

## 無線・無電極圧電体共振顕微鏡

## Wireless-electrodeless resonant ultrasound microscopy with an isolated piezoelectric oscillator

村松史雄、荻博次、仁保嘉規、平尾雅彦（阪大、基礎工）

Fumio Muramatsu, Hirotsugu Ogi, Yoshinori Niho, and Masahiko Hirao (Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ.)

## 1. はじめに

我々は試料表面の局所有効ヤング率を非破壊的に測定することを目的として圧電体共振顕微鏡の開発を進めている。自由振動を行っている振動子が試料に接触すると、接触点における試料の弾性定数を反映して振動子の固有振動数が変化する。この原理を利用して接触点における試料の局所弾性定数を測定することが可能である。

試料の局所弾性率の高感度、絶対的評価のためには、振動子は試料以外とは音響的には接触していないことが望まれる。このために二つの工夫を施した。一つ目は振動子に圧電体を使用し、振動の励起と検出を非接触状態で可能にした点である。二つ目は振動子の振動の節を保持することにより保持による接触の影響を軽減した点である。これらの工夫によって、絶対的で高感度な固有振動数の測定に近づいた。

本研究では、振動子として針状のリチウムナイオベート(LiNbO<sub>3</sub>)を用い、適切な固有振動モードの検出と、振動子と試料間の距離による固有振動数の変化を調べ、接触・非接触状態において得られる情報について検討した。

## 2. 測定原理

我々が開発した共振顕微鏡の概略を Fig.1 に示す[1, 2]。ソレノイドコイルの内側に振動子であるリチウムナイオベートを置く。リチウムナイオベートは圧電体であり、コイルに交流電流を流すことで準静的な振動電場を発生させ、これにより非接触で振動を励起することが可能である。更に、

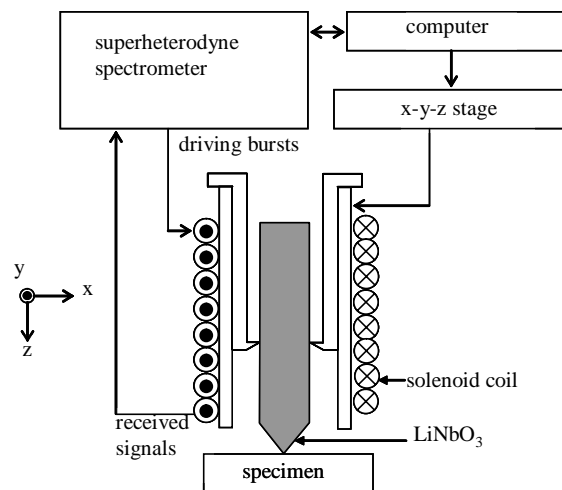


Fig.1 Setup of the wireless-electrodeless resonant ultrasound microscopy with the isolated LiNbO<sub>3</sub> oscillator.

同じコイルが振動振幅の検出も行う。コイルに流す交流電流の周波数をスイープして振幅を測定することにより固有振動数を得る。

## 3. 振動解析

振動子の自由振動のモードは無数に存在する。適切な振動モードの選択は、固有振動数の接触剛性に対する感度を向上させるために重要である。振動子は先端部分において試料と接触するため、その点における  $z$  方向変位が大きいモードほど、面直方向の弾性率に高い感度を示す。このような振動子の設計を行った。設計した振動子の形状と寸法を Fig.2 に、測定した共鳴スペクトルを Fig.3 にそれぞれ示す。Fig.3 において 1.4 MHz 近傍で明確な共鳴ピークが確認された。この固有振動モードの振動解析を有限要素法によって行った。振動変位分布を Fig.4 に示す。白い部分が振動の腹、黒い部分が振動の節である。Fig.4 より、この振動

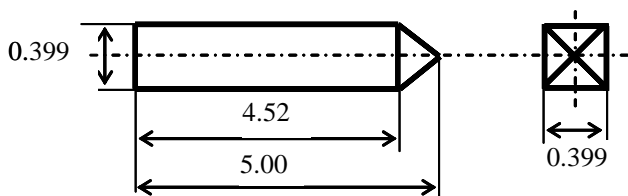


Fig.2 Dimensions of the LiNbO<sub>3</sub> oscillator. The longitudinal direction is along the Z axis of the crystal.

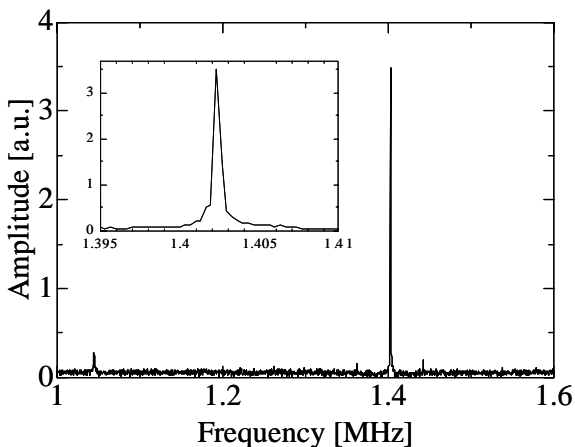


Fig.3 Free vibration resonance spectrum of LiNbO<sub>3</sub> oscillator measured by the solenoid coil.

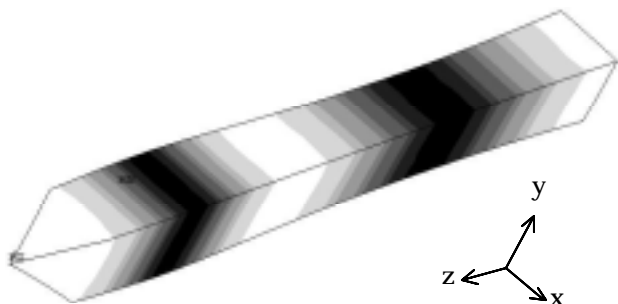


Fig.4 Vibration analysis of LiNbO<sub>3</sub> oscillator.

モードは先端が z 軸方向に大きく振動し、面外方向の弾性率を測定する振動子として適当である。(FEM により計算した共振周波数は測定値と 0.3% 以下の差異により一致した。) 側面に存在する振動の節を保持することにより、保持による接触が与える影響を軽減した (Fig.1)。

#### 4. 結果と考察

振動子が試料に接触すると、振動子の固有振動数が増加することは知られている。しかし、リチ

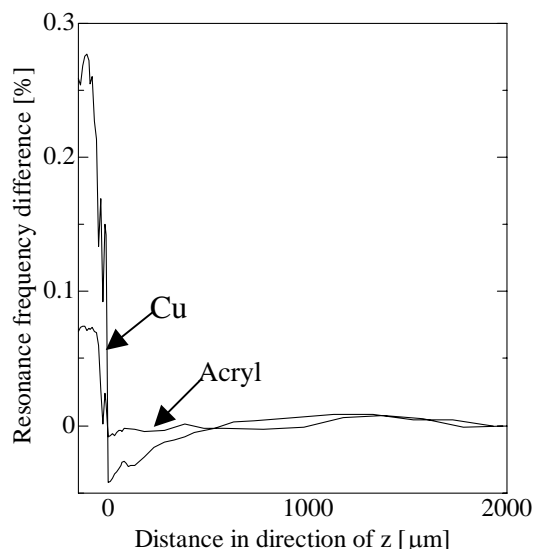


Fig.5 Resonance frequency shift of LiNbO<sub>3</sub> oscillator versus distance between oscillator and samples. Samples are acryl and copper.

ウムナイオバートのような強誘電体の固有振動数は電氣的境界条件にも強く依存するため、試料との機械的な接触がなくても、振動子 - 試料間の距離が小さくなるにつれて試料の局所的な誘電率等の影響をうけて変化し得る。Fig.5 は、純銅とアクリルに対して観測された固有振動数の振動子 - 試料間距離への依存性である。接触によって固有振動数が急激に上昇し、増加量が接触物質の弾性定数に依存することから、接触測定により局所弾性定数を評価することが可能である。更に、試料が純銅のとき、試料 - 振動子間隔が 0-500 μm の領域において固有振動数が低下する現象が確認された。つまり、振動子を接触させない場合、弾性定数とは異なる情報を得ることも可能である。今後は、固有振動数の変化から試料の有効ヤング率を絶対的に求める手法を確立し、また、試料接触させない場合の試料の局所領域の電氣的情報を評価する。

#### 参考文献

1. H. Ogi, J. Tian, T. Tada, and M. Hirao, Appl. Phys. Lett., **83**, 464 (2003).
2. J. Tian, H. Ogi, and M. Hirao, J. Appl. Phys., **95**, 8366 (2004).

## 周波数分散を用いた球状弾性表面波素子の 温度補償方法

### Temperature compensation method of ball SAW device using frequency dispersion

◎中務琢也<sup>1</sup>, 赤尾慎吾<sup>1</sup>, 大木恒郎<sup>1</sup>, 中曾教尊<sup>1</sup>, 山中一司<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>凸版印刷, <sup>2</sup>東北大院・工)

Takuya Nakatsukasa<sup>1</sup>, Shingo Akao<sup>1</sup>, Tsuneo Ogi<sup>1</sup>, Noritaka Nakaso<sup>1</sup> and Kazushi Yamanaka<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>Toppan Printing, <sup>2</sup>Tohoku Univ.)

#### 1. はじめに

我々は球状の圧電材料の表面にすだれ状電極を形成した球状弾性表面波素子(ボール SAW デバイス)を提案し研究、開発を行っている。ボール SAW デバイスは球上の限定された経路に SAW を多重周回させることにより非常に高精度に伝搬速度変化を検出できるセンサーとなる。これまでに感応膜として表面にパラジウム薄膜を形成することにより 10ppm から 100%という広い濃度レンジをカバーする水素センサーへの応用を報告してきた[1]。

しかしながらボール SAW デバイスにおいては SAW の周回時間は温度に依存する。水晶の Z 軸シリンダーの場合、約-25ppm/°Cの温度依存性を持ち、センサー応用上この温度による効果と表面の感応膜の質量負荷や弾性の変化を分離する必要がある。これまでに熱電対などの温度計を用いて温度を測定しながら補償する手法[1]や測定用と温度校正用の 2 つのボール SAW デバイスを用いる手法[2]などで温度の影響を除去してきた。しかしながらこれらの手法には温度計の測定限界や二つのボール SAW デバイス間の温度のずれなどの問題が存在する。そこで一つのボール SAW デバイスの一つの伝搬経路で温度および質量負荷効果の両方を測定するために本研究では複数の周波数の SAW を用いる手法を開発したので報告する。

#### 2. 原理

ボール SAW デバイスにおいて周回時間は温度と表面の質量付加効果の依存性を持ち、1 次の近似として

$$\Delta t = A\Delta T + Bf\Delta m \quad (1)$$

と表すことができる。ここで  $\Delta t$  は周回時間の変化(ppm)、 $A$  は温度 1°Cあたりの依存性(ppm)、 $\Delta T$  は変化した温度(°C)、 $B$  は単位質量密度(1ng/cm<sup>2</sup>)あたりの質量負荷依存性、 $\Delta m$  は表面に付着した質量、 $f$  は SAW の周波数である。

この式は温度による変化は SAW の周波数に依存しないが質量負荷効果は周波数に依存し、周波数の高いほど質量負荷効果が大きいことを表す。いま二つの異なる周波数  $f_1, f_2$  とその周回時間の変化  $\Delta t_1, \Delta t_2$  を Eq.(1)に代入して辺々引き算し整理すると

$$\Delta m = \frac{\Delta t_1 - \Delta t_2}{B(f_1 - f_2)} \quad (2)$$

となり温度変化  $\Delta T$  の含まれない式となる。すなわち温度変化による遅延時間に関係なく質量負荷効果による遅延時間を測定することができると考えられる。

#### 3. 実験方法

Fig.1 に実験の概略図を示す。直径 1cm の水晶球上に 20MHz および 45MHz のすだれ状電極を形成したボール SAW デバイスを作製した。このボール SAW デバイスを断熱材でできた容器の中に設置し、任意波形発生装置(Tektronix AWG710B)を用いて 20MHz および 45MHz のバースト信号を交互に入力することにより駆動した。ボール SAW デバイスからの信号はデジタルオシロスコープ(Tektronix TDS7404B)を用いて観測した。遅延時間は観測された波形に対して離散フーリエ変換を行い 20MHz および 45MHz の成分の位相の変化から求めた。清浄な表面のボール SAW デバイスと表面にアルブミ

-----  
[takuva.nakatsukasa@toppan.co.jp](mailto:takuva.nakatsukasa@toppan.co.jp)

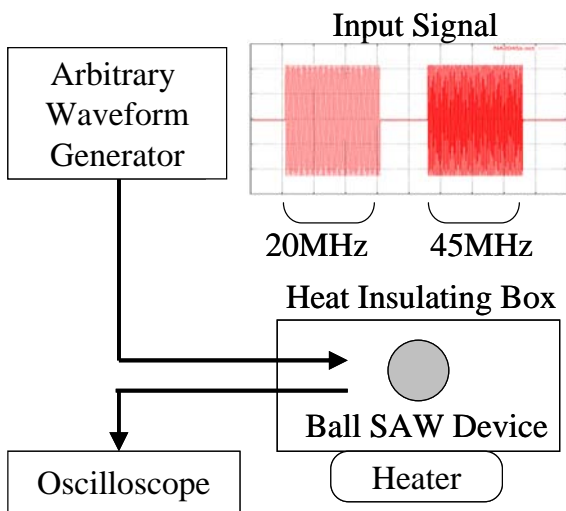


Fig. 1 Schematic diagram of the measurement system of the ball SAW device.

ン膜を形成したもののそれぞれについて断熱容器の外側から $\sim$ °C/hr の速度で加熱することにより温度を変化させながら測定を行った。

#### 4. 結果と議論

Fig.2 に観測された遅延時間の変化を示す。温度が高くなるにしたがって周回時間が短くなっていく様子がわかる。ここで、清浄な表面の場合には 20MHz の SAW と 45MHz の SAW の周回時間の変化がほぼ完全に一致しているのに対し、アルブミン膜を形成した場合に 20MHz の SAW と 45MHz の SAW とともに清浄な表面の場合よりも周回時間が長く、また 20MHz の SAW よりも 45MHz の SAW のほうが長かった。これはアルブミン膜により SAW の音速が遅くなり、周波数の高い SAW ほど質量負荷効果が大きいためと考えられる。

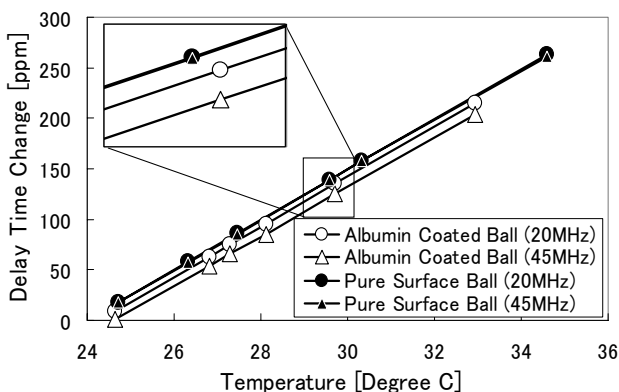


Fig. 2 Characteristics of change of the roundtrip time of 20MHz SAW and 45MHz SAW.

また、この結果から Eq.(2)を用いて質量負荷効果のみを温度変化から分離した値を Fig.3 に示す。清浄な表面の場合には質量負荷効果が温度によらず約 0ppm であるのに対し、アルブミン膜を形成した場合には -9ppm 程度になっている事がわかる。2ppm 程度の誤差はあるものの明らかにアルブミンの有無を判定できた。Fig.2 と比較すると温度が約 10°C 変化したことによる 200ppm 以上の変化の中から 9ppm の質量負荷効果を分離できたことになり、提案した手法の有用性を示すことができたといえる。

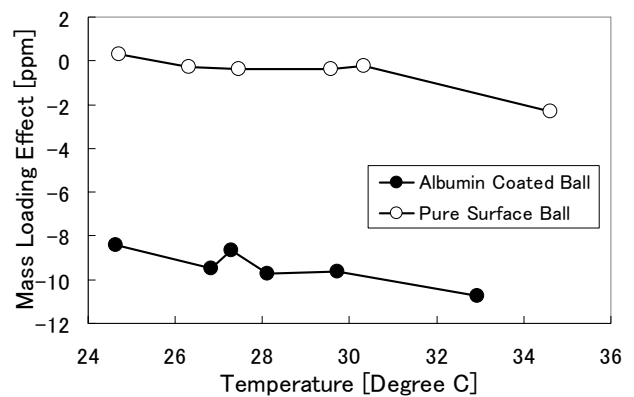


Fig. 3 Change of the roundtrip time of mass loading effect calculated from eq.1.

#### 5. 結論

複数の周波数の SAW を用いてそれぞれの SAW の遅延時間を観測を行い、質量負荷効果に対する SAW の周波数分散を利用して温度の変化による 200ppm の変化の中から約 9ppm の質量負荷効果を 2ppm 程度の誤差で検出することができた。

今後、Fig.3 において温度が上がるにつれて緩やかに質量負荷効果に変化して見える現象について、Eq.(1)において無視していた 2 次以上の項の影響などについても検討していきたい。

#### 謝辞

本研究の一部は文部科学省科学技術振興調整費によって実施された。

#### 引用文献

1. K. Yamanaka, S. Ishikawa, N. Nakaso, N. Takeda, T. Mihara and Y. Tsukahara :Proc. 2003 IEEE Ultrason. Symp. 299 (2004)
2. 大木恒郎, 赤尾慎吾, 中曾教尊, 塚原祐輔, 山中一司:第 52 回応用物理学関連連合講演会講演予稿集, p.1738 (2005).

# LFB 超音波材料解析システムによる TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub> 超低膨張ガラスに対する漏洩弾性表面波速度の高精度測定

Accurate measurement of leaky surface acoustic wave velocity for TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub> ultra-low expansion glasses by the LFB ultrasonic material characterization system

◎大橋雄二、荒川元孝、櫛引淳一（東北大院・工）

Yuji Ohashi, Mototaka Arakawa, and Jun-ichi Kushibiki (Grad. Sch. Eng., Tohoku Univ.)

## 1. まえがき

筆者らは、極端紫外線リソグラフィ(EUVL)システム用超低膨張ガラスに対する線膨張係数(CTE)の新しい評価技術として、直線集束ビーム超音波材料解析(LFB-UMC)システム[1]を提案している。EUVL用超低膨張ガラスのCTEに対する要求は非常に厳しく、例えば、所望の温度範囲において±5 ppb/K以内である[2]。これまで、超低膨張ガラスの一つであるTiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub>ガラスに対する調査の結果、LFB-UMCシステムにより測定される漏洩弾性表面波(LSAW)速度( $V_{LSAW}$ )によるCTEの感度と分解能は、4.40 (ppb/K)/(m/s)、 $\pm 2\sigma = \pm 0.77$  ppb/K( $\sigma$ : 標準偏差)であり、従来の評価技術に比べ高い分解能を有することを明らかにした[3]。しかし、TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub>ガラスに対する $V_{LSAW}$ 測定精度は単結晶材料( $\pm 2\sigma = \pm 0.0013\%$ )に比べて低下する傾向がある。この要因を明らかにするとともに、EUVL用途の超低膨張ガラスの開発・品質管理へ本技術を適用するための更なる高精度化を実現することが望まれる。

本報では、より信頼性の高いCTE評価を行うために、TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub>ガラス標準試料(C-7972, Cornig社製)[4]を取り上げて測定値の高精度化の検討を行う。

## 2. 理論的検討

Fig. 1は、LFB超音波デバイスと試料系の断面図である。 $V(z)$ 曲線は、LFB超音波デバイスと試料間の相対距離 $z$ を近づける方向に変化(デフォーカス)させたときに得られるトランスジューサ出力である。Fig. 2(a)は225 MHzにおいてC-7972に対して測定した $V(z)$ 曲線の例である。Fig. 2(b)は $V(z)$ 曲線解析法[1]に従って抽出した干渉成分 $V_1(z)$ である。FFT解析を用いて $V_1(z)$ 曲線に対する干渉周期 $\Delta z$ を求めて、次式より $V_{LSAW}$ を得る。

$$V_{LSAW} = \frac{V_w}{\sqrt{1 - \left(1 - \frac{V_w}{2f\Delta z}\right)^2}} \quad (1)$$

$V_w$ は水中の縦波音速、 $f$ は超音波周波数である。

C-7972に対する $V_1(z)$ 曲線の波形減衰率 $\alpha_0$ は単結晶材料に比べて大きい。解析に必要な干渉波形が十分に得られず、 $V_{LSAW}$ の測定精度が低くなると考えられる。 $\alpha_0$ は、試料表面粗さに起因する散乱、試料内部構造に起因する散乱などによる減衰が無いものと仮定すると次式で表される。

ohashi@ecei.tohoku.ac.jp

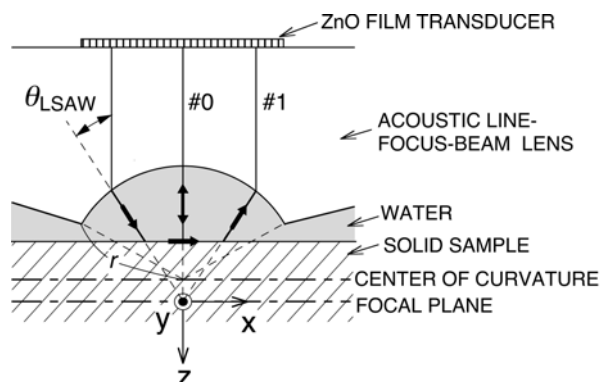


Fig. 1 Cross-sectional view of the LFB ultrasonic device and specimen system.

