 τ の減少および周波数0における比誘電率 $\epsilon_r'(0)$ の減少に基づく、デバイ緩和型誘電体の典型的な挙動である。同様な測定および算定を硝酸酸性の硝酸銅水溶液に対して行くと、 ϵ_r' は極端に減少

し、80°C以上で負の値と算出される。同時に ϵ_r'' は非常に大きな値と算出される[2]。

表1 再処理溶液モデルの複素比誘電率評価^{a)}

温度(°C)	水道水	硝酸銅水溶液 ^{b)}
25	75.1 -j8.7	19.5 -j103.4
50	68.9 -j5.5	7.5 -j152.2
80	63.0 -j3.7	-12.6 -j216.0
100	59.1 -j3.1	-30.6 -j257.3

^{a)} 実部は比誘電率を、虚部は比誘電損率を表す

^{b)} Cu 濃度 250g/L、硝酸濃度 3mol/L

3. 誘電率が負に見える現象例2

同じく摂動法を用い、室温にて種々の酸および塩基水溶液を測定すると、別測定で求めた導電率 σ が大きくなるにつれて ϵ_r' が減少する傾向が見られる(図2)。

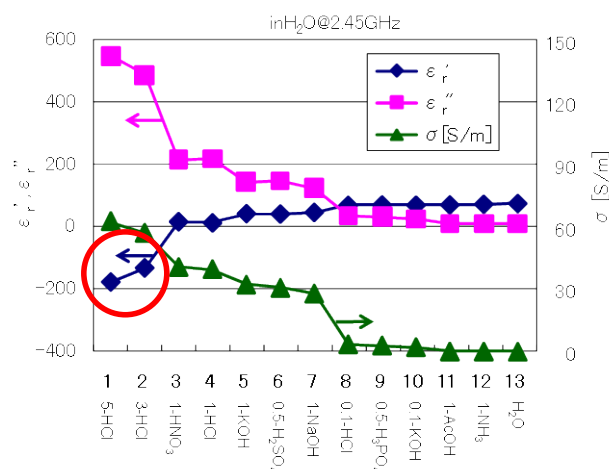


図2 導電率の高い試料の評価

例として塩酸の場合、3mol/L以上の高濃度では値が負となる[3]。導電率 σ を有する試料の場合、表皮厚 δ が小さいために試料内を電界が伝搬しないのではないかと疑いは、より高濃度である5mol/Lの塩酸において測定された $\sigma=62.7[\text{S/m}]$ から得られる表皮厚 $\delta=1/(\pi f \mu \sigma)^{0.5}$ を1.28[mm]と算定し、試料径である0.29[mm]より十分大きいことから試料内へ十分浸透していると見なしている。

4. 測定結果が「負の誘電率」を示す過程

前項にて、ある程度の導電率 σ を有する試料において誘電率が負の値を示すように計測される例を示した。そこでどのような測定がなされた時にどのような計測値となり、それがどのように「負の誘電率」として算出されるかの過程を精査する。

共振器のポート1にループアンテナを設置してTM_{0n0}モードを磁界励振すると、円筒空洞共振器内には電界の波面が同心円状に発生する。無負荷では、半径方向の電界最大振幅は第1種0次ベッセル関数に、磁界最大振幅は第1種1次ベッセル関数に従う。側壁は金属でできており、電界は0となるため、相当する共振器半径が第1種0次ベッセル関数の根となる大きさであれば、共振が成立する。

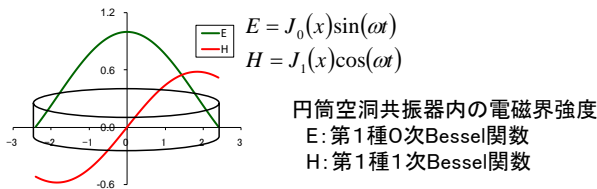


図3 電界と磁界のベッセル関数

共振器内の波動は装荷試料の内部情報を反映して多重反射し定在波を作り出している。これは円周方向に对称であり、ポート1の信号をポート2にて計測することで装荷試料を透過した共振周波数を測定している。