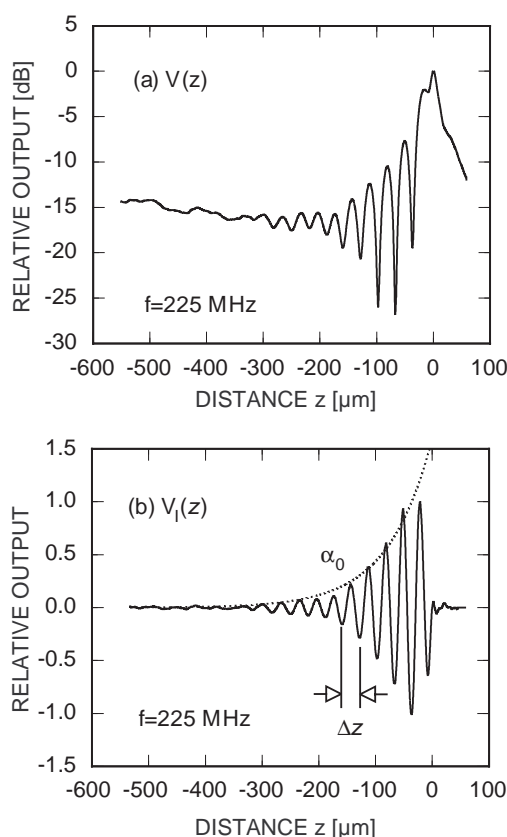


Fig. 2 A typical  $V(z)$  curve measured for C-7972 standard specimen at 225 MHz and interference waveform of  $V_1(z)$  curve extracted from the  $V(z)$  curve.

$$\alpha_0 = \frac{4\pi}{V_{LSAW}} \tan\theta_{LSAW} \alpha_{wL} \cdot f + 2 \tan\theta_{LSAW} \alpha_{s0} \cdot f^\beta - \frac{2\alpha_{w0}}{\cos\theta_{LSAW}} \cdot f^2 \quad (2)$$

ここで、 $\alpha_{wL}$ はLSAW伝搬における水の負荷効果による水中への縦波の放射減衰、 $\alpha_{s0}$ は $f^\beta$ で規格化し

た固体中の横波の減衰、 $\alpha_{w0}$  は  $f^2$  で規格化した水中の縦波の減衰、 $\theta_{LSAW}$  は LSAW の臨界角であり、 $\theta_{LSAW} = \sin^{-1}(V_w/V_{LSAW})$  で与えられる。ただし、Rayleigh タイプの LSAW の粒子変位成分は横波成分が主であり、縦波よりも横波に対する減衰が大きいことから、LSAW の固体中の音波の吸収による減衰を横波の減衰と等しいと仮定している。(2)式の右辺第3項は、水中での縦波の減衰に関与した項で、試料面が音響レンズの焦点面より近づくことで水中の縦波の減衰量が減少するために負の符号となっている。C-7972 に対して(2)式の右辺の各項とそれらの和である $\alpha_0$ を計算した結果を Fig. 3 に示す。この結果から、 $\alpha_0$  は(2)式の第1項による減衰が支配的要因であることがわかる。また、より低い周波数を用いることで $\alpha_0$  を小さくできるので、干渉波形の存在する区間を広げることができ、測定精度の向上が期待されることがわかる。

### 3. 実験的検討

通常用いている 200 MHz 帯の LFB 超音波デバイス A(開口半径  $r=1.0$  mm、最大デフォーカス距離  $d=560$   $\mu\text{m}$ )と、高精度測定が期待される LFB 超音波デバイス B( $r=2.0$  mm、 $d=1160$   $\mu\text{m}$ )の2種類をとりあげる。使用周波数をデバイス A は 225 MHz、デバイス B は 75 MHz として  $V_{LSAW}$  の測定を行う。

文献[4]の検討結果より、C-7972 標準試料は、脈理面に垂直に切り出した基板とし、脈理面に平行な伝搬方向の  $V_{LSAW}$  を計測する。デバイス A で得られた  $V_1(z)$  曲線の例を Fig. 2(b)、デバイス B で得られた  $V_1(z)$  曲線を Fig. 4 に示す。Fig. 2(b)の  $V_1(z)$  曲線において、解析に利用できる干渉波形がデフォーカス距離-281  $\mu\text{m}$  までしか存在していないのに対し、Fig. 4 の  $V_1(z)$  曲線のそれは-745  $\mu\text{m}$  まで伸びている。各デバイスを用いて、C-7972 標準試料に対する  $V_{LSAW}$  の 200 回の測定再現性を調べた。その結果、デバイス A(225 MHz)では $\pm 2\sigma = \pm 0.0053\%$ であったのに対し、デバイス B(75 MHz)では $\pm 2\sigma = \pm 0.0020\%$ となり、測定精度が向上した。

Fig. 5 は、各デバイスで C-7972 標準試料に対し、測定位置の中心点を 1 mm $\times$ 1 mm の範囲で 0.1 mm ずつ移動して  $V_{LSAW}$  の 2次元分布を測定した結果である。標準試料の基準値を決定するための測定位置が、試料面内で $\pm 0.2$  mm 以内、試料面内の回転方向で $\pm 10^\circ$ 以内でずれる場合、基準値の精度は、デバイス A に対して  $3308.15 \pm 0.35$  m/s ( $\pm 0.0105\%$ )以内だったものが、デバイス B では  $3308.17 \pm 0.16$  m/s ( $\pm 0.0047\%$ )以内に改善できた。

### 4. あとがき

LFB-UMC システム用の  $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$  超低膨張ガラス標準試料を取り上げて LSAW 速度の測定精度について検討し、より低い周波数を用いて  $V(z)$  曲線の波形減衰率を小さくして、デフォーカス距離が長くとれる開口半径の大きい LFB 超音波デバイスを用いることで、測定精度を向上できることを実証した。

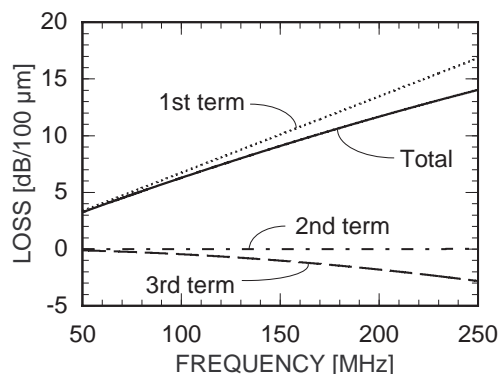


Fig. 3 Frequency dependences of waveform attenuation factor  $\alpha_0$  and each term of equation (2).

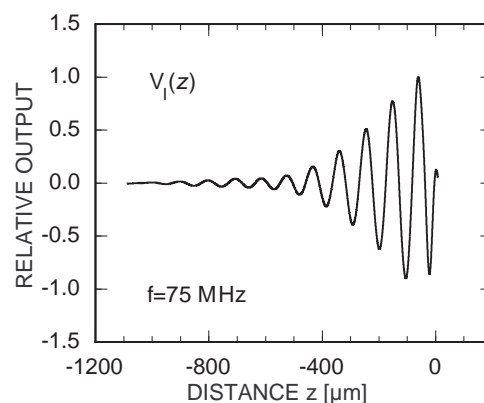


Fig. 4 Interference waveform of  $V_1(z)$  curve obtained for C-7972 standard specimen at 75 MHz.

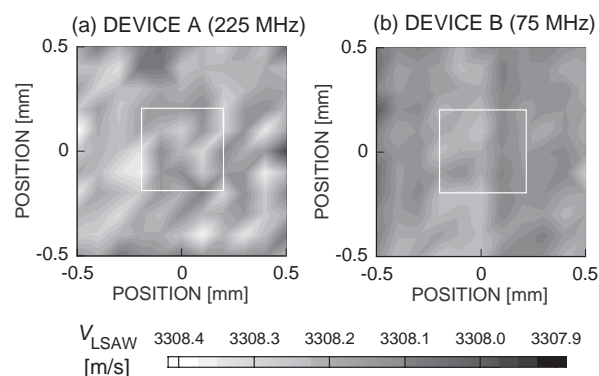


Fig. 5 LSAW velocity distributions measured for C-7972 standard specimen.

**謝辞** 本研究の一部は文部科学省による 21 世紀 COE(Center of Excellence)プログラムの研究助成金の補助による。

### 参考文献

- [1] J. Kushibiki and N. Chubachi, IEEE Trans. Sonics Ultrason., SU-32 (1985) 189.
- [2] K. E. Hrdina et al., Proc. SPIE, Emerging Lithographic Technologies VII, 5037 (2003) 227.
- [3] J. Kushibiki et al., Jpn. J. Appl. Phys., 44(6B) (2005) 4374.
- [4] 櫛引他, 信学技報, US-2005-4 (2005) 19.

# 温度無依存型波長分割多重 FBG 振動センサアレイ

## Temperature Independent FBG Vibration Sensor Array Based on Wavelength Division Multiplexing

○田中哲、横須賀泰輝、稲本清之、高橋信明（防衛大 通信）  
Satoshi Tanaka, Hiroki Yokosuka, Kiyoyuki Inamoto and Nobuaki Takahashi  
(Department of Communications Engineering, National Defense Academy)

### 1. はじめに

近年、光ファイバブラッググレーティング (FBG) のセンサへの応用が活発化しており、各種の FBG センサが提案されている。これまで、我々は、強度変調方式による FBG 固体振動センサや水中音響センサの温度安定化およびアレイ化を提案してきた<sup>1-3)</sup>。本研究では、波長分割多重方式によって温度安定化 FBG 振動センサアレイを構成し、その動作確認を行うとともに、実用的なセンサ応用の例として、金属棒における振動伝搬の計測を試みたので報告する。

### 2. センサの動作原理

強度変調方式に基づいた温度安定化振動センサアレイの模式図を Fig.1 に示す。光源に ASE からの広帯域光を用いて、これを光サーキュレータを介して光源用 FBG ( $FBG_L^{(1)}$ 、 $FBG_L^{(2)}$ ) に入射させる。 $FBG_L^{(1)}$  および  $FBG_L^{(2)}$  には反射スペクトルが狭帯域のものを使用し、Fig.2 に示したように、これらのブラッグ波長 (反射ピーク波長) はそれぞれ、センサ用  $FBG_S$  ( $FBG_S^{(1)}$ 、 $FBG_S^{(2)}$ ) の反射スペクトルの傾斜部に設定されている。したがって、これらの狭帯域光は、 $FBG_S^{(1)}$  および  $FBG_S^{(2)}$  によって一部が反射され、光検出器 PD<sub>1</sub> および PD<sub>2</sub> において、それぞれ同時に検出される。ここで、振動がセンサ用 FBG に印加されると振動に応じた

センサ出力がそれぞれ得られる。また、センサ用 FBG に温度変化が加えられると、センサ出力が温度によっても変動することになるが、この影響はセンサ用 FBG と光源用 FBG を接近させて、これらの FBG に温度変動が共通に加わるように配置すると相殺される。

### 3. 実験

実験では、センサアレイの動作確認を行うとともに、振動計測への応用例として長さ 3.0 m 直径 2.0 cm 真鍮製の棒を伝搬する振動の計測を行った。衝撃を加えて振動を伝搬させる際には、棒に対して横方向および軸 (縦) 方向から衝撃を加えて、金属棒に撓みモードおよび伸縮モードの振動を誘起する。振動によって生ずる歪は、センサ 1 および 2 により、同時に検出される。また、衝撃の印加条件を一定に保つことが困難であったため、衝撃印加時において、ハンマと金属棒の接触回数が 1 回かつ接触時間が 250  $\mu$ s 以下の場合で、センサ部位に生じた歪の最大値が 150  $\mu$ strain ( $10^{-6}$ ) 以上であったものを記録として解析した。

### 4. 実験結果および考察

振動の測定例として、センサ 1 で得られた歪波形を Fig.3 に示す。図において、(a) および (b) は棒に対して横および縦 (軸) 方向から衝撃を加えて

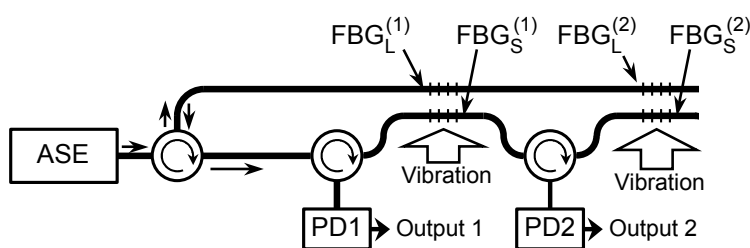


Fig.1. Schematic view of sensor configuration.

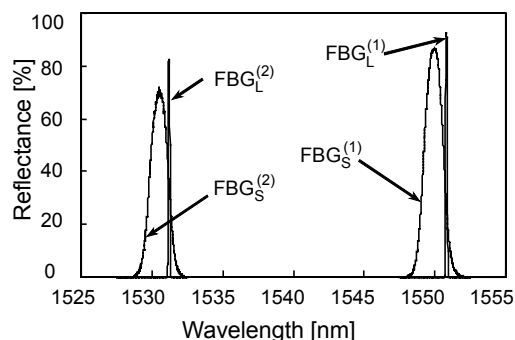


Fig.2. Reflection spectra of FBGs used.

得た結果である。なお衝撃を加えた時刻を 0 としている。Fig.3 (a)では衝撃を加えた後、約 1.0 ms 後に振動が到達し、伸びおよび圧縮歪が交互に繰り返され、次第に振幅が大きくなっている様子が示されている。Fig.3 (b)では、0.8 ms 後にパルス状の圧縮歪が検出された後、伸び歪が到達していることが分かる。Fig.4 に 2 つのセンサの間隔  $\Delta L$  を変えて、センサ間の振動到達の時間差  $\Delta T$  を測定した結果を示す。図において、(a)および(b)はそれぞれ横および縦方向から加えた衝撃について得られた結果である。これらの結果から振動の伝搬速度が、それぞれ  $1.82 \pm 0.06$  km/s、 $3.02 \pm 0.03$  km/s と見積もられた。

振動伝搬測定によって得られた歪振動の様子および伝搬速度の差から、横および縦方向から衝撃を加えた場合、横波および縦波の伝搬が支配的であると考えられる。また、Fig.3(a)において(b)と比べてデータのばらつきが大きいのは、振動の初期において、歪の振幅が小さく、到達時間の決定のさいに誤差を含むためと考えられる。

## 5. まとめ

本研究では、広帯域インコヒーレント光と光源用およびセンサ用の 2 種類の FBG を用いて波長分割多重型の温度安定化振動センサアレイを構成した。実験ではセンサアレイの動作確認を行うとともに、センサの応用例として金属棒の振動伝搬の計測を行った。振動伝搬の計測を行った結果、FBG センサにより固体中の振動の伝わる速さや振動による歪の波形を計測することができた。今回 2 つのセンサを多重化してセンサアレイを構成したが、さらに多くのセンサをアレイ化することで、振動モード等の計測へも応用可能であると考えられる。

## 参考文献

1. N. Takahashi, K. Yoshimura and S. Takahashi: Jpn. J. Appl. Phys. **39** (2000) 3134.
2. N. Takahashi, W. Thongnum, T. Ogawa, S. Tanaka and S. Takahashi: Opt. Rev. **10** (2003) 106.
3. S. Tanaka, T. Ogawa, W. Thongnum and N. Takahashi: Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) 3060.

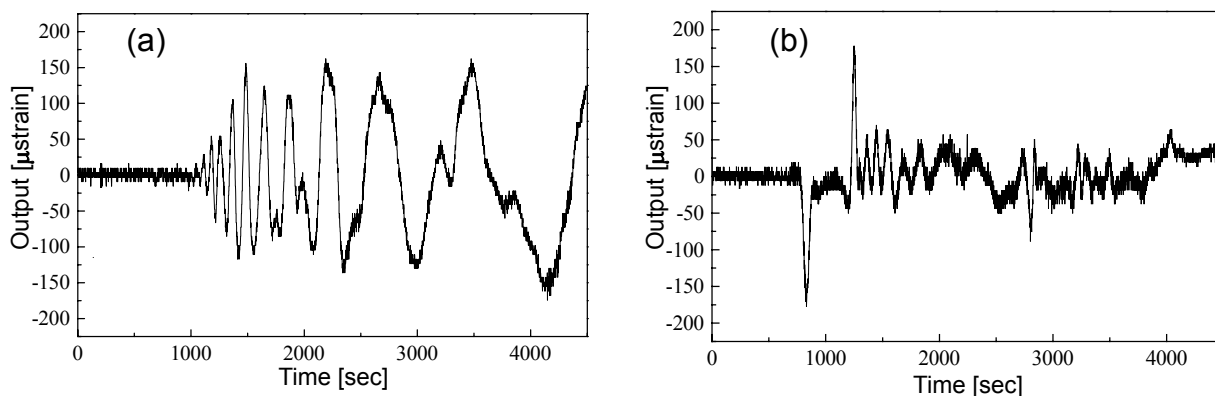


Fig.3. Sensor outputs obtained from PD1.

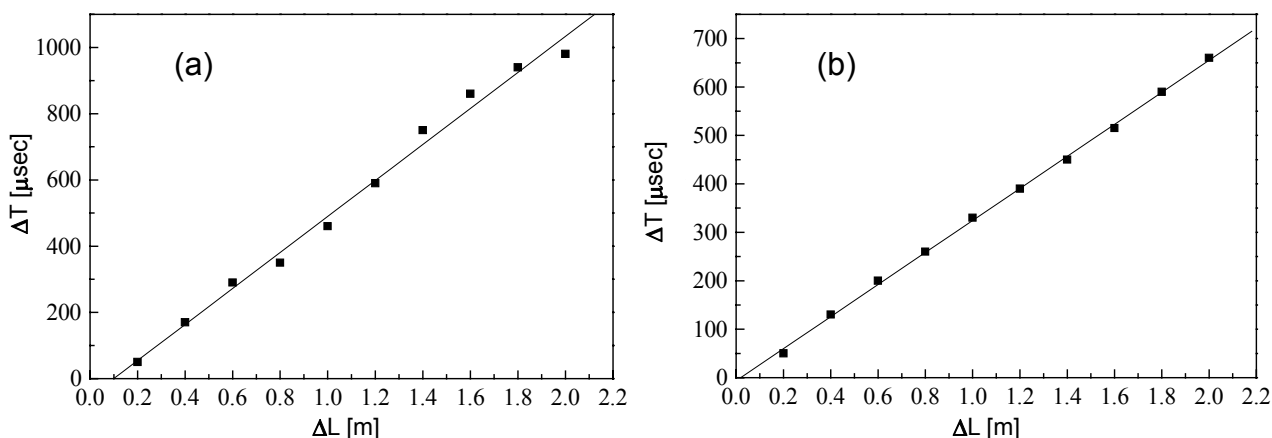


Fig.4. Difference of arrival time of vibration at sensors 1 and 2 ( $\Delta T$ ) vs. distance between sensors 1 and 2 ( $\Delta L$ ).

## CdSe 量子ドットを吸着した TiO<sub>2</sub> ナノチューブ・ナノワイヤー複合電極の光音響評価と光電気化学特性

Photoacoustic and Photoelectrochemical Characterization of TiO<sub>2</sub> Nanotube and Nanowire Composite Electrodes Sensitized with CdSe Quantum Dots.

○山本 佳奈<sup>1)</sup>、沈 青<sup>1,2)</sup>、豊田 太郎<sup>1,2)</sup> (電通大 量子・物質工<sup>1)</sup>、コヒーレント光科学専攻<sup>2)</sup>)  
Kana Yamamoto,<sup>1)</sup> Qing Shen,<sup>1,2)</sup> Taro Toyoda<sup>1,2)</sup>  
(Dept. Appl. Phys. & Chem.,<sup>1)</sup> Course of Coherent Opt. Sci.,<sup>2)</sup> Univ. Electro-Commun.)

### 1. はじめに

21 世紀において、地球に埋蔵されているエネルギーの枯渇問題やそれに伴う環境問題を解決すべく、光電変換素子である太陽電池の開発が盛んに行われている。シリコン系太陽電池の低価格化計画が進められる一方、それに代わる安価な太陽電池としてナノサイズ TiO<sub>2</sub> 膜に色素吸着をした色素増感太陽電池が注目されており、高い変換効率が期待されている<sup>1)</sup>。また、Grätzel 型太陽電池(増感剤として Ru 色素を使用)の様に TiO<sub>2</sub> ナノ粒子を用いる方法とは別に、ナノ粒子とは形状の異なる TiO<sub>2</sub> ナノチューブを用いた太陽電池が報告された。TiO<sub>2</sub> ナノ粒子に比べ、短絡電流の増加することが報告されている<sup>2)</sup>。これは、ナノチューブの 2 次元的構造による、電気伝導性の向上や表面欠陥の減少が理由だと考えられている。しかし、TiO<sub>2</sub> ナノチューブ電極内での電子移動、色素界面での電子移動のメカニズムは十分に解明されていない。

本研究では、色素増感太陽電池における有機色素の代わりに、CdSe 量子ドットを増感剤として TiO<sub>2</sub> ナノチューブ電極に吸着させた系<sup>3)</sup>を対象に、変換効率の向上を目的として光吸収や電子移動過程に及ぼす影響について研究を行った。無機物半導体量子ドットの特色として、有機色素と比べ、粒径を制御して光吸収領域を変える事が出来る、光吸収係数が大きい、電荷分離が大きい、という事が挙げられる。光吸収の評価には、光音響(Photoacoustic:PA)分光法を適用した<sup>4)</sup>。PA 法は、無輻射遷移を測定するため、光散乱の大きな試料に対しても光吸収情報を得ることができる。また、電子移動に関して、入射した光子数に対する発生電子数の割合を示す量子効率(Incident photon to current conversion efficiency:IPCE)の測定を行った。

### 2. 実験法

試料作製として、オルトチタン酸テトライソプロピル(TIPT)0.1mol とアセチルアセトン(ACA)0.1mol を混合し、さらにその混合溶液を n-ドデシルアミン塩酸塩(LAHC)0.1M と混合した。40℃で混合溶液が透明になるまで攪拌し、続いて 80℃、72 時間熱反応させた。その後、混合溶液中に 2-イソプロパノールを加え遠心分離し、その後ゲル状になった溶液を FTO 上に塗布し、450℃で 30 分間熱処理を行った<sup>2)</sup>。さらに増感剤として CdSe 量子ドットを任意時間吸着させ、粒径のコントロールを図った<sup>5)</sup>。

PA 測定は、通常のマイクロフォン法を適用した<sup>4)</sup>。光源には 300W のキセノンランプを使用し、分光器を通して単色化された光はメカニカルチョッパーにより強度変調され、密封された PA セル中の試料に照射した。マイクロフォンで検出された信号は、プリアンプで増幅された後、2 位相ロックインアンプに入力し検出を行った。測定波長範囲は 270 ~ 800nm、変調周波数は 33Hz である。光源強度の補正にはカーボンブラック試料の PA 信号を用いた。

IPCE 測定は、直流光を試料に照射し、無抵抗電流計で値を検出した。PA セルの代わりに石英ガラス製のセルを用い、電解質溶液として 1M の KCl 水溶液と 0.1M の Na<sub>2</sub>S 水溶液による混合溶液を適用した。対極には Pt 電極を用いて短絡電流を測定した<sup>6)</sup>。今回入射光子数は 488nm での光強度をパワーメーターによって測定し、カーボンの光音響スペクトル強度比から、各波長での光強度を算出した。

### 3. 結果と考察

Fig. 1 に試料の TEM(透過型電子顕微鏡)観察結果を示す。上部は試料表面の端部で観察した像であり、中空のナノチューブ(長さは数 10nm から 100nm まで、直径は約 10nm)が観察された。下部は試料表面の中心部で観察した像であり、長さが数 nm

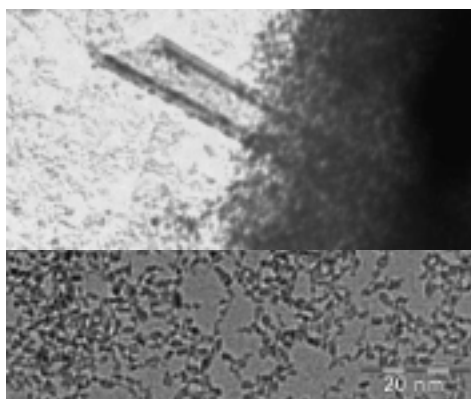


Fig.1 TEM image of TiO<sub>2</sub> nanotube.

のナノワイヤが互いに入り組んでネットワークを構成していることがわかる。

Fig. 2 に、TiO<sub>2</sub> ナノチューブ電極における CdSe の吸着時間をパラメーターとした PA スペクトルを示す。吸着をしない状態において、アナターゼ型 TiO<sub>2</sub> ナノ粒子系と同様の PA スペクトルが得られた。吸着時間の増加と共に立ち上がり位置が低エネルギー側にシフトし、バルク CdSe のバンドギャップである 1.75eV に近づくことが分かる。これは、CdSe 吸着時間の増加と共に、CdSe 量子ドットの HOMO-LUMO 遷移が変化していると考えられる。PA スペクトルの肩部は量子閉じ込め効果に基づく CdSe 系の第一励起エネルギーに対応すると考えられる。有効質量近似法を用いて CdSe 量子ドットの粒径を求めた。CdSe 量子ドットの吸着時間が 10~48h のものに対して、4.7~6.2nm と増加することが分かった。ここで、CdSe のボーア半径は 5.6nm であるので、この系において量子サイズ効果が出現していると考えられる。

Fig. 3 に、CdSe の吸着時間をパラメーターとした IPCE 値を示す。CdSe の吸着時間を増加させると共に、スペクトルの立ち上がりが低エネルギー側にシフトし、可視光領域まで広がりが見られる。これは、CdSe が可視光領域の光を吸収し、TiO<sub>2</sub> の伝導帯へ電子が注入される(分光増感)と考えられる。CdSe の吸着時間が増加することによって、CdSe 量子ドットの粒径が大きくなり、分光増感の機能が向上している事がわかる。この結果を同一条件で測定したナノ粒子系と比較すると、吸着なしの状態(TiO<sub>2</sub> の光吸収領域)では、ナノチューブ系の方が高い量子効率が見られる。一方、吸着後の低エネルギー側での電流値は、ナノ粒子系に比べて低い。さらに、ナノチューブ系では 48h 吸着でまだ飽和していない事がわかる。これは、ナノ粒子に比べナノチューブの表面多孔度が低く、吸着による影響が弱い為だと考えられる。今後は、吸着の最適時間と温度、それらに伴うナノチューブ形状に関して検討を行う予定である。

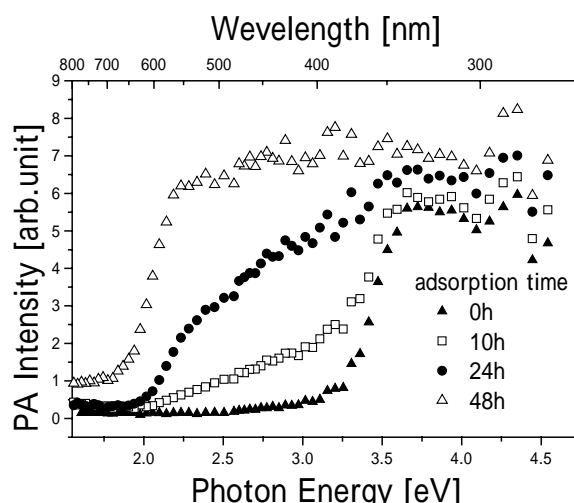


Fig.2 PA spectra of TiO<sub>2</sub> nanotube electrodes with different CdSe adsorption time.