定在波は半径 r_c に沿って「側壁から中心に向かう波」と「中心から側壁に向かう波」の合波である。この時の波とは円筒の中心軸と平行の成分を持つ電界の伝搬である。中心軸に断面積 S_s の試料を装荷すると、試料界面は電界と平行であるから、試料内部に入射された「側壁から中心に向かう波」は試料外部に比較して一

様に伝搬速度が遅くなる。その速度変化は誘電率に基づく。したがって中央部に装荷された物質の内部を伝搬する波動の速度が遅くなれば、波動にとって側壁から中心まで伝搬する時間が長くなるため、距離が「大きくなった」と感じられる。これは物理的な長さは変わらないが、電気的な長さが長くなったことを意味している。共振器が電氣的に大きくなったならば、低周波数側にシフトしなければ共振状態とならない。試料装荷前後の共振周波数の差分を測定することによって物質内の伝搬速度が得られ、これより ϵ_r' が求めるのが摂動法による算定の原理である(式1)。同時に、物質内で波動のエネルギーが損失された場合、損失エネルギー/蓄積エネルギーは $\epsilon_r''/\epsilon_r'=\tan\delta$ となり、 $\tan\delta=1/Q$ より求められる。したがって試料装荷前後の $\tan\delta$ またはQ値の差分を測定することによって物質内の損失速度が得られることから ϵ_r'' が得られる(式2)。ここで α_n は共振器のモードによる定数である。

$$\epsilon_r' = \frac{\pi r_c^2}{\alpha_n S_s} \left(\frac{f_c - f_s}{f_c} \right) + 1 \quad (1)$$

$$\epsilon_r'' = \frac{\pi r_c^2}{2\alpha_n S_s} \left(\frac{1}{Q_s} - \frac{1}{Q_c} \right) \quad (2)$$

誘電体に交流電界を印加した時、誘電体分子が持つ双極子モーメントはその時々電界の方向に配向しようとする。これは誘電体内を荷電粒子が移動するのではなく、双極子が一樣の方向に配向することによって系全体が分極する現象である。双極子を固定長を持った複数の電荷点と見るならば、配向もまた微視的な電荷の移動と考えてもよい。

対して、物質内を荷電粒子(単電荷)が移動できる電氣的導体(導電体)に交流電界を印加した時では、その物質に対して外部から電荷の授受が行われなかった場合、荷電粒子の運動に基づいた系全体の電荷偏在が起こる。この状態は、誘電体における配向と変わらない。言い換えれば、共振器内に電氣的に孤立した状態にある棒状試料に電界を印加することは、誘電体であっても導電体であっても、棒状試料全体では同じく長軸方向に電荷の分離が生じている状態となる。

ここで誘電体と導電体における表記物性値の違いを

考える。電氣的導体の尺度である導電率 σ [S/m]は角周波数 ω [1/s]と誘電率 ϵ [F/m]の積と同単位次元である。よって評価対象が両性質を兼ね備えている場合、電気双極子による ϵ に加えて単電荷による σ/ω も含まれる。液体試料では ϵ は ω の関数であって一定の定数ではないように、 σ/ω は σ が定数であっても ω が大きくなるほど小さくなる。これは周波数が大きくなるほど荷電粒子の往復移動距離が短くなり、電界に対する応答量が小さくなるためと説明できる。したがって図1の空洞共振器の摂動法によって物質の「誘電率」を評価しようとした場合、応答は棒状試料の電荷の分離度合いを測定しているのであって、電気双極子に基づく ϵ のみではなく、単電荷に基づく σ/ω を加算した $(\sigma/\omega)+\epsilon$ を計測している事になる。

一般的な誘電体を装荷した場合、無負荷時よりも長い波長、すなわち低い周波数でなければ共振条件が成立しない。一方で、例えば 1mol/L 塩酸では共振周波数は低周波側にあるが、5mol/L 塩酸では高周波側となる。

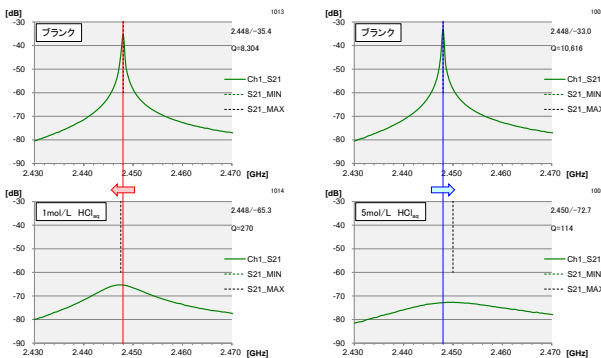


図4 塩酸のTM₀₂₀共振状態

1mol/L塩酸から 5mol/L塩酸への変化は連続的であり、モードの変化が起こったとは考えにくい。これに式 1 を当てはめると、 $f_c \cdot f_s$ が負となるため、算定上は「負の誘電率」を示すことになる。

この応答は $(\sigma/\omega)+\epsilon$ を計測しているのだから、 $(\sigma/\omega)+\epsilon$ が負であるためには少なくとも σ/ω と ϵ の何れかが負でなければならない。これは物質の性質の解釈として正しいのであろうか。応答が棒状試料の電荷の分離度合いを測定しており、電気双極子も単電荷も外場(クーロン力)に対して同じ方向の電氣的応答をしている以上、この値は負になりえないはずである。

5. 誘電率が示す物質の性質

誘電率の正負を議論する前に、そもそも誘電率が何の物理現象を示しているかを改めて考える。誘電率 ϵ [F/m]とは、電界強度 E [V/m]と電束密度 D [C/m²]の関係における比例定数とも解釈できる(式 3)。真空を広義の「物質」と捉えるなら、真空の誘電率を ϵ_0 [F/m]として表現できる。汎用される誘電率とはこの ϵ_0 に対する比を示していることが多いが、狭義では比誘電率 ϵ_r [nd]と記述した方が良い。誘電率の単位は[F/m]だが、比誘電率の単位は無次元(no dimension)である。

$$D = \epsilon E = \epsilon_0 \epsilon_r E \quad (3)$$

確かに誘電率は電界強度と電束密度を変換するための比例定数であるが、それだけでは意味を持たない。そこで他の物理定数との関係を見てみよう。真空中を伝搬する電磁波の速度、すなわち光速 c [m/s]は定義値であって人為的に定めた値であり、誤差を含まない。現時点では 299,792,458[m/s]であり、定義が変わるまでは変わらない。逆に言えば定義が変われば値も変わるが、自然界において速度自体が変わるわけではなく、それをどう数値表現するかが変わるだけである。

同様に、真空の透磁率 μ_0 も定義値である。光速 c が 3×10^8 [m/s]近傍から外れることなく、有効数字だけが変遷してきたのに対し、透磁率は歴史的に大きく変わっている。これは電磁気に関する物理量が、長さ、質量、時間だけのcgs単位系[cm, g, s]では表現できないことに気づき、如何に表現すべきかとの思考の変遷でもある。現在使用されるMKSA単位系[m, kg, s, A]は長さ、質量、時間に加えて電流量を基本単位としている。透磁率 μ [H/m]とは磁界強度 H [A/m]と磁束密度 B [Wb/m²]の関係における比例定数である(式 4)。この関係は電界における関係式 3を磁界に対応させたものと言える。

$$B = \mu H = \mu_0 \mu_r H \quad (4)$$

MKSA単位系における真空の透磁率 μ_0 の定義値は $4\pi \times 10^{-7}$ [H/m]である。光速 c と異なり観測で得られた値ではなく、理論(4π)と実用性(10^{-7})から導かれる。無理数である π を含むことから小数表記では有限の数字で記載できないが、定義としては誤差を含まない。