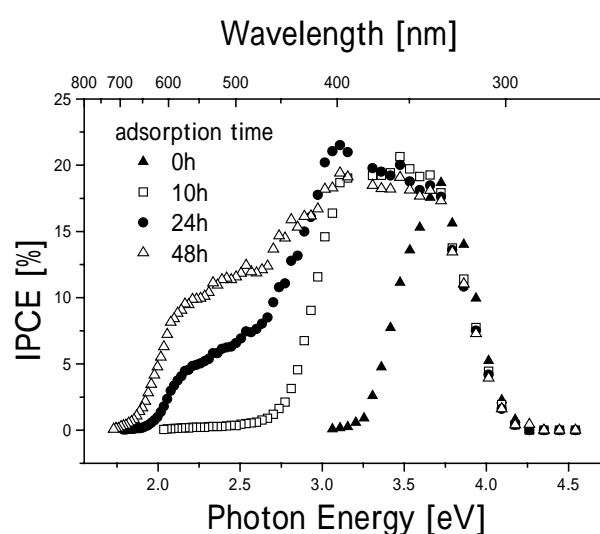


Fig.3 IPCE spectra of TiO<sub>2</sub> nanotube electrodes with different CdSe adsorption time.

## 謝辞

本研究の一部は文部省科学研究費補助金 (No. 14750645, No. 15510098)および特定領域研究(417) (No. 15033224)の援助を得て行われました。

## 引用文献

- 1) B. O'Regan, M. Grätzel: Nature. **353** (1991) 737.
- 2) M. Adachi, Y. Murata, I. Okada, and S. Yoshikawa: J. Electrochem. Soc., **150** (2003) 488.
- 3) Q. Shen and T. Toyoda, J. Photochem. Photobiol. A: Chem. **164** (2004) 75.
- 4) A. Rosencwaig and A. Gersho: J. Appl. Phys. **47** (1976) 64.
- 5) S. Gorer and G. Hodes: J. Phys. Chem. **98** (1994) 5338.
- 6) R. Vogel, K. Pohl and H. Weller: Chem. Phys. Lett. **174** (1990) 241.

## 多色光励起による単一分子からの音波発生 of 増強 Enhanced Photoacoustic Emission from Single Molecules under Multi-Color Excitation

○平島 諭、原田 明 (九大院 総理工)

Satoshi Hirashima, Akira Harata (Univ. Kyushu, Department of Molecular and Material Sciences.)

### 1. はじめに

近年、化学種を1つずつ検出する技術(単一分子検出)の開発が進み、生命化学分野を中心に急速に応用研究が進展している。溶液中の化学種の単一分子検出は、高い蛍光量子収率を持つ化学種について1990年に初めて報告された。以降、レーザー蛍光分光法が適用できる化学種についての応用が進められている。一方、生体中や環境中で重要な役割を果たす化学種のほとんどは蛍光性を持たない。無蛍光性の化学種を高感度検出する手法には光熱変換分光法があるが、その検出感度はレーザー蛍光法におよばず、単一分子検出には100~1000倍程度の高感度化が必要と見積もられている。

我々は、水溶液中の無蛍光性化学種の単一分子検出を目的として、過渡吸収を利用して光熱変換信号を増幅する手法を提案・検討してきた[1]。この手法は、単一の分子を核として光エネルギーを熱エネルギーに効率よく変換し、溶液中の局所を加熱するものであり、熱膨張を介して音波が発生するとき“単一分子音源”とも言うべき理想的な音源を提供するものと期待される。そこで、単一分子の過渡吸収を利用して、光熱変換により発生する熱量および光音響効果により発生する音圧を定式化して、実験可能な条件に即して見積り、観測できるレベルであるかについて検討した。

### 2. 実験系

過渡吸収を利用して光熱変換信号を増幅・検出するための装置系をFig.1に示した。408nmの励起光で目的化学種(ナフタセン、イソプロパノール溶液)を励起し、532nmの光で過渡吸収を生じさせる。光熱変換信号の検出は熱レンズ法により行う。

### 3. 単一分子から発生する音圧

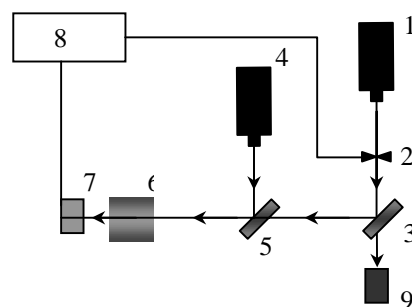


Fig. 1 Schematic diagram of photoacoustic detection 1), Excitation laser (408nm); 2), chopper(2kHz); 3,5), Dichroic mirror; 4), Second pump Nd:YVO second harmonics laser (532nm); 6), Objective lens (x40); 7), Photoacoustic cell; 8), Lock-in amplifier 9), Photodiode.

過渡吸収が起こる際の分子のエネルギー状態をFig.2に示す。基底状態にある分子は光(振動数 $\nu_1$ ,強度 $P_1$ )を吸収して励起状態に遷移した後、励起状態内で緩和し、最低励起1重項状態の振動基底状態に安定化する。その状態にある分子は、更に別の波長の光(振動数 $\nu_2$ ,強度 $P_2$ )を吸収して高励起状態に遷移するか、基底状態に緩和する。高励起状態にある分子は最低励起1重項状態の振動基底状態に緩和する。それぞれの状態の占有数を $N_i$  ( $i = 0, 1, 2, 3$ )、状態間の緩和速度定数を $k_i$  ( $i = 1, 2, 3$ )とする。吸収の確率 $W$ は次の式で表される。 $\sigma_0, \sigma_2$ は分子の光吸収断面積であり、 $h$ はプランク定数である。

$$W_1 = \frac{\sigma_0 P_1}{h\nu_1},$$

$$W_2 = \frac{\sigma_2 P_2}{h\nu_2}$$

以上のエネルギー状態を考えて、励起光単独で励起した場合発生する音圧 $S_1$ と励起光、増幅光の2色レーザーにより過渡吸収を起こした場合に発生する音圧 $S_2$ とを比較する。

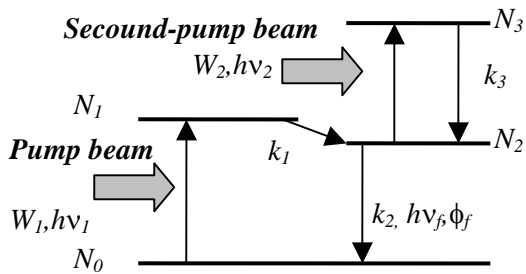


Fig. 2 Four-level model: a grand state, an excited state, a low excited state and a highly excited state have  $N_0$ ,  $N_1$ ,  $N_2$ , and  $N_3$  of population.

### 3.1 励起光により発生する音圧

分子が熱緩和により放出するエネルギーを  $E_1$ 、蛍光量子収率  $\phi_f=0$  とすると

$$E_1 = h\nu_1 k_2 N_2 \quad (1)$$

この系で定常的な近似を適用させると

$$\frac{dN_0}{dt} = \frac{dN_1}{dt} = \frac{dN_2}{dt} = \frac{dN_3}{dt} = 0 \quad (2)$$

これより、 $N = N_0 + N_1 + N_2 + N_3$  を用いて 1) 式は次のようになる

$$E_1 = hk_1 f_1 N \left( 1 + f_1 \frac{k_1}{k_2} \right)^{-1} \nu_1 \quad (3)$$

$$\text{ここで、} f_1 = \frac{W_1}{W_1 + k_1},$$

3) 式に

$$N=1, \quad W_1 = 6.4 \times 10^8 [1/s], \quad k_1, k_2 = 10^{12}, 10^7 [1/s]$$

をそれぞれ代入すると

$$E_1 = 4.68 \times 10^{-11} [J] \quad (4)$$

次に、発生する熱による音圧を見積もる。対象分子近傍の温度上昇を  $\Delta T$ 、溶媒の密度を  $\rho$ 、比熱を  $C_p$ 、熱源の体積を  $V$  とすると

$$\rho C_p V \Delta T = E_1 \quad (5)$$

熱源を熱拡散長  $R$  の半径をもつ球体とし、膨張率  $\beta$  で膨張すると考えると

$$\frac{4}{3} \pi (R + \Delta R)^3 - \frac{4}{3} \pi R^3 \cong \beta V \Delta T$$

$$\Delta R = \frac{\beta}{3} R \Delta T \quad (6)$$

5), 6) 式より、

$$\Delta R = \frac{\beta E_1}{4 \rho C_p \pi R^2} \quad (7)$$

また、熱源から観測点までの距離を  $r$  とすると、 $r$  での音圧による変位  $d$  は次のようになる。

$$d \cong \Delta R \left( \frac{R}{r} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (8)$$

音圧  $S_1$  は、チョッピング周波数  $F$ 、媒質中の音速  $c$  を用いて次のようになる。

$$S_1 = 2\pi F c \rho d \quad (9)$$

7), 8), 9) 式より、

$$S_1 = \frac{F c \beta E_1}{2 C_p R^2} \left( \frac{R}{r} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (10)$$

$$F = 2000 [1/s], \quad c = 1170 [m/s],$$

$$\beta = 1.09 \times 10^{-3} [1/s], \quad C_p = 153 [J/K],$$

$$R = 3.61 \times 10^{-4} [cm], \quad r = 0.1 [cm]$$

を代入すると

$$S_1 = 7.5 \times 10^{-1} [Pa] \quad (11)$$

### 3.2 励起光と増幅光により発生する音圧

同様にして熱エネルギーを  $E_2$  とすると

$$E_2 = h\nu_1 k_2 N_2 + h\nu_2 k_3 N_3 \quad (12)$$

また、12) 式に定常状態近似を適用すると

$$E_2 = hk_1 f_1 N \left( 1 + f_1 \frac{k_1}{k_2} \right)^{-1} \left( \nu_1 + \nu_2 \frac{k_3 f_2}{k_2} \right) \quad (13)$$

$$\text{ここで、} f_2 = \frac{W_2}{W_2 + k_3}$$

$$N=1, \quad W_1, W_2 = 6.4 \times 10^8, 1.7 \times 10^{11} [1/s],$$

$$k_1, k_2, k_3 = 10^{12}, 10^7, 10^{13} [1/s]$$

をそれぞれ代入すると

$$E_2 = 6.1 \times 10^{-7} [J] \quad (14)$$

さらに、発生する音圧  $S_2$  は

$$S_2 = 9.8 \times 10^3 [Pa] \quad (15)$$

## 4. 考察

過渡吸収を利用した 2 色レーザー励起により単一分子から発生する音圧  $S_2$  は、 $9.8 \times 10^3 [Pa]$  と見積もられた。これは、励起光のみの場合に発生する音圧 10000 倍に相当する。現在、この数値の妥当性、および、この音圧レベルの音波を光によって検出する可能性を検討中である。

### 参考文献

[1] A. Harata, K. Fukushima, Y. Hatano, Anal. Sci., 18 (2002) 13

# 異方性分子からなる液体における超音波回折光の偏光状態

## Light Diffraction and Polarization Effects in Liquids of Anisotropic Molecules

松岡辰郎、水谷嘉孝、香田 忍（名古屋大 院工）

Tatsuro Matsuoka, Yoshitaka Mizutani and Shinbu Koda (Grad. Sch. of Eng., Nagoya Univ.)

### 1. はじめに

等方的な固体や異方性分子からなる液体中に縦波超音波を照射すると縦波超音波の異方性成分に対応した分子配向を誘起することができる。この分子配向により、光学的な複屈折が生じる。この複屈折は音響位相格子に異方性をあたえ、超音波光回折の現象において回折光の偏光状態に影響をあたえると考えられる。固体においては、この考えによる研究はよくおこなわれており、特に、Blomme らの研究は系統的な研究として挙げることができる<sup>1</sup>。

液体においても超音波の異方性速度勾配により誘起される複屈折が存在すると考えられ、1960年のJerrard<sup>2</sup>の実験を機会に研究が進められている。彼は、超音波を透過した光を直交クロスニコルで観察する方法で光学的な異方性の発生を確認した。Klein と Fitts<sup>3</sup>は固体の理論を拡張し、超音波による回折光の偏光状態に関する論文を残したが、この論文は注目を浴びず、1980年代以降に液体における超音波誘起複屈折の研究を進めた我々を含む研究者は、Klein らの方法によらず、Jerrardの方法で実験を行い、議論を行ってきた<sup>4,7</sup>。Jerrardの方法は液体中において超音波が光学的異方性を誘起することの確認としては正しいが、そこから計算される複屈折量は、複屈折を正しく反映しているものとはいえない。したがって、液体においてもKlein らの提案する回折光の偏光解析にもとづいて研究をすすめなおす必要がある。一方、Klein らの研究についても、流動複屈折などの他の実験結果を用いた検証を十分行っているとはいえない。したがって、液体における超音波誘起複屈折の研究は再検討する必要があるといえる。本研究では、流動複屈折の文献値が

あり、配向緩和減衰率が大きい<sup>8</sup>ため<sup>8</sup>理論的な取り扱いが簡単な triphenyl phosphite (TPP)において超音波による回折光の偏光解析した結果と回折理論による計算値を比較する。

### 2. 理論

$x$  方向に進行する幅  $L$  の縦波超音波を考え、それに垂直に入射する波数  $k_{\text{light}}$  の光の進行方向を  $z$  とする。複屈折は  $x$  と  $y$  方向の偏光について考えることになる。音波による屈折率の変化が以下の式で書けるとする。

$$n_x(x, t) = n_0 + n_x \operatorname{Re}[\exp[i(\omega t - kx + \phi_x)]] \quad (1)$$

$$n_y(x, t) = n_0 + n_y \operatorname{Re}[\exp[i(\omega t - kx + \phi_y)]] \quad (2)$$

このような屈折率格子のよる回折光を計算するための連立微分方程式<sup>3</sup>は、

$$\frac{d\Phi_{j,x}}{dz} + \frac{v_x}{2L}(\Phi_{j-1,x} - \Phi_{j+1,x}) = ij^2 \frac{Q}{2L} \Phi_{j,x} \quad (3)$$

ここで  $\Phi_{j,x}$  は  $j$  次回折光に関する Raman-Nath 理論による  $x$  方向の偏光の複素振幅であり、また、 $v_x = kn_x L$ 、 $Q = k^2 L / n_0 k_{\text{light}}$  である。 $y$  方向の偏光についても同様な式が成り立つ。境界条件は、超音波に入射する前の 0 次回折光の振幅を 1 とし、その他の回折光の振幅を 0 とすることである。この微分方程式の解を求めると、 $j$  次回折光に関する  $x$  と  $y$  方向の偏光の複素電場の比を次の式で計算できる<sup>3</sup>。

$$\frac{E_j(v_y)}{E_j(v_x)} = \exp[ij(\phi_y - \phi_x)] \frac{\Phi_{j,y}(v_y)}{\Phi_{j,x}(v_x)} \quad (4)$$

この複素電場の比から、回折光に偏光に関する量、すなわち、方位角と位相遅れが決まる。

超音波による屈折率の変化は、等方的な屈折率変化  $n_{\text{iso}}$  と複屈折  $\Delta n$  に分けられる。入射光として  $x$  方向からの方位角が  $\pi/4$  の直線偏光を考える。このとき、 $n_{\text{iso}}$  の位相因子を基準とし、縦波の異方性成分の対称性<sup>7</sup>を考慮すると、屈

折率の変化は,  $x$  と  $y$  方向の偏光に対してそれぞれ  $n_x e^{i\phi_x} = n_{\text{iso}} + (2/3)\Delta n$ ,  $n_y e^{i\phi_y} = n_{\text{iso}} - (1/3)\Delta n$  となる。2/3 と -1/3 という係数は Klein と Fitts<sup>3</sup> の論文と異なっているが,  $n_{\text{iso}} \gg |\Delta n|$  が成り立つとき,  $|\Delta n/n_{\text{iso}}|$  の一次までの近似をおこなうと, 与える結果は同一となる。

密度を  $\rho$  として音波により  $\delta\rho/\rho$  という摂動が与えられたとき  $n_{\text{iso}}$  と  $\Delta n$  はそれぞれ以下の式で与えられる<sup>7</sup>。

$$n_{\text{iso}} = \rho \left( \frac{\partial n_0}{\partial \rho} \right) \frac{\delta\rho}{\rho} \quad (5)$$

$$\Delta n = \left| \frac{\Delta n_f}{\dot{\gamma}} \right| \Gamma \frac{i\omega}{i\omega + \Gamma} \frac{\delta\rho}{\rho} \quad (6)$$

ここで  $|\Delta n_f/\dot{\gamma}|$ ,  $\Gamma$  はそれぞれずり速度あたりの流動複屈折, 配向緩和減衰率である。詳しい計算は省略するが,  $\omega \ll \Gamma$  かつ  $n_{\text{iso}} \gg |\Delta n|$  の条件のもと, 0次光の方位角変化  $\Delta\chi_0$ , 位相遅れ  $\delta_0$ , 1次光の方位角変化  $\Delta\chi_1$  はともに 0 となり, 1次光の位相遅れ  $\delta_1$  は, 超音波強度によらず

$$\delta_1 = \phi_x - \phi_y = \frac{|\Delta n_f/\dot{\gamma}| \omega}{\rho (\partial n_0 / \partial \rho)} \quad (7)$$

となる。

### 3. 実験

実験装置の配置は, 文献 9 とほぼ同様だが, 回折光ごとに偏光解析をおこなう点が異なっている。0次と1次の回折光に対して方位角の変化  $\Delta\chi_j$  と位相遅れ  $\delta_j$  を測定した。超音波強度の指標として Raman-Nath パラメータを実測し<sup>8</sup>, この値を用いた。

試料の TPP は, Fluka (純度 97%) のものをそのままちいた。測定温度は, 25 °C である。超音波周波数は 5MHz, 15MHz, 25MHz で実験をおこなった。25°C での TPP の  $\Gamma/(2\pi)$  の値は約 480 MHz<sup>8</sup> であり, 今回の測定条件では,  $\omega \ll \Gamma$  条件を満たしている。

### 4. 結果と考察

$\Delta\chi_0$ ,  $\delta_0$ ,  $\Delta\chi_1$  は測定誤差範囲で超音波強度によらず 0 であった。Fig.1 に  $\delta_1$  の Raman-Nath パラメータ依存性を示す。ばらつきはかなりのものの位相遅れが超音波強度によらないことと超音波周波数に対し単調に増大することがわかる。Eq.(7)に文献値<sup>8</sup>を代入して計算した

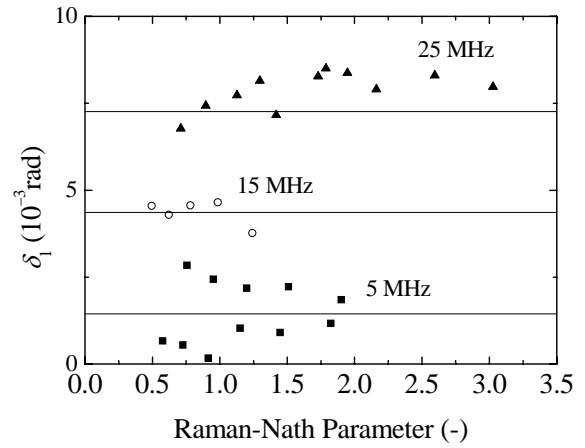


Fig. 1 Retardation of first order diffracted light vs. Raman-Nath Parameter. The lines indicate the values the calculated by eq. (7) using the values in the literature.<sup>8</sup>

結果が Fig.1 の実線で示されている。このとき  $\rho(\partial n_0/\partial \rho)$  値は, Gibson と Kinkaid の式<sup>10</sup>を用いて屈折率の値より評価した。測定誤差を考慮すると実験値は eq.(7)でよく再現されている。

以上により配向緩和周波数が十分に大きい液体において, 超音波による回折光の偏光状態が Klein と Fitts<sup>3</sup> による位相格子理論で解析できることがわかった。今後, 配向緩和周波数が通常の超音波の実験領域にある液晶等方相において解析を進める予定である。

### 引用文献

1. E. Blomme, O. Leroy and A. Sliwinski: *Acustica/Acta Acustica* **82** (1996) 464.
2. H. G. Jerrard: *Ultrasonic* **2**, 74 (1964).
3. W. R. Klein and W. D. Fitts: *IEEE SU-21* (1974) 204.
4. R. Lipeles and D. Kivelson: *J. Chem. Phys.* **72**, (1980) 6199.
5. P. Martinoty and M. Bader: *J. Phys. (Paris)* **42**, (1981) 1097.
6. M. Bader and P. Martinoty: *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **76** (1981) 269.
7. T. Matsuoka, K. Yasuda, S. Koda and H. Nomura: *J. Chem. Phys.* **111** (1999) 1580.
8. D. Kivelson, T. Keys and J. Champion: *Mol. Phys.* **31** (1976) 221.
9. K. Yasuda, T. Matsuoka, S. Koda and H. Nomura: *J. Phys. Chem.* **100** (1996) 5892.
10. R. B. Gibson and J. F. Kinkaid: *J. Am. Chem. Soc.* **60** (1938) 221.

## 表面形態の異なるナノ構造 TiO<sub>2</sub> 電極の 光音響評価と光電気化学特性

### Photoacoustic and Photoelectrochemical Characterization of Nanostructured TiO<sub>2</sub> Electrodes

豊田 太郎 (電通大 量子・物質工)

Taro Toyoda (The Univ. Electro-Commun.)

#### 1. はじめに

地球環境・エネルギー資源の問題を解決する方法の一つとして、太陽光を利用する光電変換デバイスの研究開発が活発に行われている。それらの中で、ナノ構造を有する TiO<sub>2</sub> 光電極に有機色素を吸着しその分光増感を利用する「色素増感太陽電池」が近年注目されている。この系は簡便であるにもかかわらず、比較的高いエネルギー変換効率が達成されたことから<sup>1)</sup>、従来の Si 系に代わるものとして応用研究が活発に行われている。一方、ナノ構造 TiO<sub>2</sub> 光電極の光吸収、励起キャリアの応答、さらに吸着した色素からの励起キャリア注入とその後の移動に関する研究は光電変換効率向上に重要であるにもかかわらず、応用研究優先のため十分には解明されていなかった。ここで、基板となるナノ構造 TiO<sub>2</sub> 光電極の表面形態は光電変換に大きな影響を及ぼすことは認識されていた。しかし、現在それぞれの表面形態について個々の研究者が散発的に研究を行っているのが現状で、種々の表面形態について統一的に比較検討された研究は少なかった。本研究は、(1)各種表面形態の異なる TiO<sub>2</sub> 電極を形成し、(2)従来の有機色素増感に代わる可能性を持つ半導体量子ドット吸着による分光増感を対象として、各種の評価・検討を行うものである。ここで、光エネルギー変換研究の第一歩として、系の光吸収評価は重要な情報となる。しかし、一般的にナノ構造電極では光散乱が大きく不透明であるため、通常の方法(透過法あるいは反射法)では精度の高い光吸収情報を得ることが困難であった。一方、光熱変換分光法は、無輻射緩和に伴う発熱(温度上昇)を検出するため、光散乱が大きく不透明な対象に対しても光吸収とエネルギー緩和の評価を行う

-----  
E-mail address: toyoda@pc.uec.ac.jp

ことが可能となる。光音響(PA)分光法は光熱変換分光法の一つで、熱エネルギーを音響エネルギーに変換して捉える計測法である。この方法は簡便であることに加え、測定結果の解析が比較的容易に出来る長所を持っている<sup>2-5)</sup>。本研究では、光音響分光法を上記(1), (2)の課題に適用し光吸収評価を行い、合わせて光電流変換量子効率(IPCE)評価とレンズフリー過渡回折格子(TG)法により、分光増感による励起キャリア移動評価を行った。

#### 2. 試料作製

##### 2.1 表面形態の異なる TiO<sub>2</sub> 電極の作製

###### 粒径の異なるナノ粒子の複合体

粒径の異なるアナターゼ型 TiO<sub>2</sub> ナノ粒子から形成された電極では、混合率変化に対して表面形態が異なると共に、光吸収と光化学電流が大きく異なる<sup>6,7)</sup>。今回、粒径 15 nm の TiO<sub>2</sub> ナノ粒子に粒径 27 nm ナノ粒子を混合したものに、蒸留水、アセチルアセトン、ポリエチレングリコール(PEG)を加えて十分に攪拌し、TiO<sub>2</sub> ナノ粒子ペーストを形成した。形成した TiO<sub>2</sub> ナノペーストを導電性透明電極 FTO に塗布し、450 °C で 30 分間熱処理して TiO<sub>2</sub> 光電極を形成した。

###### 結晶構造の異なるナノ粒子の複合体

アナターゼ型 TiO<sub>2</sub> ナノ粒子にルチル型ナノ粒子が複合した系では、光触媒機能が向上する<sup>8)</sup>。今回光電変換への効果を検討するため、12%ルチル型ナノ粒子が混合しているナノ粒子を適用して、<sup>9)</sup> の手法と同様にして TiO<sub>2</sub> 電極を形成した。

###### ナノチューブ・ナノワイヤーの複合体

TiO<sub>2</sub> ナノチューブを用いた電極では、通常ナノ粒子を適用した場合に比べて短絡電流が向上することが報告されている<sup>9)</sup>。しかし光励起されたキャリアの移動やエネルギー移動については十分に検討されていない。オルトチタン酸テトラ

イソプロピルにアセチルアセトンを混合後、さらに n-ドデシルアミン塩酸基を導入し混合液を製作した。その後 40 で混合溶液が透明になるまで攪拌し、引き続き 80 で 72 時間熱反応させた。この混合溶液中に 2-イソブタノールを加え、遠心分離を行いゲル状溶液を取り出した。このゲル状溶液を導電性透明電極 FTO に塗布し、450 で 30 分間熱処理して TiO<sub>2</sub> 光電極を形成した<sup>9)</sup>。

#### 規則構造を有するフォトニック光電極

この系では光多重散乱と光閉じ込め効果を利用して、光エネルギー変換効率の向上を検討する研究が進行している<sup>10)</sup>。導電性透明電極 FTO をポリスチレン(PS)ラテックス粒子の懸濁液に浸透後、一定条件で蒸発させテンプレートを形成した。その後テンプレートの間隙に TiCl<sub>4</sub> を充填前駆体として適用し、加水分解の後 450 で 30 分間熱処理を施しフォトニック TiO<sub>2</sub> 光電極を形成した。

### 2.2 CdSe 量子ドットの吸着

従来 TiO<sub>2</sub> 光電極の増感剤には Ru 錯体を中心とした有機色素系の適用が数多く研究されている。一方半導体量子ドット系は、有機色素系に比べて多くの利点があるにもかかわらず増感剤として適用する研究は少なかった。今回、半導体系増感剤として CdSe 量子ドットを対象とした。CdSO<sub>4</sub> 水溶液に、N(CH<sub>2</sub>COONa)<sub>3</sub> 水溶液と Na<sub>2</sub>SeSO<sub>3</sub> 水溶液を順に加えて攪拌し、化学成長用の混合液を製作した。その後、各光電極を溶液中に浸透し、CdSe 量子ドットの吸着を行った<sup>6,7,11)</sup>。粒径は浸透時間によりコントロールした。

### 3. 各種評価法

PA スペクトル測定は、マイクロフォン法を用いた<sup>12)</sup>。光源には 300 W の Xe ランプを使用し、分光器により単色化した光をメカニカルチョッパーで変調し、PA セル内の光電極に照射した。発生した PA 信号はマイクロフォンで検出し、プリアンプにより増幅後 2 位相ロックインアンプで検出・信号処理を行った。外部からの振動防御のために、光学実験台を使用すると共に、PA セルを弾性ゴムで懸架することにより信号の SN 比の向上を図った。測定波長範囲は 300 – 800 nm、変調周波数は 33 Hz で行った。励起光強度の補正には、カーボンブラック試料の PA 信号を用いた。

IPCE スペクトル測定系は PA 系のそれと同じであるが、PA セルの代わりに石英ガラス製の PEC セルを用いた。作用極として各種 TiO<sub>2</sub> 光電極を、対極に Pt を用いた。無抵抗電流計を適用し、短絡電流の測定を行った。電解質溶液は、1M KCl と

0.1M Na<sub>2</sub>S 水溶液を用いた<sup>13)</sup>。

レンズフリーTG 応答測定は最近開発された新手法で、従来の TG 法に比べて、レンズ系を使用しないため簡便で感度が良く、不透明に近い試料でも測定が可能である<sup>14,15)</sup>。励起光が回折格子に入射すると、回折格子のごく背後にある対象試料表面に回折格子による干渉パターンが形成される。その結果試料表面には、干渉パターンに対応する屈折率分布が形成される。この屈折率分布はプローブ光に対して、過渡的な回折格子として作用する。励起光と同軸で入射したプローブ光は回折格子と試料に形成された回折格子により回折される。この回折光の強度は励起キャリアの密度に比例することから、各種励起キャリアのダイナミクスが評価出来る。光源には再生増幅型の Ti サファイアレーザ(パルス幅：150 フェムト秒；波長：775 nm)を使用し、励起光は第 2 高調波(388 nm)を、プローブ光は基本波(775 nm)を用いた。測定応答時間範囲は 100 ピコ秒まで行った。

### 4. 結果と考察

CdSe 量子ドットを吸着した以下の光電極系に対して、PA 評価と PEC 評価を行った。

粒径の異なる TiO<sub>2</sub> ナノ粒子の複合体光電極では、PA スペクトルに CdSe 量子ドットの閉じ込め効果によるレッドシフトが観察されたが、混合率依存性は見られなかった。一方 IPCE スペクトルでは CdSe 量子ドットによる分光増感を示すレッドシフトが観測されると共に、PA スペクトルでは見られなかった混合率依存性が見られ、最適混合率の存在が示唆された。TG 測定から、CdSe 量子ドット内の正孔の移動に伴う数ピコ秒の緩和と電子移動に伴う数十ピコ秒程度の緩和が観測され、後者の緩和時間は混合率に依存することから、IPCE スペクトルとの相関性が示唆される。

結晶構造の異なる TiO<sub>2</sub> ナノ粒子(アナターゼ型とルチル型)の複合体光電極では、PA スペクトルに CdSe 量子ドットの閉じ込め効果によるレッドシフトが観察され、ルチル型の混合によって PA 強度が増大した。一方、IPCE スペクトルでは CdSe 量子ドットによる分光増感を示すレッドシフトが観測されると共に、ルチル型の混合により IPCE 値が 20%程増大した。

TiO<sub>2</sub> ナノチューブ・ナノワイヤーの複合体光電極の、CdSe 量子ドット吸着時間(平均粒径)をパラメータとした PA スペクトルと IPCE スペクトル

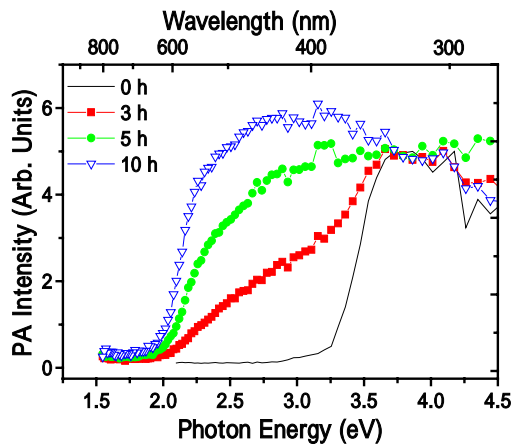


Fig. 1 PA spectra of the nanotube TiO<sub>2</sub> electrodes for different CdSe quantum dots adsorption times.

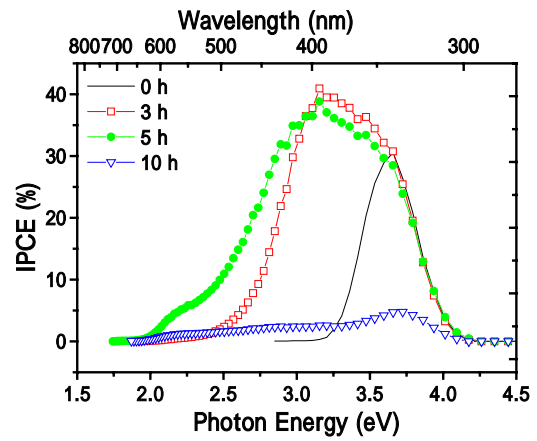


Fig. 2 IPCE spectra of the nanotube TiO<sub>2</sub> electrodes for different CdSe quantum dots adsorption times.

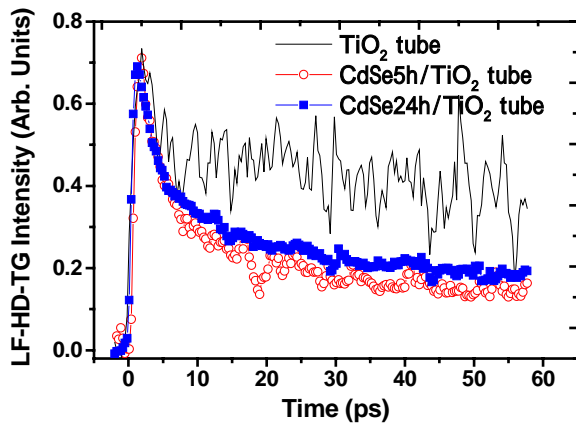


Fig. 3 TG responses of the nanotube TiO<sub>2</sub> electrode and those sensitized with CdSe quantum dots for different CdSe quantum dots adsorption times.

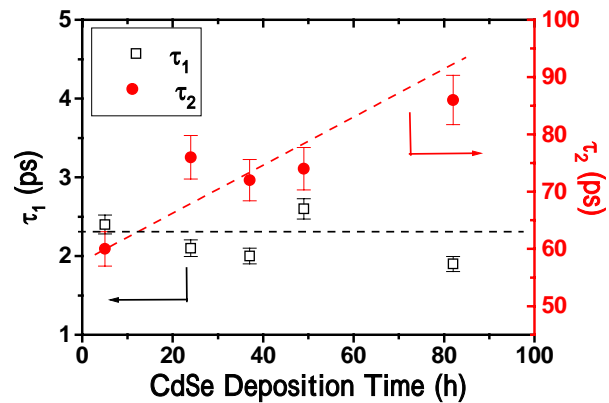


Fig. 4 Dependence of fast decay time  $\tau_1$  ( $\square$ ) and slow decay time  $\tau_2$  ( $\bullet$ ) of the nanotube TiO<sub>2</sub> electrodes on adsorption time of CdSe quantum dots.

を、それぞれ Fig. 1 と Fig. 2 に示す。PA スペクトルから、CdSe 量子ドットの閉じ込め効果によるレッドシフトが観察された。IPCE スペクトルでは CdSe 量子ドットによる分光増感を示すレッドシフトが観測された。一方、CdSe 量子ドット吸着を施していない光電極では、他の TiO<sub>2</sub> ナノ粒子で形成された光電極系に比較して大きな IPCE 値を示した。これはナノ粒子で形成された光電極系と比べて、電気伝導に対する電子系の次元性向上によるものと考えられる<sup>9)</sup>。IPCE は CdSe 量子ドット吸着時間の増加と共にそのピークはレッドシフトするが、ある吸着時間を越えると急激に減少する。これは他の TiO<sub>2</sub> ナノ粒子で形成された光電極系では見られない現象であり、CdSe 量子ドットのナノチューブ・ナノワイヤー複合系への吸着とドットの成長機構が異なることを示唆している。Fig. 3 に、TiO<sub>2</sub> ナノチューブ・ナノワイヤーの複合体

光電極の TG 応答を示す。CdSe 量子ドットを吸着していない系の応答は、この時間領域では TiO<sub>2</sub> ナノチューブ・ナノワイヤー内の正孔移動に対応している。CdSe 量子ドットを吸着した系では量子ドット内の正孔の移動に伴う数ピコ秒の緩和と電子移動に伴う数十ピコ秒程度の緩和が観測された。Fig. 4 に CdSe 量子ドットを吸着した系の、正孔の移動の緩和時間  $\tau_1$  ( $\square$ ) と電子移動に伴う緩和時間  $\tau_2$  ( $\bullet$ ) の吸着時間依存性を示す。正孔の移動の緩和時間  $\tau_1$  は吸着時間依存性を示さないが、電子移動に伴う緩和時間  $\tau_2$  は吸着時間の増加に伴い単調に長くなる。ナノ粒子で形成された光電極系の緩和時間  $\tau_2$  も吸着時間と共に単調に長くなるが、ナノチューブ・ナノワイヤー複合系ではその変化率が 5 倍程度大きい。この事実は、IPCE の CdSe 量子ドット吸着時間に対する極端な変化との相関性を示唆している。

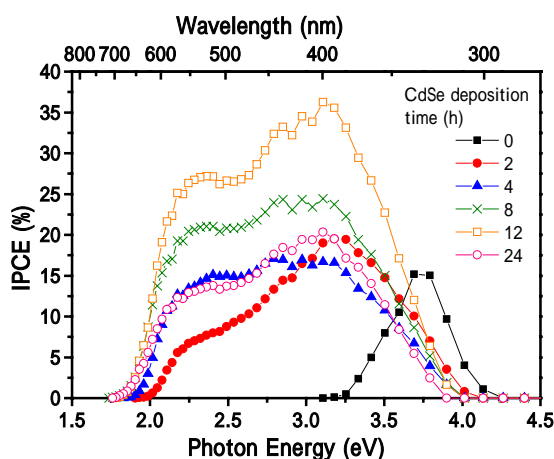


Fig. 5 PA spectra of the TiO<sub>2</sub> photonic crystals sensitized with CdSe quantum dots for different adsorption times.

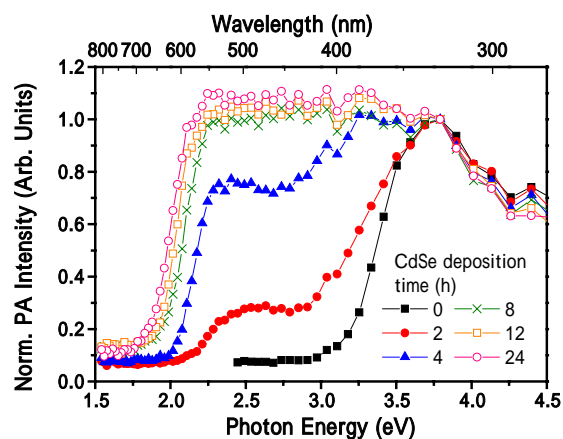


Fig. 6 IPCE spectra of the TiO<sub>2</sub> photonic crystals sensitized with CdSe quantum dots for different adsorption times.

規則構造を有する TiO<sub>2</sub> フォトニック光電極の、CdSe 量子ドット吸着時間をパラメータとした PA スペクトルと IPCE スペクトルを、それぞれ Fig. 5 と Fig. 6 に示す。PA スペクトルから、CdSe 量子ドットの閉じ込め効果によるレッドシフトが観察された。IPCE スペクトルでは CdSe 量子ドットによる分光増感を示すレッドシフトが観測された。作製された TiO<sub>2</sub> フォトニック光電極系のフォトニックバンドは、約 2.94 eV ( $\lambda = 412$  nm) と見積もられるが、PA ならびに IPCE スペクトルでは CdSe 量子ドットの第一励起状態に対応するピークの他に、3.0 eV 付近にピークが見られフォトニック性との対応が考えられる。

## 謝辞

本研究の一部は文部科学省科学研究費補助金(基盤研究(No. 15510098)、若手研究(No. 14750645)、特定領域研究(417) (Nos. 15033224, 17029020))の援助を受けて行われました。研究推進を行っている沈 青博士、有益な議論をいただいている小林直樹教授、奥野剛史助教授(以上、電気通信大学)、レンズフリーTG 法でご支援・ご教示いただいた澤田嗣郎教授(農工大)に深く感謝申し上げます。

## 参考文献

1. M. Grätzel: Nature **414** (1991) 338.
2. Y. Inoue, M. Okamoto, T. Kawahara and J. Morimoto: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4455.

3. M. Okamoto, Y. Inoue, T. Kawahara and J. Morimoto: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4461.
4. T. Toyoda, D. Arae and Q. Shen: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4465.
5. T. Hasegawa, A. Aruga and Y. Okamoto: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4469.
6. Q. Shen and T. Toyoda: Jpn. J. Appl. Phys. **43**(2004) 2946.
7. Q. Shen, D. Arae and T. Toyoda: J. Photochem. Photobiol. A: Chem. **164** (2004) 75.
8. T. Ohno, K. Sarukawa, T. Tokieda and M. Matsumura: J. Catal. **203** (2001) 82.
9. M. Adachi, Y. Murata, I. Okada and S. Yoshikawa: J. Electrochem. Soc. **150** (2003) 488.
10. S. Nishimura et al., J. Am. Chem. Soc. **125** (2003) 6306.
11. S. Gorer and G. Hodes: J. Phys. Chem. **98** (1994) 5338.
12. T. Toyoda, M. Hayashi, J. Sato and Q. Shen: Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) 3367.
13. R. Vogel, K. Pohl and H. Weller: Chem. Phys. Lett. **174** (1990) 241.
14. K. Katayama, M. Yamaguchi and T. Sawada: Appl. Phys. Lett. **82** (2003) 2775.
15. M. Yamaguchi, K. Katayama and T. Sawada: Chem. Phys. Lett. **377** (2003) 589.

# ナノワイヤー超格子におけるねじれ振動モード

## Azimuthally symmetric torsional modes in nanowire superlattices

水野誠司\* (北大院工)

Seiji Mizuno (Dept. of Appl. Phys., Hokkaido Univ.)

### 1. はじめに

最近、GaAs/GaP、Si/SiGe、InAs/InPb、ZnSe/CdSe等の組成を持つナノワイヤー超格子 (Nanowire Superlattice, 略してNWSL) の合成が報告され<sup>1-4)</sup>、ナノエレクトロニクス、ナノフォトニクスへの応用が議論されている。NWSL中の電子に関する理論的な研究によると、この構造は一樣なナノワイヤーとも1次元超格子とも異なる電子的・光学的性質を示すことが示されている<sup>4)</sup>。

この構造は格子振動 (フォノン) の特性にも興味深い効果をもたらすことが期待できる。NWSLのフォノンの特性を理解することは、実用上も重要である。近年脚光を浴びているMEMS/NEMS (micro/nano electro mechanical systems)<sup>5)</sup>等のナノデバイスの特性は、熱的な要因に大きく左右されるが、ナノワイヤー構造中に埋め込まれた超格子構造を用いることによって、ナノデバイス中のフォノンの振る舞いを制御することも可能である。

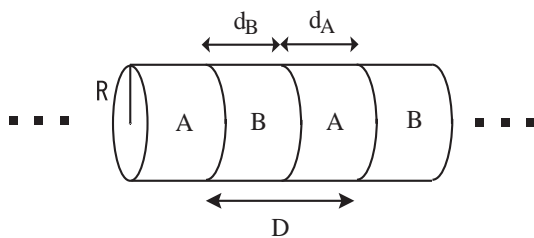


Fig.1 Nanowire superlattice.

しかしながら、これまでのところ、NWSLのフォノンに関する解析は全く行われていない。そこで、本研究では、円柱状の形状をしたNWSL (Fig. 1 参照) に生じる振動モードを解析的に調べた。特に、角度方向に一樣な変位をもったねじれモード (azimuthally symmetric torsional modes、略してASTモード) に注目する。ねじれモードは、Clellandら<sup>5)</sup>によって開発されたねじれ振動を発生させる共振器を用いて励起することが可能である。

### 2. 分散関係

#### 2.1 プレーンナノワイヤー

超格子構造を持たない一樣な円柱 (プレーンナノワイヤー) に生じる振動モードを考えると、ASTモードに関しては取り扱いが簡単となり、フォノン分散関係および変位と応力の解析解を導出できる<sup>6,7)</sup>。詳しい計算は省略するが、ワイヤーの表面で応力が0であるという境界条件から、半径方向の波数が

$$k = \frac{f_{2,s}}{R} \quad (1)$$

と離散化される。ここで、 $R$  はワイヤーの半径で、 $f_{2,s}$  は  $J_2=0$  の  $s$  番目の零点を表す。ただし、 $J_n$  は第1種Bessel関数である。そして、フォノン分散関係は

$$\omega_s(q) = v \sqrt{q^2 + \left(\frac{f_{2,s}}{R}\right)^2} \quad (2)$$

と求まる。ここで、 $v$  は音速、 $q$  は長さ方向の波数である。各々の  $s$  が異なるモードに対応している。

#### 2.2 ナノワイヤー超格子

我々は、2.1 で述べた解析的取り扱いを用いて NWSL の各層内で変位と応力を計算し、これらが全ての界面で連続であるという境界条件を課すことによって NWSL のフォノン分散関係を導出した。定式化の詳細は文献 8 を参照して頂きたいが、分散関係は、次の Kronig-Penney 解で与えられる：

$$\cos KD = \cos(q_A d_A + q_B d_B) - \frac{1}{2} \varepsilon^2 \sin q_A d_A \sin q_B d_B \quad (3)$$

ここで、 $K$  は超格子周期によって定まるBloch波数で、 $d_A, d_B$  は層A, Bの厚さである。 $I$  ( $I=A, B$ ) 層において定義される波数 $q_I$  は

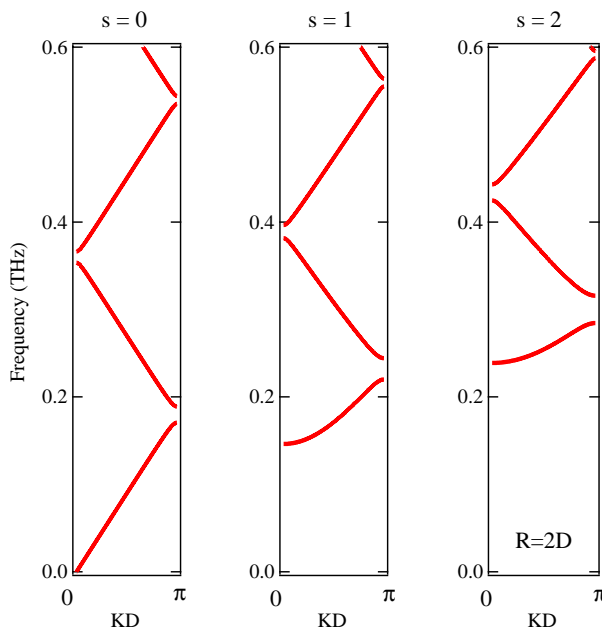
\* e-mail: mizuno@eng.hokudai.ac.jp

$$q_l = \sqrt{\left(\frac{\omega}{v_l}\right)^2 - \left(\frac{f_{2,s}}{R}\right)^2} \quad (4)$$

で与えられる。 $v_l$  は音速である。また、 $\varepsilon$  は音響ミスマッチを表す量で、

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{\mu_A q_A}{\mu_B q_B}} - \sqrt{\frac{\mu_B q_B}{\mu_A q_A}} \quad (5)$$

である。ただし、 $\mu_l = \rho_l v_l^2$  で、 $\rho_l$  は質量密度である。(3)式に基づいて計算した、GaAs/AlAs NWSLの分散関係をFig.2 に示す<sup>9)</sup>。この数値例では、 $R=2D$ と仮定してある。



**Fig. 2** The phonon dispersion relations of the (100) GaAs/AlAs NWSL with  $R=2D$ .

Fig.2 には、最初の3つのモードが示してある。それぞれの分散関係の大まかな形は、プレーンナノワイヤーの分散曲線を、ナノワイヤー超格子の周期  $D$  で定まるミニブリルアンゾーンに折り返した形をしている。この折り返された分散曲線においてミニゾーンの中心と境界で周波数ギャップが生じており、その結果、ミニバンド構造が作られる。

我々は、 $m$  番目の周波数ギャップの中心周波数 (Bragg 周波数) の近似的な表式も導出した：

$$\omega_m = m\pi \left( \frac{d_A}{v_A} + \frac{d_B}{v_B} \right)^{-1} + \frac{f_{2,s}^2}{2m\pi R^2} (v_A d_A + v_B d_B). \quad (6)$$

この表式は、ワイヤーの半径方向の閉じ込めの効果が小さい場合に正しい。右辺の第1項は周

期多層膜(1次元超格子)の場合に現れるBragg周波数である<sup>10)</sup>。そして、右辺第2項が半径方向の閉じこめの効果による補正項を与える。この式は、軸方向の長周期構造に起因するBragg周波数が、ナノワイヤー超格子の半径 $R$ で定まることを示している。

### 3. まとめ

ここで取り扱ったモードは、フォノン変位がワイヤー軸方向に垂直なASTモードに限られていたが、フォノン分散関係を解析的に導出することができ、さらに周波数ギャップの解析的表式を導出することができた。ここで導出した種々の表式は、ナノワイヤー超格子における半径方向の閉じこめの効果と、軸方向の超格子構造による変調の効果を理解するのに重要である。これらの表式は、この先、NEMS/MEMS等において、フォノンフィルターやフォノンミラー、あるいはフォノン共振器などのフォノン光学デバイス設計の際に有用となることが期待される。

### 謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金(基盤研究(C)17510093)の助成を受けて行われた。

### 引用文献

- [1] M. S. Gudikson, L. J. Lauhon, J. Wang, D. C. Smith, and C. M. Lieber, *Nature (London)* **415** (2002) 617.
- [2] Y. Wu, R. Fan, and P. Yang, *Nano Lett.* **2** (2002) 83.
- [3] M. T. Bjork, B. J. Ohlsson, T. Sass, A. I. Persson, C. Thelander, M. H. Magnusson, K. Deppert, L. R. Wallenberg, L. Samuelson, *Nano Lett.* **2** (2002) 87.
- [4] R. Solanki, J. Huo, and J. L. Freeouf and B. Miner, *Appl. Phys. Lett.* **81** (2002) 3864.
- [5] A. N. Cleland and M. L. Roukes, *Nature(London)* **392** (1998) 160.
- [6] V. G. Grigoryan and D.G. Sedrakyan, *Sov. Phys. Acoust.* **29** (1983) 281.
- [7] B. A. Auld, in *Acoustic Fields and Waves in Solids*, Vol. 2 (Robert E. Krieger Publishing Company, Malabar, Florida, 1990).
- [8] S. Mizuno, *Phys. Rev. B* **71** (2005) 085303.
- [9] S. Mizuno, *phys. stat. sol. (c)* **1** (2004) 2725.
- [10] S. Mizuno, in *Recent Research Developments in Physics*, Vol. 3 (Transworld Research Network, Kerala, 2002) p.379.