MKSA単位系によって誘電率、透磁率が電磁気系単

位内の単なる比例定数ではなく、物理的な意味を持つことを明確にすることができる。真空という「物質」を伝搬する電磁波の速度 c は、電界における比例定数である真空の誘電率 ϵ_0 、磁界における比例定数である真空の透磁率 μ_0 に対して式5の関係を持つ。ここで c と μ_0 は定義値であるため、 ϵ_0 はこの2つから誘導された値として組み立てられるが、 μ_0 が無理数であるため、 $8.854\ 187\ 817... \times 10^{-12}$ [F/m]という表記となる。

$$\epsilon_0 \mu_0 = \frac{1}{c^2} \quad (5)$$

式5が示す意味は、「真空の透磁率と誘電率の積は、真空中の電磁波の速度の逆二乗」である。したがってこれを真空以外の物質に置き換えれば、「物質の透磁率と誘電率の積は、物質中の電磁波の速度の逆二乗」となる。物質中の電磁波の速度 v [m/s]は $n=c/v$ で示される屈折率 n を用いれば c で表現できる(式6)。

$$\epsilon \mu = \frac{1}{v^2} = \frac{n^2}{c^2} \quad (6)$$

これをさらに損失を含む一般物質に拡張するならば、「一般物質の複素誘電率と一般物質の複素透磁率の積は、一般物質中の光速度の逆二乗」と表現される。損失は複素誘電率、複素透磁率の虚数項に含まれる。屈折率は複素屈折率 n^* となるが、これは実数項の屈折率 n 、虚数項の吸収率 k からなる(式7)。

$$\epsilon^* \mu^* = \frac{1}{v^{*2}} = \frac{n^{*2}}{c^2} = \frac{(n - jk)^2}{c^2} \quad (7)$$

式7に式5を代入して c を消せば、 ϵ^* 、 μ^* はそれぞれ複素比誘電率 ϵ_r^* 、複素比透磁率 μ_r^* となる(式8)。

$$\epsilon_r^* \mu_r^* = (n - jk)^2 \quad (8)$$

式8は、複素比誘電率と複素比透磁率の積が複素屈折率の二乗であることを示している。すなわち、誘電率を持った材料を装荷することによって生じた伝搬速度の減衰を、共振器が電氣的にどれだけ大きくなったかとして共振周波数測定により関連付けている。

ただし、式(1,2)の算定には大きな仮定的前提が導入されていることに注意しなければならない。磁気双極子を持たない物質は磁界に対して真空と同じ応答をするものとし、 $\mu_r^* = 1 - j0$ を式8に代入して μ_r^* を消す(式9)。

$$\epsilon_r^* = (n - jk)^2 \quad (9)$$

式9を展開し実部と虚部に分けると、実部は $n^2 - k^2$ となる。よって実部が負になる、すなわち共振器に装荷した時に高周波側にシフトする現象は、 $n < k$ の時に起こりうる。実際に図4で示した例では装荷試料の Q 値が極端に減少しており、 k が大きいことが伺える。

一方で、 k が大きいことと、共振周波数がブランクより高周波数側にシフトすること、すなわち共振器が電氣的に小さくなるように見えることは、どのように一致させればよいだろうか。今回の試料はいずれも導電性が高い。印加される外部電界への応答で発生する電流は、装荷試料の外側に磁界を作り出す。発生した磁界は、共振器内の外部磁界を排斥するため、共振条件のための磁界を示すベッセル関数は外に膨らむ。ところが共振器の大きさは不変であるため、共振条件を保つためには波長を短く、すなわちより高周波数でなければ共振が成立しない。これにより共振周波数が高周波側にシフトする理由が説明できる。

6. まとめ

導電性材料は、誘電体よりも大きな電流を残存させるため、磁界の発生が無視できない。外部電界エネルギーを磁界エネルギーに変換してしまう分だけ、電界エネルギーは損失となることから、吸収率 k が大きい材料とみなされる。吸収率 k が大きいことにより $n < k$ となる条件では、 $n^2 - k^2$ が負となるため、「 ϵ_r^* が負のように見える」と考えられる。外部電界エネルギーを磁界エネルギーに変換する「電界の損失」は「磁界への変換」であって「熱的損失」とは限らない。本測定で「 ϵ_r^* が負のように見える」のは磁界の影響を考慮していないため、と考えるべきである。

参考文献

- 1)第5回誘電率透磁率データベース化WG研究会資料、杉山順一、2016。
- 2)“水溶液のマイクロ波迅速濃縮における円筒型オープンへの検討” 杉山他、信学技報、MW2010-161, pp.51-56, 2011。
- 3)“導電率 σ を持つ液体のマイクロ波特性の測定” 杉山他、信学技報 MW2011-40, pp.47-52, 2011。