# 表面と欠陥層を有する超格子に生じる局在振動モード

## Localized vibrational modes generated in a superlattice with a surface and a defect layer

河野武司、水野誠司\* (北大院工)

Takeshi Kouno and Seiji Mizuno (Dept. of Appl. Phys., Hokkaido Univ.)

### 1. はじめに

周期超格子中におけるフォノンの特徴的な振る舞いの多くは、フォノンの Bragg 反射に起因した周波数ギャップの存在に関連している<sup>1)</sup>。超格子の周期性が壊される要因のある場合、周波数ギャップ中に局在振動モードが生じることはよく知られている<sup>2-6)</sup>。表面は超格子の周期性を壊す要因の代表的なものであり、真空に接した超格子系において、周波数ギャップ中に表面に局在した振動モードが現れることはよく知られている。また、欠陥層(キャビティ層)がある場合にも同様であり、周波数ギャップ中に欠陥層に局在した振動モードが現れる。これまで、これらの局在モードの現れる条件やその特徴などが詳しく調べられてきた。しかしながら、それらの局在モードは、独立に取り扱われて計算されている。一方で、2種類以上の周期性を壊す要因が同時に存在する超格子系を取り扱うことも多い。そこで、本研究では、真空に接し、かつ、欠陥層を有する超格子系(Fig.1 参照)を取り上げ、その系に生じる局在振動モードについて理論的な解析を行った。

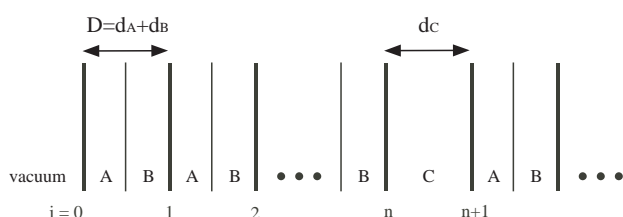


Fig.1 Superlattice with a surface and a defect layer.

### 2. 転送行列法とグリーン関数法

本研究では、フォノンの波数ベクトルが界面に垂直な場合を考える。この場合、フォノンの3つのモードを独立に取り扱うことができる。ここでは縦波を考える。連続弾性体近似の範囲内では、フォノン変位と応力は、右向き平面波と左向き平面波の一次結合で表される。これら

の変位と応力は、全ての界面で連続でなければならない。この境界条件は、転送行列法を用いて取り扱うことができる<sup>1)</sup>。また、表面では、応力が0でなければならない。欠陥層の転送行列は超格子の単位周期のものとは異なる形をとる。これらの周期性を壊す要因を取り扱うために、グリーン関数法を用いた定式化を行い、その結果、局在振動モードの固有振動数を与える方程式を導出した。その式は少々複雑なので、ここでは数値例のみを示す。

### 3. 欠陥層が表面から十分離れている場合

はじめに、欠陥層が表面から十分に離れている場合を考える。無限大に離れた極限を考えると、欠陥層に局在した振動モードと表面局在モードが独立となる。Fig.2 には、GaAs/AlAs 超格子に対して計算した局在モードの固有振動数を欠陥層の厚さの関数としてプロットしてある。図に示した周波数領域は、第1周波数ギャップに対応している。

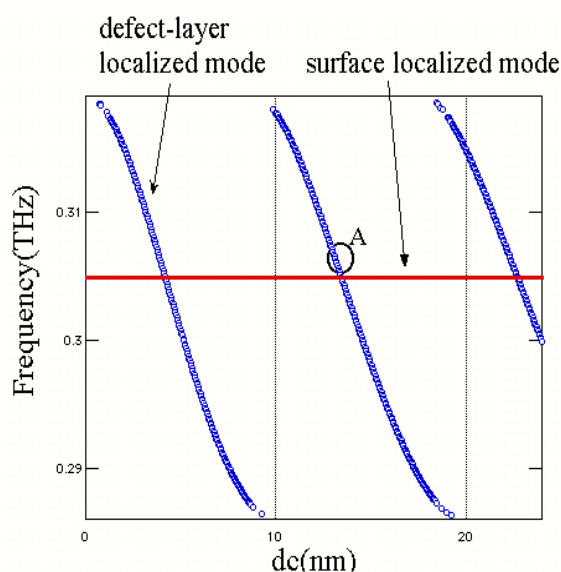
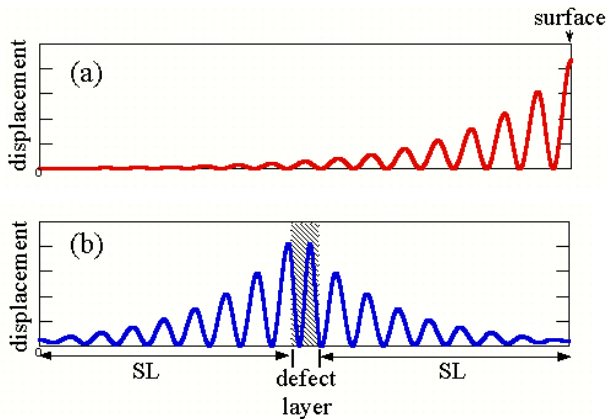


Fig.2 Eigenfrequencies of defect-layer and surface localized modes versus the width of the defect layer.

\* e-mail: mizuno@eng.hokudai.ac.jp

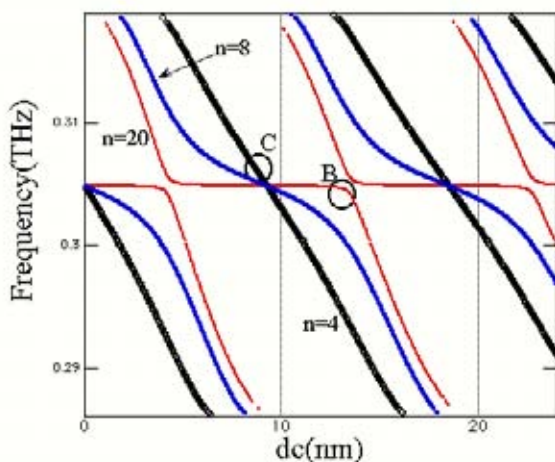
また、Fig.2 の A 点に対応するフォノン変位を Fig.3(b)に示すが、欠陥層に局在した振動モードであることがよくわかる。一方、欠陥層が表面から無限に離れている極限における、表面局在モードの固有振動数を Fig.2 に合わせて示した（水平な直線）。また、Fig.3(a)にフォノン変位を示すが、表面に局在している様子がよくわかる。



**Fig. 3** Phonon displacements for the localized modes: (a) surface localized mode; (b) defect-layer localized mode.

#### 4. 混成モード

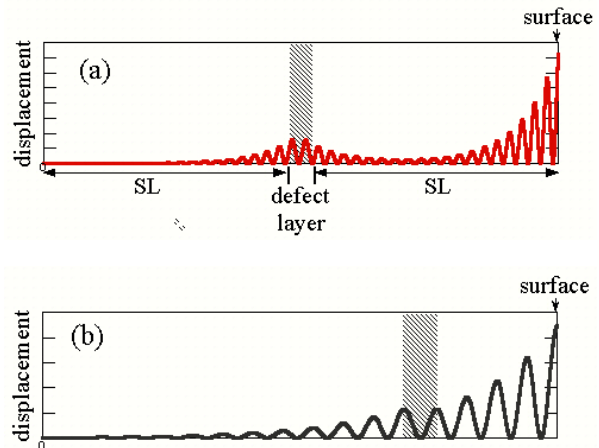
次に欠陥層を表面に近づけた場合を考える。表面と欠陥層の間に挟まれている周期数を  $n$  とし (Fig.1 参照)  $n=4, 8, 20$  の場合の局在モードの固有振動数を Fig.4 にプロットした。



**Fig.4** Eigenfrequency of the localized mode versus the width of the defect layer.

Fig.2 と比較すると、 $n$  が大きいときは欠陥層局在モードと表面局在モードそれぞれの特徴が残っていることがわかる。2本の曲線の交点近傍でのみ分裂が生じ、2つのモードの混成が見られる。Fig.4 のB点におけるフォノン変位

を Fig.5(a)に示すが、混成モードの特徴をはっきりと見ることができる。 $n$  を小さくしていくと、幅広い  $d_c$  の範囲で、2つのモードの相互作用が強まり、混成の度合いが大きくなっていくことがわかる。Fig.4 のC点におけるフォノン変位を Fig.5(b)に示す。



**Fig.5** Phonon displacements for the localized modes when (a)  $n=20$  and (b)  $n=4$ . The displacements (a) and (b) correspond to the points B and C shown in Fig. 4, respectively.

#### 5. おわりに

本研究では、真空に接し、かつ、欠陥層を有する超格子系に生じる局在振動モードについて理論的な解析を行った。ここでの取り扱いは、界面に垂直な方向の伝播に限られたものであったが、斜めに伝播する場合の計算が今後の課題である。

#### 謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金 (基盤研究(C)17510093) の助成を受けて行われた。

#### 引用文献

- [1] S. Mizuno, in *Recent Research Developments in Physics, Vol. 3* (Transworld Research Network, Kerala, 2002) p.379.
- [2] R. E. Camley, B. Djafari-Rouhani, L. Dobrzynski, and A. A. Maradudin, *Phys. Rev. B* **27** (1983) 1427.
- [3] S. Tamura, *Phys. Rev. B* **39** (1989) 1261.
- [4] H. T. Grahn, H.J. Maris, J. Tauc, and B. Abeles, *Phys. Rev. B* **38** (1988) 6066.
- [5] H. J. Trodahl, P. V. Santos, G. V. M. Williams, and A. Bittar, *Phys. Rev. B* **40** (1989) 8577.
- [6] M. Giehler, T. Ruf, M. Cardona, K. H. Ploog, *Physica B* **263-264** (1999) 489.

## FDTD法における弾性変数による解析領域と速度ポテンシャル変数による解析領域間の結合

### Implementation of Stress-velocity / Potential interface in the FDTD numerical analysis of elastic wave fields

○佐藤 雅弘

Masahiro Sato (Akita University)

#### 1. まえがき

これまで、著者らは固体・圧電体中の弾性波をFDTD法で解析する試みを進めてきた<sup>1,2</sup>。FDTD法は蛙飛び差分を利用した、非定常数値解析法である。その中で、等方性固体中では速度ポテンシャルを変数としても、弾性変数と同様に蛙飛び差分で解析できることを示した。その特徴を利用して、速度ポテンシャル変数を用いた吸収境界の実現法を報告した<sup>3</sup>。

一般にポテンシャルは、弾性変数の値から求める。しかし、弾性変数で計算する領域と最初からポテンシャル変数で計算する領域を設け、それらを結合する計算法も有効なものではないか。たとえば、散乱体の周囲はポテンシャル変数で直接計算すれば、散乱の様子が理解しやすい。更に、一度計算した弾性変数からポテンシャルを求めるよりも、直接計算した方が誤差は少ないと考えられる。

また、空間2次元面上では、ポテンシャル変数の計算は、スカラー波の扱いになる。したがって、計算アルゴリズムが簡単である。更に、電磁波解析を含むスカラー波のFDTD法におけるテクニックをそのまま導入できる。スカラー波においては、計算精度の向上、吸収境界の有効な設定法などかなり研究が進んでいる<sup>4</sup>。

本報告では、弾性変数とポテンシャル変数の両方を使った計算法において、互いの領域を結合するアルゴリズムについて述べる。

#### 2. 弾性変数とポテンシャル変数間の変換式

FDTD法では、変位ではなく粒子速度を変数とする。したがって、ポテンシャルも速度ポテンシャルとして計算すると都合がよい。

$$\dot{\mathbf{u}} = \text{grad } \phi + \text{rot } \mathbf{A} \quad (1)$$

ここで、 $\dot{\mathbf{u}} = (\dot{u}_1, \dot{u}_2, \dot{u}_3)$ は粒子速度、 $\phi$ はスカラー速度ポテンシャル、 $\mathbf{A} = (\phi_1, \phi_2, \phi_3)$ はベクトル速度ポテンシャルである。簡単のため、2次元  $x$ - $z$  面で議論する。すると式(1)は次のようになる。

$$\dot{u}_1 = \frac{\partial \phi}{\partial x} - \frac{\partial \phi_2}{\partial z} \quad (2)$$

$$\dot{u}_3 = \frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{\partial \phi_2}{\partial x} \quad (3)$$

これより次式が得られる。

$$\frac{\partial \dot{u}_1}{\partial x} + \frac{\partial \dot{u}_3}{\partial z} = \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} = \frac{1}{c_p^2} \frac{\partial^2 \phi}{\partial t^2} \quad (4)$$

$$-\frac{\partial \dot{u}_1}{\partial z} + \frac{\partial \dot{u}_3}{\partial x} = \frac{\partial^2 \phi_2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \phi_2}{\partial z^2} = \frac{1}{c_s^2} \frac{\partial^2 \phi_2}{\partial t^2} \quad (5)$$

但し、 $c_p = \sqrt{(\lambda + 2\mu)/\rho}$ 、 $c_s = \sqrt{\mu/\rho}$ 、であり  $\lambda$ 、 $\mu$  はラメの定数である。式(2)、(3)、(4)、(5)を書き直すと以下ようになる。

$$\frac{\partial \dot{u}_1}{\partial t} = \frac{\partial \dot{\phi}}{\partial x} - \frac{\partial \dot{\phi}_2}{\partial z} \quad (6)$$

$$\frac{\partial \dot{u}_3}{\partial t} = \frac{\partial \dot{\phi}}{\partial z} + \frac{\partial \dot{\phi}_2}{\partial x} \quad (7)$$

$$\frac{1}{c_p^2} \frac{\partial \dot{\phi}}{\partial t} = \frac{\partial \dot{u}_1}{\partial x} + \frac{\partial \dot{u}_3}{\partial z} \quad (8)$$

$$\frac{1}{c_s^2} \frac{\partial \dot{\phi}_2}{\partial t} = -\frac{\partial \dot{u}_1}{\partial z} + \frac{\partial \dot{u}_3}{\partial x} \quad (9)$$

但し、 $\dot{\phi} = \partial \phi / \partial t$ 、 $\dot{\phi}_2 = \partial \phi_2 / \partial t$  である。式(6)、(7)は速度ポテンシャルから粒子速度を、式(8)、(9)は粒子速度から速度ポテンシャルを求める式となる。いずれも空間、時間ともに1階の微

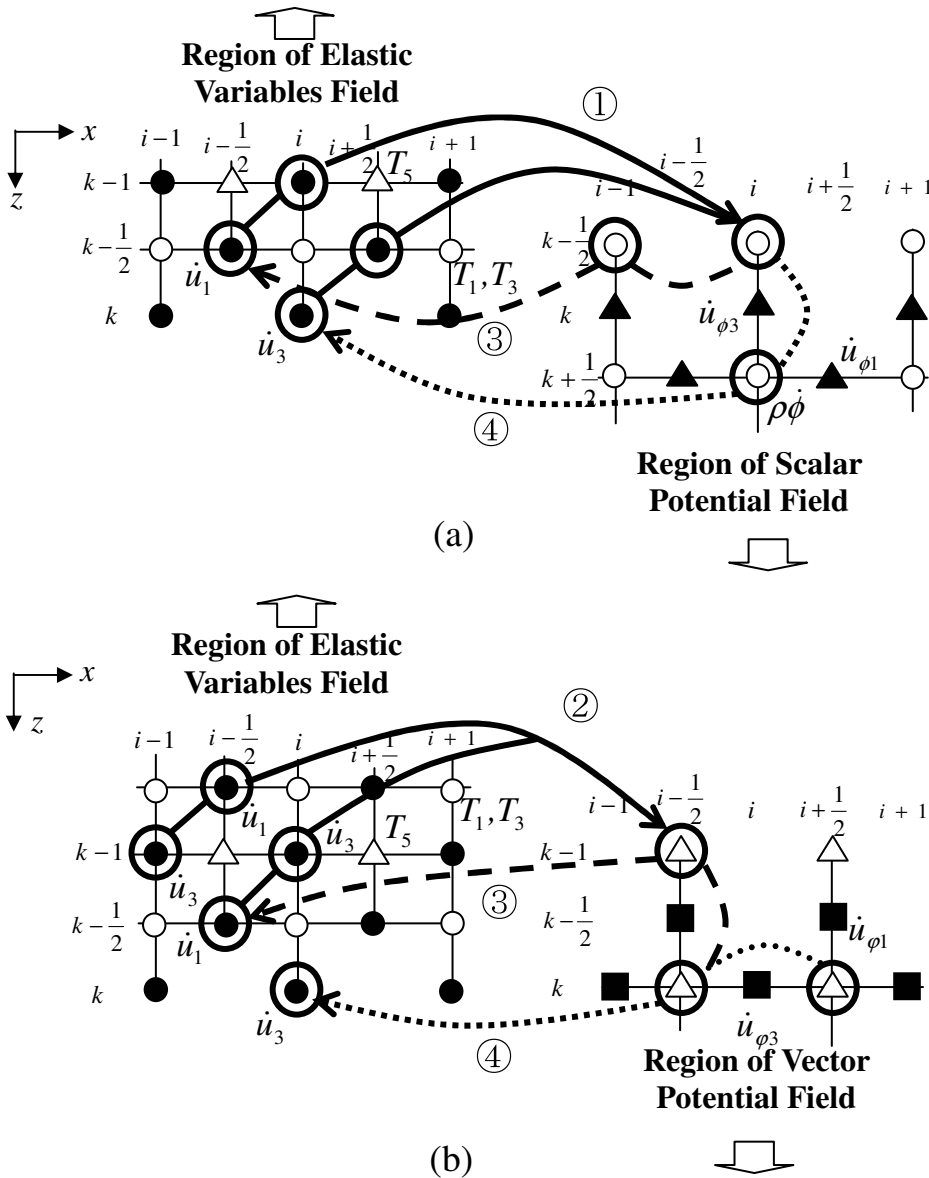


Fig. 1 Figures of the interpretation of the method to combine a region of elastic variables with a region of velocity potential variables.

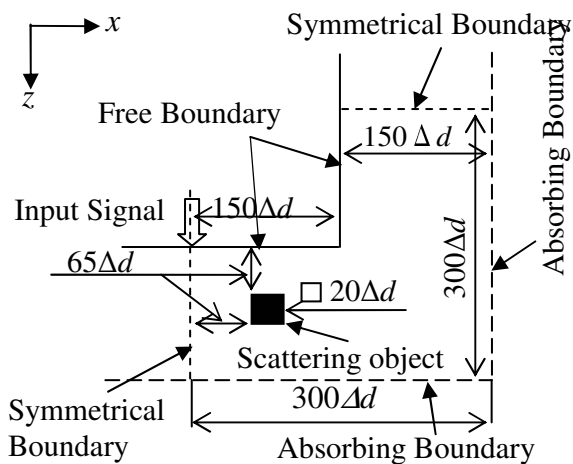


Fig. 2 Calculation model to introduce the effectiveness of the Stress-velocity / Potential interface. A plane strain condition is assumed.

分式であるから、蛙飛び差分で近似できる。

Fig. 1に弾性変数とポテンシャル変数の空間格子を示す。Fig. 1(a)の左図が弾性変数、右図がスカラー速度ポテンシャルである。一方、Fig. 1(b)の右図がベクトル速度ポテンシャルである。但し、 $i, k$ は $x$ 及び $z$ 方向の空間離散番号を示す。両図の左図は同じもので、 $T_1, T_3$ はそれぞれ $x$ および $z$ 方向の垂直応力、 $T_5$ はせん断応力である。また、

$$(\dot{u}_{\phi 1}, \dot{u}_{\phi 3}) = \text{grad } \phi \quad (10)$$

$$(\dot{u}_{\phi 1}, \dot{u}_{\phi 3}) = \text{rot } \mathbf{A} \quad (11)$$

とする。図では、 $z \geq k$ が速度ポテンシャル、 $z \leq k$ が弾性変数領域である。図の①では式(8)、②では式(9)を使って弾性変数からポテンシャル変数を、③、④はそれぞれ式(6)、(7)を使ってポテンシャル変数から弾性変数を求める。

### 3. 解析例

解析モデルを Fig. 2 に示す。(1)ほぼ全域を

弾性変数で解析し、吸収境界付近をポテンシャルで解析、(2)ほぼ全域をポテンシャルで解析し、自由境界付近を弾性変数で解析、(3)散乱体(断面が正方形の穴)のある部分の周辺をポテンシャル、他は(1)と同じ解析の3通りである。(1)、(2)では散乱体は除いてある。計算結果については、紙面に載せることが出来なかった。シンポジウム当日紹介する予定である。

### 引用文献

1. Y. Yamada and M. Sato: Jpn. J. Appl. Phys. **37** (1998) 255.
2. M. Sato: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4490.
3. M. Sato: Acoust. Sci. & Tech., **24** (2003) 415.
4. A. Taflov and S. C. Hagness: *Computational Electrodynamics 2<sup>nd</sup> Ed.*, Artech House, Boston, (2000).

# 単一矩形音源による反射波を利用する反射点探索

## Search of Reflection Point Utilizing Reflected Wave by Single Rectangular Sound Source

◎増山裕之(鳥羽商船高専・電子機械工)、水谷孝一(筑波大院・シス情工)  
Hiroyuki MASUYAMA (Toba Natl. Coll. Mar. Tech., Electro. Mech. Eng. Dept.) and  
Koichi MIZUTANI (Univ. Tsukuba, Grad. Sch. Sys. Info. Eng.)

### 1. はじめに

超音波による測定やイメージングにおいて、振動子アレイの要素として広く用いられる矩形トランスデューサは、四つの辺と頂点を持ち、それらの辺・頂点の影響により、音波の観測点の位置に応じて、空間インパルス応答の形状が極めて複雑に変化することが知られている<sup>1-7)</sup>。そのため、実際に音源を駆動して取得される波形の形状においても、観測点の位置に依存した変化が見られることとなる。

本報告においては、点反射体からの反射波に関して、反射点位置による波形の変化を用いることによって、単一の矩形音源で反射点の位置を探索することを目指している。次節以降で、探索の手法について述べるとともに、数値計算による確認を実施した結果を示す。

### 2. 探索手法

Fig. 1 は、一個の矩形音源と点反射体を含んだ座標系を示している。矩形音源は、 $z$  軸に垂直な平面に、音源の中心と座標軸の原点が一致するように配置される。音源の幅と高さは、各々、 $2a$ 、および  $2b$  ( $a \leq b$ ) とする。また、反射点は  $P(r)$  としており、次節以降の計算結果においては、音源中心からの距離  $|r|$ 、方位角  $\text{azim.}$ 、仰角  $\text{elev.}$  によって表現するものとする。

この矩形音源を速度  $v(t)$  で駆動したとき、 $P$  による反射によって音源で受信される出力  $e(r, t)$  は、 $k$  を比例定数、 $\rho$  を音波の伝搬媒質の密度、 $A$  を反射点の反射に寄与する面積、 $h(r, t)$  を音源の空間インパルス応答、 $*$  をコンボリューションとして、

$$e(r, t) = -\frac{kpA}{2c} v(t) * \frac{\partial}{\partial t} h(r, t) * \frac{\partial}{\partial t} h(r, t), \quad (1)$$

の形で表現することができる<sup>8)</sup>。

ここで、 $v(t)$  は既知であり、また、測定可能である反射波の立ち上がり時刻をもとに、 $|r|$  の値として取り得る範囲を推定することは可能である。その範囲内の適切な間隔で  $|r|$ 、 $\text{azim.}$ 、 $\text{elev.}$  を設定して  $h(r, t)$  を求め、順次、式(1)を計算し、先に取得された波形との相関をとる。これにより、反射点の位置  $r$  を推定することが可能となり、単一の矩形音源による反射点位置の探索が可能となる。

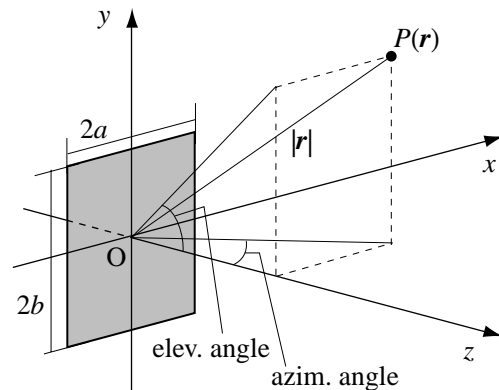


Fig. 1. Geometry of the coordinate system, a rectangular sound source and a reflection point  $P$ . The position of the reflection point  $P$  is represented by the distance from the center of the sound source,  $|r|$ , the azimuth angle and the elevation angle.

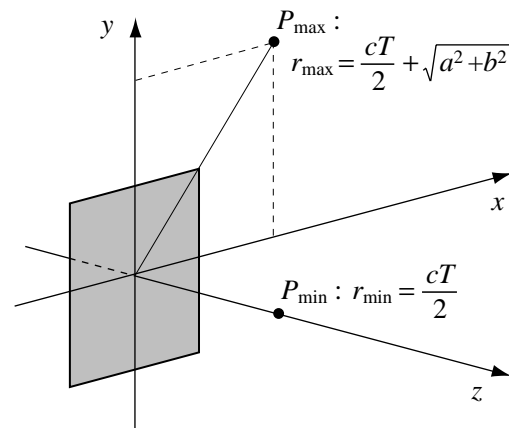


Fig. 2. Calculation range of the distance  $|r|$ . When the necessary time for the wave from sound source returning from the reflection point is  $T$ , the minimum possible value of  $|r|$  becomes  $r_{\min}$ , and the maximum possible value is  $r_{\max}$ .

### 3. 数値計算

Fig. 2 は、測定された反射波の立ち上がり時刻に対して、 $|r|$  の値として取り得る範囲を示したものである。立ち上がり時刻を  $T$  とし、音速を  $c$  とすると、音源面の任意の部分と  $P$  との距離は、 $cT/2$  となる。これを音源中心からの距離  $|r|$  に当てはめると、 $|r|$  の最小値と最大値は、各々、Fig. 2 の  $P_{\min}$ 、 $P_{\max}$  に  $P$

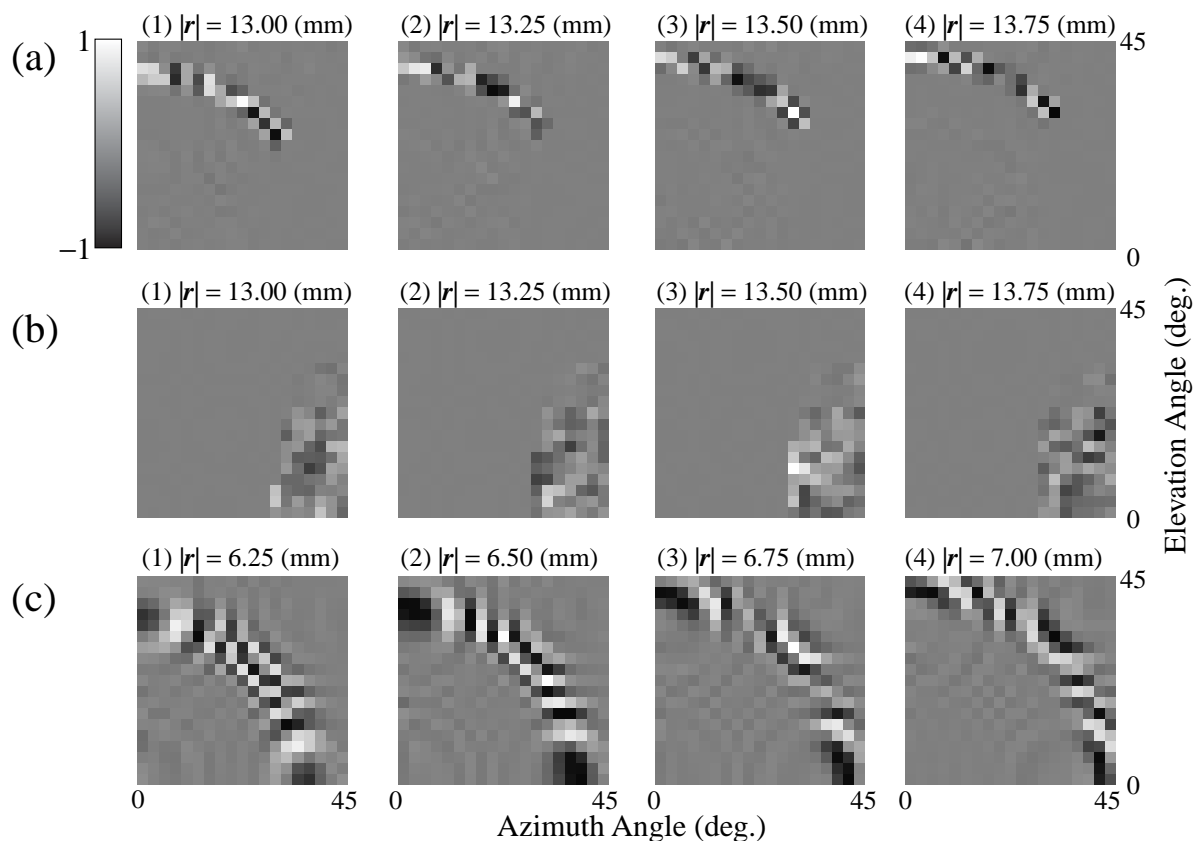


Fig. 3. Calculation results of cross-correlation coefficients;  $a = 6.45$  (mm),  $b = 10.05$  (mm). The position of the reflection point in each subfigure is (a)  $|r| = 13.50$  (mm), azim. = 30 (deg.), elev. = 30 (deg.), (b)  $|r| = 13.50$  (mm), azim. = 30 (deg.), elev. = 10 (deg.) and (c)  $|r| = 6.75$  (mm), azim. = 30 (deg.), elev. = 30 (deg.), respectively.

が位置する場合にとられるので、計算に用いる  $|r|$  の範囲としては、

$$\frac{cT}{2} \leq |r| \leq \frac{cT}{2} + \sqrt{a^2 + b^2}, \quad (2)$$

となる。

Fig. 3 は、予め設定した反射点、およびその周辺に関して、式(1) の  $v(t) * (\partial/\partial t)h(\mathbf{r}, t) * (\partial/\partial t)h(\mathbf{r}, t)$  を計算し、反射点における計算結果との、時刻 0 における相互相関係数を数値計算することによって、上述の手法による探索が可能であるかを確認した結果である。

計算においては、三箇所違った反射点位置を設定しており、 $|r|$  の計算間隔は 0.25 mm、azim.、elev. の計算間隔は 2.5 deg. とし、0 ~ 45 deg. の範囲で計算をおこなっている。ただし、反射点から音源面に下した垂線が  $x \geq 0$ 、 $y \geq 0$  に位置する場合のみを考慮するものとする。

Fig. 3 より、(a)、(b) においては、各々反射点として設定した位置において、最も大きい相関係数が得られ、反射点の位置が探索されている様子がみられるが、(c) においては、反射点として設定した位置以外においても大きい値が表れる箇所が見られている。

#### 4. むすび

単一の矩形音源を用いた音波の反射点の探索について、その手法を示し、数値計算による確認を試みた。計算結果より、反射点の位置が探索されている様子が見られたが、設定した反射点の位置によっては、探索が上手くできない場合があった。反射点の位置、音源のアスペクト比等、探索が上手い条件について、今後更に精査を実施し、対策を検討するとともに、単一、あるいは少数要素のトランスデューサによる空間中の音源位置推定への発展の可能性の検討を行っていく。

#### 参考文献

- 1) J. C. Lockwood and J. G. Wille: J. Acoust. Soc. Am. **53** (1973) 735.
- 2) G. Scarano, N. Denisenko, M. Matteucci and M. Pappalardo: J. Acoust. Soc. Am. **78** (1985) 1109.
- 3) J. L. San Emeterio and L. G. Ullate: J. Acoust. Soc. Am. **92** (1992) 651.
- 4) T.-J. Teo: IEEE Trans. Ultrason., Ferroelectr. & Freq. Control **45** (1998) 76.
- 5) H. Masuyama, K. Nagai and K. Mizutani: J. Acoust. Soc. Jpn. **56** (2000) 488 [in Japanese].
- 6) H. Masuyama, K. Nagai and K. Mizutani: Jpn. J. Appl. Phys. **39** (2000) 3144.
- 7) H. Masuyama, K. Nagai and K. Mizutani: Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) 3188.
- 8) J. P. Weight and A. J. Hayman: J. Acoust. Soc. Am. **63** (1978) 396.

# ウェーブ・デジタルフィルタの手法を用いた イオン音波散乱の解析

## Analysis of Scattering for Ion Acoustic Waves Using Technique of Wave Digital Filters

宇都宮 俊男 (防衛大学校 通信工学科)

Toshio Utsunomiya (National Defense Academy, Dept. of Communications Engineering)

### 1. まえがき

イオン音波はプラズマ中に生起する波であるので、その伝播についてはプラズマ方程式系を基礎にして理論的に取扱うことができる。流体理論によるプラズマ方程式系は Maxwell の方程式系と Euler の方程式系という一階偏微分方程式系によって記述される。簡単な一階常微分方程式は単に積分するだけで解を求められるが、偏微分方程式の場合には単純にはいかない。しかし、微分操作を演算子と考える信号処理の立場では、逆の演算子を考えることで実現可能である。ウェーブ・デジタルフィルタ(WDF)[1]を用いてこの手法を適用すると、偏微分方程式を数値的に積分することができる[2]。それには偏微分方程式を等価電気回路に変換しなくてはならない。これをデジタル領域に変換することにより、アルゴリズムが得られる。前回この厳密な取扱いを示したが[3]、イオンと電子の大幅な質量差により膨大な計算時間を要した。

今回、一流体近似を用いることによりイオン音波の散乱パターンを容易に求めることが可能となった。

### 2. 基礎方程式と一流体近似

流体理論によるプラズマの方程式は Maxwell の方程式系と Euler の方程式系、連続の方程式および状態方程式とから成る。

さて低周波の場合、電子とイオンは殆ど一体となって運動するため、電子流体とイオン流体に関する Euler の方程式[3]を辺々加え、 $m_e/m_i$  を考慮するとイオン流体の Euler の式とほぼ同等の式を得ることができる。

従って、方程式は以下のように与えられる。

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial(\mathbf{e}_0 \mathbf{E})}{\partial t} + ne\mathbf{v}_i \tag{1}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial(\mathbf{m}_0 \mathbf{H})}{\partial t} \tag{2}$$

$$m_i n \left( \frac{\partial \mathbf{v}_i}{\partial t} + (\mathbf{v}_i \cdot \nabla) \mathbf{v}_i \right) + \nabla p_i = ne [\mathbf{E} + \mathbf{v}_i \times (\mathbf{m}_0 \mathbf{H})] \tag{3}$$

$$\frac{\partial(m_i n)}{\partial t} + \nabla \cdot (m_i n \mathbf{v}_i) = 0 \tag{4}$$

$$p_i = C_0 (m_i n)^k \tag{5}$$

ここで、 $m_i, p_i, \mathbf{v}_i, e, k$  はイオン(流体)の質量、圧力、速度、電荷、比熱比であり、 $n$  は電子とイオンの数密度を表している。

### 3. 等価キルヒホッフ回路

すべての物理変数を電流とみなし、偏微分方

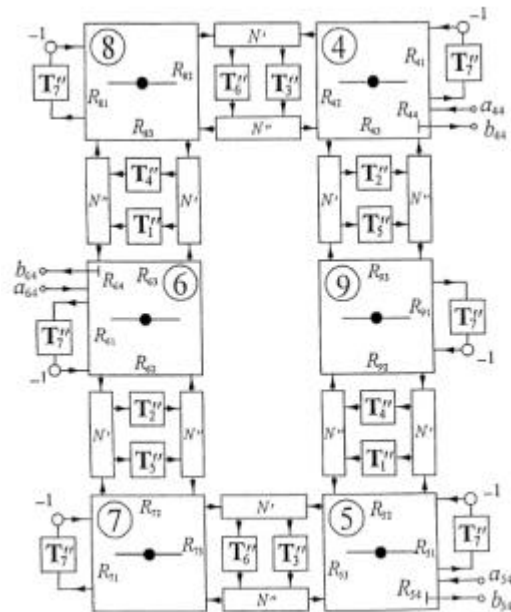


Fig. 1 Wave-flow graph for a system of Maxwell's equations.

程式で表された基礎方程式が Kirchhoff の第二法則を表していると考え、微分演算子をインダクタンスで置き換えることにより、Maxwell の方程式、Euler の方程式は等価 Kirchhoff 回路に変換される [3]。

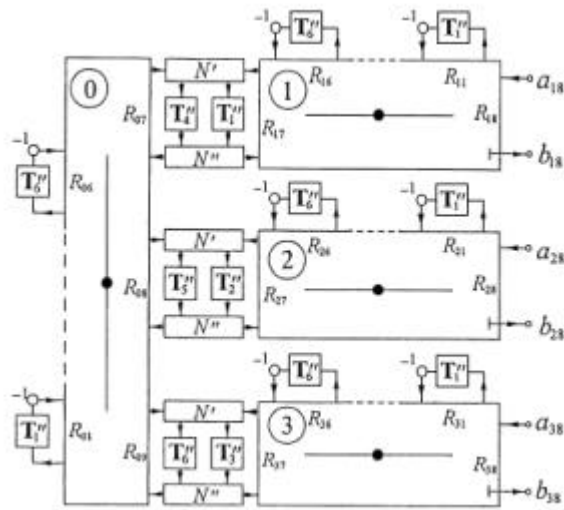


Fig. 2 Wave-flow graph for a system of Euler's Equations.

#### 4. ウェイブフロー・グラフ

WDFの手順に従って、これらの Kirchhoff 回路をデジタル領域に変換したものが、ウェイブフロー・グラフである。Fig. 1 が Maxwell の方程式に対するウェイブフロー・グラフであり、Fig. 2 が Euler の方程式に対するウェイブフロー・グラフである。二つのウェイブフロー・グラフを結合したものは数値計算のアルゴリズムそのものであるので、これを用いて容易に数値計算をすることができる。

#### 5. 散乱パターン

Fig. 3 のように導体円柱を磁化プラズマ中に配置し、左方より低周波の電磁波を入射させる。この電磁波により励起されたイオン音波の導体柱による散乱パターンを示したのが Fig. 4 である。

電子温度 2000K、イオン温度 300K、また電子とイオンの密度は共に  $1.00 \times 10^{14} \text{ [ m}^{-3} \text{ ]}$ 、考察範囲  $3 \times 3$ 、円柱の半径  $a: ka=1$  とした。本方法は過渡現象や時変化現象の解析にむいているが、安定状態に入ってから定常状態の解析にも用いることができる。

従って、伝播するイオン音波に対して導体柱の表面から 1.32 の距離の円周上で、一周りにわたって電界の再標本化を行い、散乱パターンの計算を行った。散乱体の近傍にもかかわらず

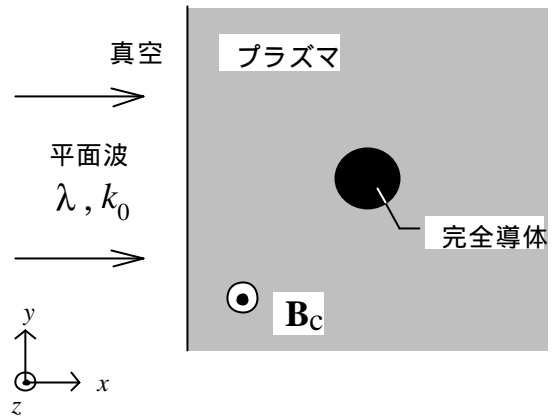


Fig.3 Geometry of the problem.

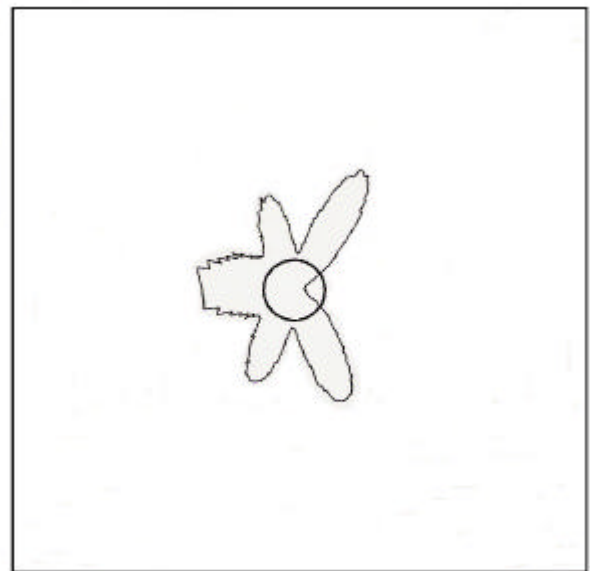


Fig.4 Scattering pattern of ion acoustic wave against conductor cylinder.

興味ある結果が得られた。

#### 6. むすび

ウェイブ・デジタルフィルタの手法を用い、かつイオン音波を取扱うのに一流体近似を用いることで、従来方法では容易に得られなかった導体円柱近傍の散乱パターンを比較的短時間の計算で得ることができた。

#### 引用文献

- [1]A. Fettweis: Arch. Elek. Uebertragung, **25** (1971) 79.
- [2]H. D. Fischer: utz Archiv, **6** (1984) 37.
- [3]宇都宮 俊男:Proc. Symp. Ultrason. Electron., Vol. 24, (2003), pp.3-4.

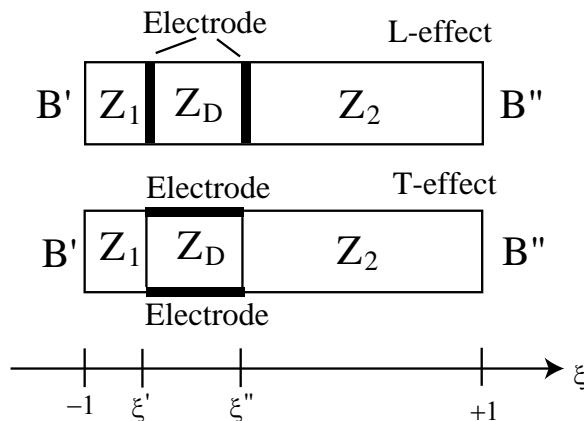
## Estimation of Electromechanical Coupling Capacitance Ratio from Frequency Characteristics of Admittance with Various Resonance Patterns

Michio Ohki, *Natl. Def. Acad., Japan*

### 1. Introduction

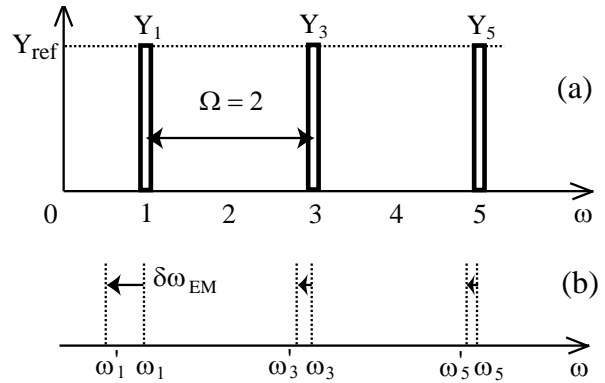
In piezoelectric transducers shown in **Fig. 1**, the electromechanical coupling coefficient  $k^2$  can be estimated from the measurement of resonance frequency  $\omega_R$  and anti-resonance frequency  $\omega_A$  electrically observed only at the fundamental mode ( $n=1$ ), if the boundary condition and the resultant frequency characteristics are so simple as shown in **Fig. 2**.

However, in general cases shown in **Fig. 3**, the estimated value of  $k^2$  using the above-mentioned measurement loses its clear physical meaning. In this study, instead, another method for estimating one of the degree of electromechanical coupling, the *capacitance ratio*  $C/C_0$ , from the data of *resonance intensities*  $Y_n$  as well as the values of  $\omega_R$  and  $\omega_A$  observed for not only the modes of  $n=1$  but also that of  $n > 1$ . Here we mean that  $C_0$  is a dielectric component that appears in Mason's circuit, and that  $C$  is a total elastic component also considered equivalently in Mason's circuit.

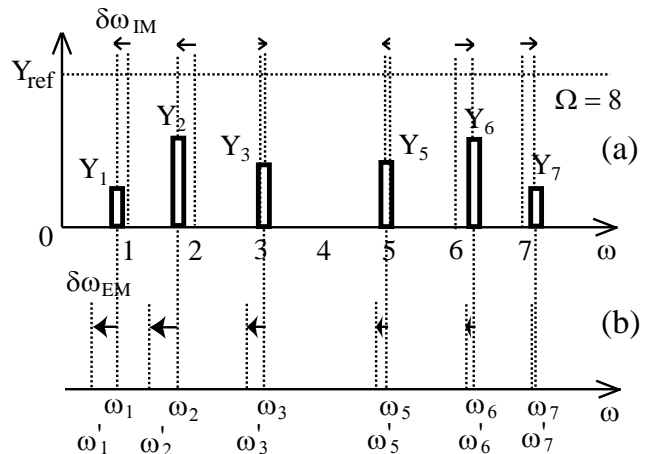


**Fig. 1** Piezoelectric transducers treated in this study.  $\xi$  is a coordinate on a propagation-time basis. Mechanical impedance inside the transducer is denoted by  $Z_i$ .  $B'$  and  $B''$  denote mechanical boundaries, being set free or clamped.

E-mail: michio\_ohki@ieee.org



**Fig. 2** Resonance pattern in the frequency ( $\omega$ -) domain under the condition of  $(\xi', \xi'') = (-1, +1)$  and  $(B', B'') = (\text{free}, \text{free})$ . (a) In an intrinsic state, the resonances occur at  $\omega = 1, 3, 5, \dots$  (normalized) with resonance intensities  $Y_1 = Y_3 = Y_5 = \dots = Y_{ref}$ .  $\Omega$  is the "period" of the total resonance pattern.<sup>1)</sup> (b) In an electromechanically coupled state, the resonance frequencies of the system are shifted by  $\delta\omega_{EM}$ . For L-effect,  $\delta\omega_{EM} < 0$ , with  $\omega_n$  corresponding to  $\omega_A$ , and  $\omega'_n$  to  $\omega_R$ , both electrically observed. On the other hand, for T-effect,  $\delta\omega_{EM} > 0$ , with  $\omega_n$  and  $\omega'_n$  corresponding to  $\omega_R$  and  $\omega_A$ , respectively.



**Fig. 3** An example of various resonance patterns under general boundary conditions. (a) The groups with the resonance intensities of  $\{Y_1, Y_7\}$ ,  $\{Y_2, Y_6\}$  and  $\{Y_3, Y_5\}$  each constitutes a different resonance pattern.  $\Omega = 8$ , in this example. Because of the mechanical impedance mismatch inside the transducer, the resonance frequencies are shifted by  $\delta\omega_{IM}$  even in an intrinsic state.<sup>1)</sup> (b) In a coupled state, those frequencies are shifted furthermore by  $\delta\omega_{EM}$ .

## 2. Principle of Estimating Capacitance Ratio in General Cases with Various Resonance Patterns

We define the quantity  $r_n$  as

$$r_n = \left| \Delta(\omega_n^2) \right| \times \hat{Y} / Y_n, \quad (1)$$

where

$$\Delta(\omega_n^2) \equiv \omega_n^2 - (\omega_n')^2, \quad \hat{Y} \equiv \sum_{n=1}^{\infty} Y_n / \omega_n^2, \quad (2)$$

and we suggest that

$$r_n \approx C / C_0, \quad (3)$$

for  $C/C_0 \ll 1$ .

As a calculation example, let us investigate the transducer with the following condition #1:

#1  $(\xi', \xi'') = (-3/4, -1/4)$ ,  $(B', B'') = (\text{free}, \text{free})$ ,  
 $(Z_1, Z_D, Z_2) = (2, 1, 2)$  and  $C/C_0 = 0.1$  for  
L-effect,

which leads to the results shown in **Table I**.

**Table I** Calculation results of  $r_n$  for #1.

$n$	$\omega_n$	$\omega_n'$	$Y_n/Y_{\text{ref}}$	$r_n$
1	0.9542	0.9300	0.13065	0.10764
2	1.7987	1.7684	0.33127	0.10063
3	3.0288	3.0178	0.20434	0.10039
5	4.9714	4.9644	0.20434	0.10498
6	6.2014	6.1925	0.33127	0.10270
7	7.0461	7.0425	0.13065	0.11973

In this case, the total resonance pattern has the period of  $\Omega = 8$  in the  $\omega$ -domain, and  $\hat{Y}/Y_{\text{ref}} \sim 0.308425$ . We find that eq. (3) holds especially for  $n = 2$  and 3. (The error for  $n = 1$  is thought of as being caused by the influence of “residual” elastic components mainly for  $n = 2$  and 3.)

For reference, we investigate the following “standard boundary condition” #0:

#0  $(\xi', \xi'') = (-1, +1)$ ,  $(B', B'') = (\text{free}, \text{free})$ ,  
 $Z_D = 1$  and  $C/C_0 = 0.1$  for L-effect,

which leads to the results shown in **Table II**, for which  $\hat{Y}/Y_{\text{ref}} = \pi^2/8 \sim 1.23770$  is used. ( $\pi^2/8$  is also the conventional multiplication factor for calculating  $k^2$ .)

**Table II** Calculation results of  $r_n$  for #0.

$n$	$\omega_n$	$\omega_n'$	$Y_n/Y_{\text{ref}}$	$r_n$
1	1	0.9577	1	0.10216
3	3	2.9864	1	0.10044
5	5	4.9918	1	0.10108
7	7	6.9940	1	0.10359

## 3. Treatment of Dissipation and Truncation in Frequency Domain

The frequency dependence of *dissipation* was not considered in the above discussion. Here we investigate the following quantity  $Y_{n(\alpha)}$  instead of  $Y_n$ ,

$$Y_{n(\alpha)} = Y_n \omega_n^{-\alpha}, \quad (4)$$

and calculate the quantity defined by

$$R_{n(\alpha)} = \frac{|\Delta(\omega_n^2)|}{\omega_n^2} \times \frac{1}{Y_{n(\alpha)}}. \quad (5)$$

**Table III** shows the calculation results of  $R_{n(\alpha)}$  on condition #1 for  $\alpha = 1.8, 2.0$  and  $2.2$ . We find that the *variance*  $\sigma^2$  of the data with regard to  $n = 1$  to 5 becomes the minimum at  $\alpha \sim 2.0$ .

**Table III** Calculation results of  $R_{n(\alpha)}$  for #1 and their variance  $\sigma^2$  with regard to  $n = 1$  to 5.

$n$	$R_{n(\alpha)}$		
	$\alpha = 1.8$	$\alpha = 2.0$	$\alpha = 2.2$
1	0.35229	0.34900	0.34575
2	0.29013	0.32627	0.36692
3	0.26080	0.32550	0.40627
5	0.24698	0.34037	0.46908
$\sigma^2$	0.00164	0.000098	0.00220

Therefore, we can estimate the value of  $\alpha$  unknown in advance. Multiplying the “actual” characteristics  $Y_{n(\alpha)}$  by a factor  $\omega_n^{-\beta}$  for each  $n$  and changing the value of  $\beta$ , we seek such as to *minimize* the variance of  $R_{n(\alpha)}\omega_n^\beta$  with regard to  $n$ , from which we recognize that  $\alpha \sim 2 - \beta$ . The estimate of  $\alpha$  leads to that of  $Y_n$  from eq. (4).

In order to obtain the value of  $r_n$ , we must estimate the value of  $\hat{Y}$  as well as  $Y_n$ , which requires the summation over  $n = 1$  to infinity, as in eq. (2). However, we can usually observe only a finite number of resonance modes, from which the total resonance pattern must be inferred. This inference can be performed to some degree by utilizing the mathematical properties of resonance patterns described in ref. 1. Even if the truncated components of  $Y_n$  for  $n \gg 1$  are mistakenly inferred, those components as a whole almost successfully compensate for the lack of  $\hat{Y}$ .

1) M. Ohki: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4509.

2) T. Ikeda: *Fundamentals of Piezoelectricity*, (Oxford University Press, Oxford, 1990) p.147.

群遅延を用いた薄層材料に入射するパルスの  
反射波及び透過波の解析について

Analysis of reflected and transmitted waves of ultrasonic pulses  
incident on thin films using group delay concept

菅澤 忍 ((独)海上技術安全研究所)

Shinobu Sugasawa (National Maritime Research Institute.)

1. はじめに

薄層材料には、材料の表面にコーティングすることによって新しい機能の付加や、接触媒質や接着剤のように材料同士の接合など様々な応用がある。例えば、著者は超音波計測のために三層からなる接触媒質の使用を試みた<sup>1)</sup>。また、バルクで観察するのが難しい材料を薄層化して観察することもある。このような薄層材料を音響的観点から分析するために、筆者は群遅延を用いる方法を提案した<sup>2)</sup>。その結果、薄層材料は分散を持った媒質として捉えられることを示した。そのときは、母材-層-空気という系を仮定したが、本稿ではこの方法を、より一般的な系の場合に拡張した結果について報告する。

2. 解析法

まず、 $N$  個の密着した層からなる薄層材料が半無限に広がる2種の均質な媒質に挟まれた系を考える (Fig.1) どの境界面も平行な平面かつどの媒質にもエネルギーの吸収および分散はないと仮定する。そして、層に垂直に縦波または横波の平面波が入射したときの反射と透過を求める。このような系を解析する方法として、層内での多重反射を直接計算することによって求める方法があるが、ここでは、後の拡張を考慮して光学で用いられている特性行列<sup>3)</sup> の考え方に基づいた方法を用いる。

波動理論より、ある厚さ  $d$  の層内での波動は、

$$f(x, t) = Ae^{i(\omega t - kx)} + Be^{i(\omega t + kx)} \quad (1)$$

と表すことができる。対応する応力  $\sigma$  は、弾性定数を  $C$  として、 $\sigma(x, t) = C\partial f(x, t)/\partial x$  なので、

$$\sigma(x, t) = -ikC [Ae^{i(\omega t - kx)} - Be^{i(\omega t + kx)}] \quad (2)$$

となる。これより、 $f(0, t)$ ,  $\sigma(0, t)$  と  $f(d, t)$ ,  $\sigma(d, t)$  の関係は以下ようになる (簡単のため  $t$  は省略する)

$$\begin{pmatrix} f(0) \\ \sigma(0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos kd & -(kC)^{-1} \sin kd \\ kC \sin kd & \cos kd \end{pmatrix} \begin{pmatrix} f(d) \\ \sigma(d) \end{pmatrix}$$

これは、

$$A(\alpha) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \alpha \end{pmatrix}, R(\theta) = \begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix}$$

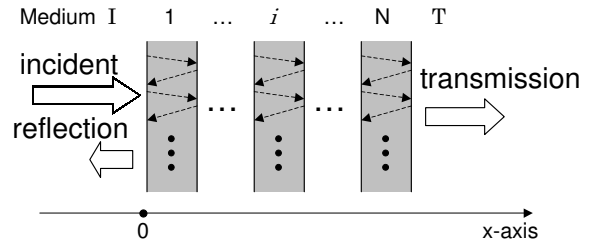


Fig.1 Schematic diagram of analysis of reflection and transmission of incident waves from thin layers.

とおけば、

$$\begin{pmatrix} f(0) \\ \sigma(0) \end{pmatrix} = A(kC) R(kd) A^{-1}(kC) \begin{pmatrix} f(d) \\ \sigma(d) \end{pmatrix} \quad (3)$$

と表すことができる。なお、 $kd$  はその層固有の音速  $v$  で厚さ  $d$  を伝搬したときの伝搬時間を  $\Delta\tau (= d/v)$  としたとき  $\omega\Delta\tau$  に等しい。

次に入射領域 (媒質  $I$ ) と透過領域 (媒質  $T$ ) の関係を求める。各媒質に関する物性値を各媒質を指定する添え字で表すことにし、 $\sigma$  を  $\tilde{\sigma}(x) = \sigma(x)/kC$  と正規化を行う。各境界面で振幅と応力が連続であることに注意すると、

$$\begin{pmatrix} f_I(0) \\ \tilde{\sigma}_I(0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} p & q \\ r & s \end{pmatrix} \begin{pmatrix} f_T(D) \\ \tilde{\sigma}_T(D) \end{pmatrix} \quad (4)$$

が得られる。ただし、 $Z$  を音響インピーダンスとして、

$$\begin{pmatrix} p & q \\ r & s \end{pmatrix} = A^{-1}(Z_I) \cdot \prod_{m=1}^N A(Z_m) R(\omega\Delta\tau_m) A^{-1}(Z_m) \cdot A(Z_T) \equiv M(\omega) \quad (5)$$

である。ここで、 $k_m C_m / k_n C_n = Z_m / Z_n$  を用いた。なお、 $|M(\omega)| = pq - rs = Z_T / Z_I$  である。また、上述のことより、各媒質の音響インピーダンスを定数倍しても、 $M(\omega)$  は不変であることがわかる。

次に入射波として、 $f_I(x, t) = \cos(\omega t - k_I x)$  が与えられたとし、対応する反射波、透過波をそれぞれ、

$$f_R(x, t) = R(\omega) \cos(\omega t + k_I x - \phi(\omega)), \quad (6)$$

$$f_T(x, t) = T(\omega) \cos(\omega t - k_T x - \varphi(\omega)) \quad (7)$$

とあくと、式 (4) ~ (6) から

$$R(\omega) = \sqrt{\frac{(p-s)^2 + (q+r)^2}{(p+s)^2 + (q-r)^2}}, \quad (8)$$

$$T(\omega) = \frac{2}{\sqrt{(p+s)^2 + (q-r)^2}}, \quad (9)$$

$$R(\omega)^2 + (pq - rs)T(\omega)^2 = 1, \quad (10)$$

および

$$\varphi(\omega) = \tan^{-1} \frac{2(pr + qs)}{p^2 + q^2 - r^2 - s^2}, \quad (11)$$

$$\phi(\omega) = \tan^{-1} \frac{r - q}{p + s} \quad (12)$$

が導かれる。反射波の入射波の  $x = 0$  における位相を基準にしたときの群遅延時間は、 $\Delta\tau_g^R(\omega) = d\varphi(\omega)/d\omega$  によって求めることができる。同様に透過波に対しては、 $\Delta\tau_g^T(\omega) = d\phi(\omega)/d\omega$  となる。

### 3. 解析例 ( $N = 1$ の場合)

上記の理論の応用として、1枚の薄層材料がある場合を扱うことにする。ここで簡単のため、

$$\alpha = Z_1/Z_I, \quad \beta = Z_T/Z_1,$$

$$\Gamma(\omega) = (1 + \alpha^2)(1 + \beta^2) + (1 - \alpha^2)(1 - \beta^2) \cos 2\omega\Delta\tau$$

とあくと、式 (8) ~ (12) より結果は以下ようになる：

$$R(\omega)^2 = \frac{\Gamma(\omega) - 4\alpha\beta}{\Gamma(\omega) + 4\alpha\beta}, \quad (13)$$

$$T(\omega)^2 = \frac{8}{\Gamma(\omega) + 4\alpha\beta}, \quad (14)$$

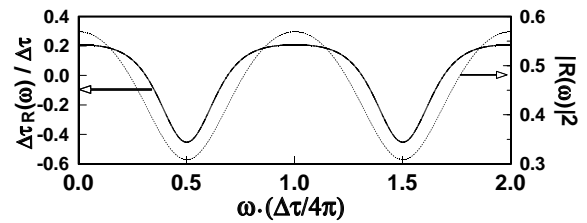
$$\Delta\tau_g^R(\omega) = 4\alpha \frac{(1 + \beta^2)\Gamma(\omega) - 4\beta^2(1 + \alpha^2)}{[\Gamma(\omega) - 4\alpha\beta][\Gamma(\omega) + 4\alpha\beta]} \Delta\tau, \quad (15)$$

$$\Delta\tau_g^T(\omega) = \frac{2(1 + \alpha\beta)(\alpha + \beta)}{\Gamma(\omega) + 4\alpha\beta} \Delta\tau. \quad (16)$$

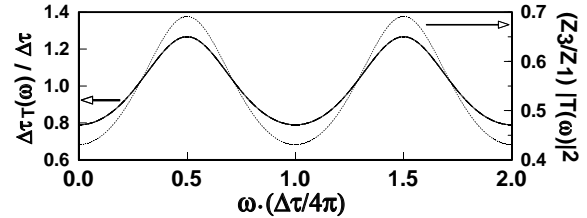
これらの結果は、当然のことながら多重反射を考慮して直接計算した結果<sup>4)</sup>と一致する。 $Z_T = 0$  ( $\beta = 0$ ) の場合<sup>2)</sup>に較べて、反射・透過率、群遅延とも複雑な振る舞いをしていることがわかる。上記の値の周期性や最大・最小値についてはすでに述べているので<sup>4)</sup>、ここでは特異な振る舞いをする場合について論じる。

### 4. 考察 - 群速度の異常 -

透過波の群遅延は常に正であるが、反射波の群遅延はゼロにも負になりうる。もし  $\alpha < 1$  ならば、 $\beta = 1$  を除く  $\alpha < \beta < 1/\alpha$  の範囲で群遅延がゼロ以下になる領域が現れる。一例として、 $\alpha = 0.2$  および  $\beta = 0.7$  の場合を Fig.2 に示す。群速度  $v_g$  は、群遅延  $\Delta\tau_g$  に反比例するので、 $\Delta\tau_g = 0$  なら  $v_g$  は無限大に、 $\Delta\tau_g < 0$  なら  $v_g$  は負になる。群速度は、エネルギーの伝搬速度に等しいと考えられているから<sup>5)</sup>、これらの結果は奇妙に思える。



(a) reflected wave



(b) transmitted wave

Fig.2 group delays of reflected and transmitted waves overplotted with reflection and transmission rates, respectively ( $N=1$ ,  $\alpha = 0.2$  and  $\beta = 0.7$ ).

さらに、 $Z_I = Z_T$  ( $\alpha = \beta$ ) または  $Z_1^2 = Z_I Z_T$  ( $\alpha\beta = 1$ ) の場合には、 $R(\omega)$  がゼロになる  $\omega$  が存在するが、この近傍では反射波の群遅延は  $\pm\infty$  に発散してしまう。

一方、透過波の群遅延時間は、 $\Delta\tau$  に対して大きくも小さくもなりうる。 $\Delta\tau_g^T(\omega) < \Delta\tau$  の場合は、今述べた群速度の性質から考えると、透過エネルギーの伝搬速度が層固有の音速より速いことを意味する。これも奇妙に振る舞いである。例えば、 $\delta$  関数型のパルスが  $x$  軸の正の方向に進む状況を考える。これが層に到達した後、層内で多準反射を繰り返しながら、媒質  $T$  へパルス列となって出ていく。このとき透過する最初のパルスは層を通過するのに、少なくとも  $\Delta\tau$  の時間だけかかるため、この結果は群速度の通常の概念とは異なったものである。

これらの結果が得られた背景には、層内に入射する波動は通常の波動の伝搬とは違い、境界面に到達するごとに透過波と反射波とに分裂してしまうことが挙げられると思う。そして、このような過程を層内で無限に繰り返した後、層を抜けてから再合成され一つの波になるという複雑な作られ方をしている。これが群速度の異常な振る舞いが生じる原因の一つと考えられる。また、薄層材料中の波動の伝搬を扱う際には、群速度がエネルギーの伝搬速度に等しいという一般的な捉え方も再考する必要があるかもしれない。

### 参考文献

- 1) S. Sugawara: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4301.
- 2) S. Sugawara: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 3109.
- 3) M.ポルン, E.ウォルフ: 光学の原理 第1巻, 東海大学出版会, (1974) p83.
- 4) 菅澤忍: 日本音響学会講演論文集 (2004.3) 1013.
- 5) L. Brillouin: *Wave Propagation in Periodic Structures* (Dover, New York, 1953) p.69.

# 漏洩ラム波結合モードにおける負の群屈折

Negative group refractions in coupling modes of leaky Lamb waves

©山本健(小林理研)

Ken Yamamoto (Kobayasi Institute of Physical Research)

## 1. はじめに

フォトニック結晶は、光を自在に制御できる光ナノ構造として、現在、大きな注目を集めている。周期的な屈折率分布に起因したフォトニックバンド構造のギャップ、バンド端及び透過バンドに対して、各種のエンジニアリングを施すことにより、様々な光の制御が可能となる。例えば、光伝搬が可能な透過バンドにおいては、光の伝搬速度を極端に遅くする“群速度制御”<sup>[1]</sup>や、光の伝搬方向を自由に制御する“光伝搬角制御”<sup>[2]</sup>等が応用に向けて盛んに研究されている。音響分野においては、ソニック結晶やフォノン結晶として、導波路や周波数フィルタ等を目的とした研究例が多数ある。本研究は、層構造における漏洩ラム波結合モードの分散関係を利用した“音の伝搬方向制御”を目標としている。特に、特定のモードのカットオフ周波数近傍において実現できる負の群屈折現象は、フラットレンズ等の音響デバイスへの応用が期待できる。また、工学的な応用面だけではなく、物理現象として非常に興味深い。

理論的な解析を行うことにより、固体/液体/固体の3層構造における漏洩ラム波結合モードの負の群屈折現象の存在を確認した。周波数と液層の厚みを変化させることで、負の屈折率比をコントロールすることができる。負の屈折現象は、群速度が負の値をとることに起因している。漏洩ラム波結合モードにおける群速度は、弾性平板単体を伝搬するラム波の群速度より負に大きい値をとることが可能である。また、ストロボ光弾性法を用いて、漏洩ラム波結合モードにおける負の群屈折現象をスローモーションで可視化したので報告する。

## 2. 理論的解析

**Fig. 1** に、解析に用いた固体/液体/固体の3層構造のウェーブガイドを示す。ここでは、固体平板の厚みを  $d$  ( $z$  方向)、液体層の厚みを  $d_F$ 、固液結合モードの伝搬方向を  $x$  とした。簡単のため、境界  $z = \pm(d_F/2 + d)$  の一方は、真空であると仮定して解

析を行った。まず、弾性平板単体における音波伝搬に注目すると、近似的に以下に示すラム波の分散関係  $D(\omega, k) = 0$  を満たす。

$$D_S(\omega, k) = 4k^2 k_{zL} k_{zT} \cot(k_{zT} d / 2) + (2k^2 - k_T^2)^2 \cot(k_{zL} d / 2), \tag{1}$$

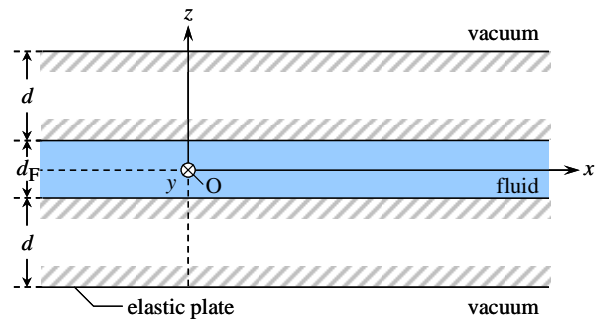
$$D_A(\omega, k) = 4k^2 k_{zL} k_{zT} \tan(k_{zT} d / 2) + (2k^2 - k_T^2)^2 \tan(k_{zL} d / 2). \tag{2}$$

ここで、対称なモードの分散関係には  $S$ 、非対称なモードには、 $A$  を付した。 $k$  はラム波伝搬モードの波数であり、弾性平板の縦波音速度  $c_L$  及び波数  $k_L (= \omega/c_L)$  と、横波音速度  $c_T$  及び波数  $k_T (= \omega/c_T)$  を用いると、

$$k_{zL} = \sqrt{k_L^2 - k^2}, \tag{3}$$

$$k_{zT} = \sqrt{k_T^2 - k^2} \tag{4}$$

の関係がある。ここで、弾性平板が境界  $z = \pm d_F/2$  において、**Fig. 1** のように液体に接しているとき、ラム波は液層中へ縦波を漏洩しながら伝搬する。この漏洩ラムモードは、液体中の漏洩波(液体モード)と相互作用し、新たな結合モードとして固体/液体/固体の3層構造を伝搬する。



**Fig. 1** Geometry of the solid/fluid/solid trilayer.  $d$  thickness of solid plates, and  $d_F$  thickness of the fluid layer.

固体/液体/固体の3層構造における結合モードの分散関係  $D_{GS}(\omega, k)D_{GA}(\omega, k) = 0$  は、

$$D_{GS}(\omega, k) = 2D_S D_A + \tau(D_A - D_S) \cot(k_{zF} d_F / 2), \tag{5}$$

ken-yamamoto@kobayasi-riken.or.jp

$$D_{GA}(\omega, k) = 2D_S D_A - \tau(D_A - D_S) \tan(k_{zF} d_F / 2) \quad (6)$$

を用いる<sup>[3,4]</sup>. ここでは,

$$\tau = \frac{\rho_F k_{zL} k_T^4}{\rho k_{zF}} \quad (7)$$

$$k_{zF} = \sqrt{k_F^2 - k^2} \quad (8)$$

の関係がある. 液体の密度を  $\rho_F$ , 弾性平板の密度を  $\rho$  とする. また, 液体の音速度  $c_F$  が与えられたときの波数  $k_F (= \omega / c_F)$  を用いた. 3 層構造における弾性平板の上下 ( $z = \pm(d_F / 2 + d)$ ) の表面変位が直線  $z = 0$  に対して, 対称なモード (Global Symmetric Modes) に GS, 非対称なモード (Global Antisymmetric Modes) に GA の記号を付した. これは, 弾性平板単体のラム波モードに注目するのとは異なり, 構造全体の対称性を示している. 式(5)及び(6)より, 各モードにおける波数  $k$  を決定することができる. **Fig. 2** に液体の厚みが,  $d_F = 0 \sim 0.7$  mm のときの固体/液体/固体の 3 層構造における非対称な漏洩ラム波結合モード (GA-A2) の群速度  $c_g (= \partial\omega / \partial k)$  を示す. ここでは, 周波数と弾性平板の厚みの積  $fd$  [Hz·m] に対してプロットした. 弾性平板として光学ガラスの BK7 ( $c_L = 6000$  m/s,  $c_T = 3670$  m/s), 液体として水 ( $c_F = 1500$  m/s) を採用して計算を行った.

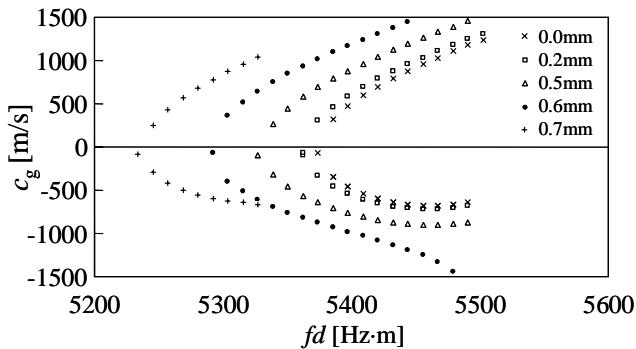


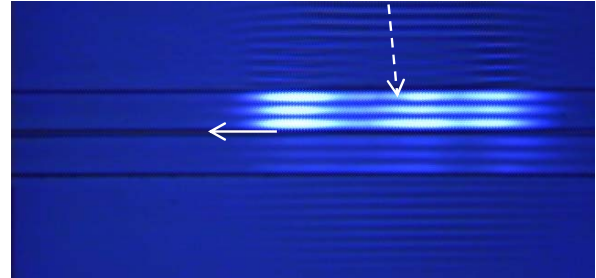
Fig. 2 Group velocities of GA-A2 coupling modes for a glass/water/glass trilayer as a function of  $fd$ .

BK7 の平板単体中を伝搬するラム波の A2 モードにおける負の群速度  $c_g \approx -670$  m/s (5500 Hz·m) と比較すると,  $d_F = 0.6$  mm のときに結合モードの群速度は,  $c_g \leq -1000$  m/s を示すことが分かる.

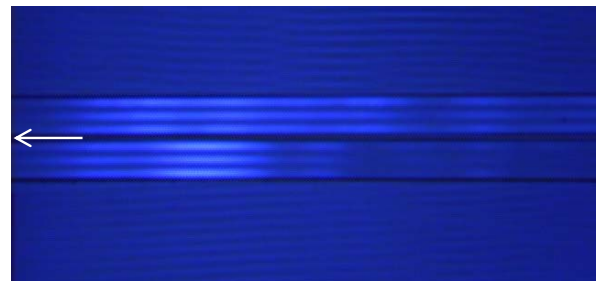
### 3. 可視化実験

固体/液体/固体の 3 層構造における漏洩ラム波結合モードを光学的に観測するためにストロボ光弾性法<sup>[5,6]</sup>を用いた. 漏洩ラム波が伝搬する透明弾性平板として, 計算と同様に光学ガラスのBK7

を採用した. 水中の超音波の可視化には, フレネル回折法<sup>[7]</sup>を併用する. **Fig. 3** に示すように, 周波数 1.08 MHz のバースト超音波 (点線矢印) を, 厚み 5 mm の 2 枚のBK7 (液層 0.6 mm) に斜入射して結合モード (GA-A2) を励起した. (a) より 40  $\mu$ s 後の結合モードの像が (b) である. 負の方向 (左) に伝搬しているのが分かる. これが負の群屈折現象である.



(a)



(b)

Fig. 3. Visualized stress patterns of GA-A2 propagating in the glass/water/glass trilayer.

### 4. おわりに

漏洩ラム波結合モードにおける負の群屈折現象の存在を初めて確認した. 群屈折率比を決定する群速度は, 弾性平板単体を伝搬するラム波より, 負に大きくすることが可能である. また, ストロボ光弾性法を用いて, 漏洩ラム波結合モードにおける負の群屈折現象の可視化に成功した.

### 引用文献

- [1] X. Zhang, Phys. Lett. A, **337**(2005) 457.
- [2] M. W. Feise, and Y. S. Kivshar, Phys. Lett. A, **334**(2004), 326.
- [3] F. Coulouvrat *et al.*, Acoustica, **84**(1998), 12
- [4] O. Lenoir *et al.*, Ultrasonics, **35**(1997), 509.
- [5] H. U. Li, and K. Negishi, Ultrasonics, **32**(1997), 243.
- [6] K. Negishi, and H. U. Li, Jpn. J. Appl. Phys., **35**(1996), 3175.
- [7] K. Yamamoto, Acoust. Sci. & Tech., **26**(2005), 378.

## 熱フォノン共鳴を用いた高精度音波物性測定

Precise acoustic measurement by thermal-phonon resonance

南康夫, 與儀剛史, 酒井啓司 (東大生研)

Yasuo Minami, Takeshi Yogi, and Keiji Sakai (Inst. of Indust. Sci., Univ. of Tokyo)

### 1. はじめに

Brillouin 散乱は音響モードのフォノンによる光散乱である<sup>1</sup>. 光の散乱角からフォノンの波数を, 散乱に伴う周波数変調からフォノンの周波数をそれぞれ知ることができる.

Brillouin 散乱スペクトルを高い分解能で測定する手法として光ビート分光法が提案されており, これまでさまざまな物性測定に利用されている<sup>2,3</sup>. しかしとりわけ低周波域でフォノンの伝搬距離が検出に用いるレーザーのビーム径よりも大きい場合, フォノンの減衰測定は原理的に不可能である. レーザのビーム径により決まる装置幅はまた, フォノン周波数の決定精度が低下する原因にもなっている. この装置幅による影響を排除する方法として熱フォノン共鳴現象の利用が提案された<sup>4</sup>.

本研究では, フォノン共鳴を用いて固体(熔融石英)と気体(窒素)の Brillouin 散乱スペクトルを観察することで, Brillouin 散乱を用いた物質の弾性率測定を高精度化した. さらに低周波域における超音波吸収係数についても測定の可能性を見出した.

### 2. 実験

熱フォノンの計測には光ビート分光 Brillouin 散乱法を用いた<sup>2,3</sup>. 光源には Nd:YAG の倍波 532nm を 8W 程度の出力で用いる. 光源を出たレーザーをビームスプリッターで2つの光路に分け, 強度の強い透過光を入射光として, 強度の弱い反射光をローカル光として用いた. サンプル内で入射光とローカル光を交差させ, ローカル光と同じ経路を進む散乱光を同時にフォトダイオードで検出する. 出力信号をプリアンプで増幅し, スペクトラムアナライザで周波数解析を行う. 入射光を光チョップにより強度変調し, これを参照信号としてロックインアンプ検出することにより測定感度を向上させる. 入射光とローカル光の偏光面を一致させれば, 縦波のフォノンによる Brillouin 散乱スペクトルを得ることができ(VV 散乱), また入射光とローカル光の偏光面を直交させれば横波のフォノンによる Brillouin 散乱スペクトルを得ることができる(VH 散乱).

散乱角の決定には音速が既知であるトルエンの

e-mail: yminami@iis.u-tokyo.ac.jp

Brillouin 散乱スペクトルを用いた. 散乱角は全ての実験において 0.30° 程度であり, このときの散乱波数は  $6.2 \times 10^2 \text{ (cm}^{-1}\text{)}$  である.

サンプルとして熱フォノン共鳴が起こらない形状のサンプルと, Fig. 1 内右上に示す共鳴測定用サンプルを用いた. 材質は熔融石英である. A 面とその向かい合う面は面精度が  $\lambda/20$  以内, 平行度が 2 秒以内であり, 面の間隔は 1.0mm である. B 面とその向かい合う面は光学研磨されており, B 面から入射光とローカル光をサンプル内で交差するように入射すると, A 面とその向かい合う面の間で往復し共鳴するフォノンを観察できる. C 面とその向かい合う面はすりガラス状になっておりフォノンは散漫散乱されるので, この間でフォノンが共鳴することはない. 気体の窒素についてもこれと同じ原理を利用した. 面精度が  $2\lambda$  以内のガラス板(ND フィルター)を平行度 10 秒以内に向かい合わせて設置し, この間で往復し共鳴するフォノンを観察した.

### 3. 実験結果と考察

熔融石英製のサンプルの Brillouin 散乱スペクトルを Fig. 1 に示す. 図中(a)は共鳴が起きないサンプルでの縦波フォノンの Brillouin 散乱スペクトルである. 熔融石英の 70MHz における超音波吸収は 0.1(dB/cm)程度であり, この吸収係数に対応する Brillouin ピークの半値半幅(HWHM)は 1kHz と計算されるが, Fig. 1 (a)の Brillouin ピークの HWHM はこれに比べはるかに大きなものとなっている. これは測定に用いたレーザーのビーム径により決まる装置幅が原因であり, 別の表現をすれば光とフォノンの相互作用時間がフォノン減衰時間に比べ短いことが原因である. 今回の実験におけるレーザーのビーム径は  $w=100\mu\text{m}$  程度であり, 光とフォノンの相互作用時間が有限であることによる Brillouin ピークの HWHM は

$$\Delta f_w = v/2\pi w \sim 10\text{MHz} \quad (v: \text{音速})$$

となる. これは Fig. 1 (a)の HWHM とほぼ等しい.

Fig. 1 (b)は, 図中右上に示した熔融石英製のフォノン共鳴用サンプルでの Brillouin 散乱スペクトルである. 試料中でのフォノンの往復伝搬による鋭い共鳴ピークが等間隔で観察されている. この共鳴ピークの

間隔は、フォノンの半波長の整数倍がサンプルの厚さ  $L$  (面 A と向かい合う面の間隔) に等しくなるという共鳴の条件

$$n \times \lambda / 2 = L$$

( $\lambda$ :フォノンの波長,  $n$ :共鳴の次数)

から求められる、共鳴ピークの周波数間隔

$$\Delta f = v / 2L \sim 3\text{MHz}$$

とよく一致している。また、

$$v = 2Lf / n$$

により、共鳴の次数と共鳴ピークの中心周波数から音速を正確に求めることができる。これにより決定された室温での縦波フォノンの位相速度は 5948m/s となった。

さらにローカル光の偏光を  $90^\circ$  回転させることで横波フォノンの Brillouin 散乱スペクトルについても同様に測定することができ、横波の音速は 3759m/s となった。以上の実験では共鳴ピークの中心周波数を 1kHz のオーダで決定することができたので、 $\Delta v/v \sim 1.4 \times 10^{-5}$  の精度で音速の測定が可能になったといえる。また、温度を変えて縦波フォノンの位相速度と横波フォノンの位相速度を測定したところ、それぞれ Fig. 2 のようになった。さらに、縦波フォノンの位相速度の温度依存性を詳細に測定したものは Fig. 3 のようになった。

次に、窒素ガスをサンプルとして用いたときの Brillouin 散乱スペクトルを Fig. 4 に示す。図中(a)はバルクサンプルの Brillouin 散乱スペクトルであり、装置幅を反映してブロードなスペクトルになっている。装置幅は  $\Delta f_w = v/2\pi w \sim 600\text{kHz}$  程度と評価でき、これは実際に測定されているものとよく一致する。

Fig. 4 (b)は面精度が  $2\lambda$  以内のガラス板 (ND フィルタ) を平行度 10 秒以内に向かい合わせて固定し、この間に窒素ガスを満たしたものをサンプルとして用いたときの Brillouin 散乱スペクトルである。フォノンが 2 枚の板の間で往復し共鳴するため、上述の熔融石英の場合と同様に共鳴ピークが現れる。共鳴の次数と共鳴ピークの中心周波数から音速を正確に求めることができ、室温での縦波の音速は 354m/s となった。

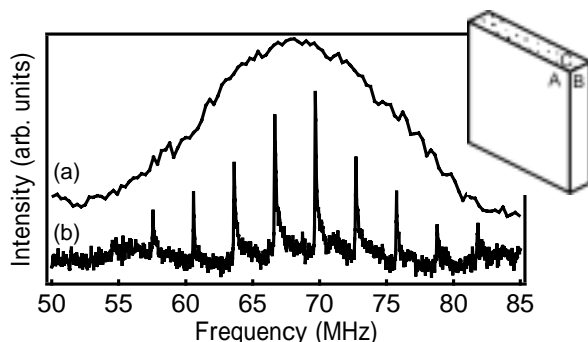


Fig. 1 Brillouin scattering spectra of (a) bulk sample and (b) resonant sample made of fused silica.

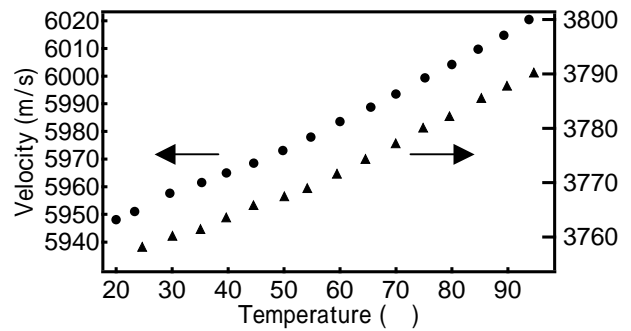


Fig. 2 Temperature dependence of the longitudinal phase velocity ( ) and the transverse phase velocity ( ) of fused silica.

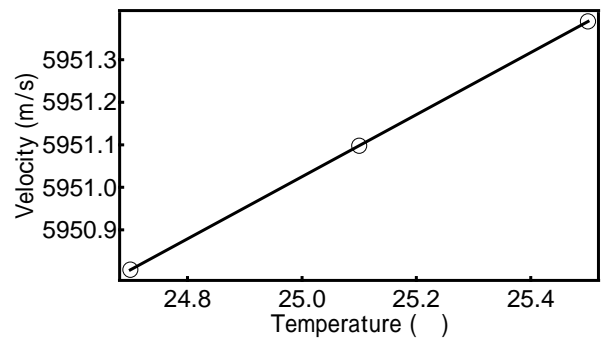


Fig. 3 Temperature dependence of the longitudinal phase velocity of fused silica.

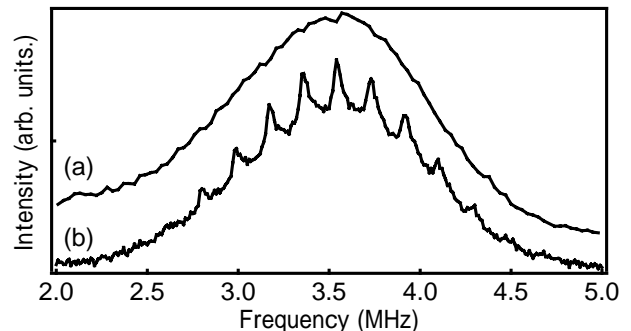


Fig. 4 Brillouin scattering spectra of (a) bulk sample and (b) resonant sample of nitrogen gas.

#### 4. おわりに

熱フォノン共鳴を利用することでこれまで困難であった固体中あるいは気体中のフォノン音速を高い精度で測定することが可能となった。さらにフォノン吸収係数の測定についても検討を行っている。

#### 引用文献

1. Bruce J. Berne, and Robert Pecora, *Dynamic Light Scattering* (Dover Publications, Inc., 2000).
2. Tatsuro MATSUOKA, Keiji SAKAI and Kenshiro TAKAGI, Jpn. J. Appl. Phys. **31** (1992) 69.
3. 与儀剛史, 酒井啓司, 高木堅志郎: USE2004 講演予稿集(2004) 31.
4. K. Sakai, K. Hattori, and K. Takagi, Phys. Rev. B **52** (1995) 9402.

## Cu 基バルク金属ガラスの高温域における弾性特性評価

## High temperature elastic properties of Cu-based bulk metallic glasses

柴田明\*、垂水竜一、荻博次、平尾雅彦（阪大 基礎工）市坪哲、松原英一郎  
（京大 工）加藤秀実（東北大 金研）才田淳治（東北大 学際センター）  
Akira Shibata, Ryuichi Tarumi, Hirotsugu Ogi, Masahiko Hirao, (Grad. Sch. Eng. Sci, Osaka Univ.), Tetsu  
Ichitsubo, Eiichirou Matsubara (Grad. Sch. Eng., Kyoto Univ.), Hidemi Kato (IMR, Tohoku Univ.), and Junji  
Saida (CIR, Tohoku Univ.)

## 1. 緒言

構成原子の配列に長範囲の規則性を持たない固相金属をアモルファス金属と呼び、その中でも昇温過程において明瞭なガラス転移を示すものを特に金属ガラスと呼ぶ。金属ガラスは、1990年代以降、数多くの系について報告され、高強度、高じん性、高耐食性という優れた特徴を持つことから、現在も精力的な合金開発や物性研究が進められている。<sup>1-3)</sup>ところが、これまでの研究は X線や電子線等を用いた構造解析や、示差走査熱量分析計(DSC)を用いた熱分析が主流であり、金属ガラスの弾性特性、とりわけガラス転移温度 ( $T_g$  点) 近傍といった高温域については、計測上の困難さ等の理由により、これまで十分な研究が成されていない。

弾性定数は、構成原子間の結合力と原子配列を直接反映した物理量である。そのため、 $T_g$  点近傍における正確な弾性特性評価を行えば、ガラス転移現象の理解に資する力学的（音響的）知見を与え得ると考えられる。そこで本研究では、電磁超音波共鳴法 (Electromagnetic Acoustic Resonance : EMAR) を用いて、Cu 基バルク金属ガラスの  $T_g$  点近傍における弾性特性を定量評価することを目的とする。

## 2. 実験方法

## 2.1 試料

試料には、銅鋳型鋳造法で作製した金属ガラス  $\text{Cu}_{60}\text{Hf}_{25}\text{Ti}_{15}$  (at%) を用いた。試料は直径 2.012 mm、高さ 3.376 mm の円筒形状試験片であり、密度は  $9460 \text{ kg/m}^3$  であった。示差走査熱量分析計 (DSC : 昇温速度 40 K/min) で計測したガラス転移

温度 ( $T_g$ ) および結晶化温度 ( $T_x$ ) はそれぞれ 465、547 であった。<sup>5)</sup>

2.2 EMAR 法による高温計測<sup>4)</sup>

EMAR 法は、電磁力を超音波振動の音源として固体試料の自由振動の共振周波数を測定し、得られた共振周波数と試料の寸法、密度を逆解析することで、弾性定数を決定する手法である。この手法は、試料とセンサー間に音響結合材を必要としないことから、高温環境下における測定を容易にかつ正確に行うことができるという優れた特徴を持つ。

Fig. 1 に本研究で使用する高温計測システムを模式的に示す。超音波センサー (EMAT) は試料寸法に合わせて作製された高温用のソレノイドコイルである。このソレノイドコイル内に試料を挿入し、電気炉内に固定したものを到達真空度約  $10^{-5}$  Torr の真空チャンバー内に設置し、計測を行う。EMAT の駆動に用いる静磁場はチャンバー外部より永久磁石にて印加している。試料を内包したソレノイドコイルに交流電流を流すと、試料表面には渦電流が誘導される。この渦電流と永久磁石が作る静磁場との相互作用によって交番のローレンツ力が発生し、試料に超音波振動を励起する。受信原理は発生原理の逆過程に従う。ソレノイドコイルにバースト波を流して周波数を掃引すると、試料の膜厚方向に対する共振周波数において、受信振幅はピークを示す。この共振ピークをガウス関数によりフィッティングし、その対称軸となる周波数を共振周波数と決定した。

計測は 25 から 570 までの温度範囲において行った。円柱形状試料の場合、自由振動は 8 つの振動グループに分類されるが、本研究では、 $A_g$  および  $B_{2g}$  グループについて計測を行った。計測

\* E-mail address: shiba25@me.es.osaka-u.ac.jp

は一定昇温速度下で行い、昇温速度は、25 ~ 200 :3 K/min、200 ~ 570 :1 K/minとした。測定温度は200 までは25 毎、200 以降10 毎とし、降温過程では25 毎に行った。

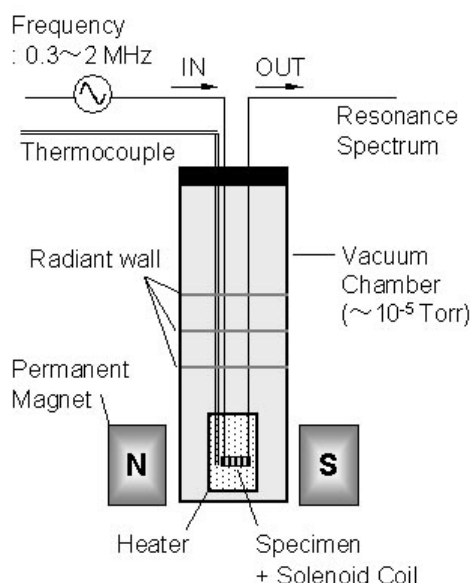


Fig.1 Schematic drawing of EMAR measurement at high temperature.

### 3. 実験結果と考察

Fig. 2に  $A_g$ -6 モードの共振周波数の温度依存性を示す。図に見られるように、室温から約 410 の温度範囲内においては、温度上昇に伴ってほぼ直線的な単調減少が認められるが、約 420 より高温では、共振周波数の温度変化は急激となっていることがわかる。共振周波数  $f$  は弾性率の  $1/2$  乗に比例するため、この結果は、420 において弾性定数の異常が生じた事を意味している。DSC 計測により決定したガラス転移温度が 465 あることから、Fig. 2 に見られる弾性異常はガラス転移に起因したものと考えられる。室温、420 および  $f$  が最小となる 440 における弾性定数の逆計算結果を Table 1 に示す。 $C_{44}/B$  比は 420 までほぼ一定であるが、440 では有意に上昇していることから、ガラス転移が体積弾性率  $B$  の大きな低下を伴うと推測される。

Table 1. Elastic moduli  $C_{ij}$ , Poisson's ratio  $\nu$ , bulk modulus  $B$  for selected temperatures.

T ( )	$C_{11}$	$C_{44}$	$\nu$	$B$	$C_{44}/B$
25	146.6	38.0	0.325	96.0	0.396
420	136.4	35.2	0.326	89.5	0.393
440	126.3	34.2	0.314	80.7	0.424

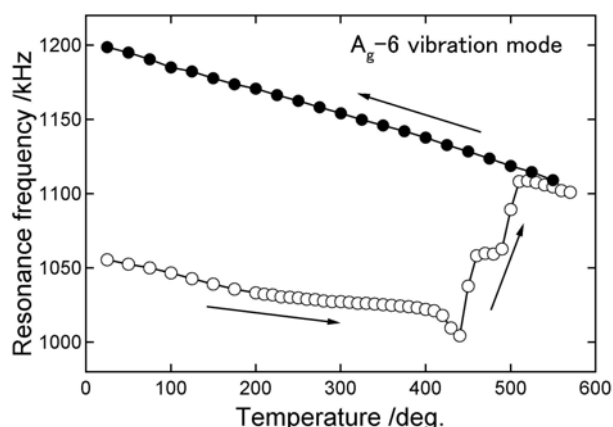


Fig. 2. Temperature dependence of resonance frequency ;  $A_g$ -6. Open and fulfilled circles represent heating and cooling processes, respectively.

一方、440 よりも高温側では共振周波数の顕著な増加が認められるが、これは金属ガラスが結晶化したことに起因している。結晶相については、冷却過程に見られるように、計測温度領域において特筆すべき異常は認められなかった。

### 4. 結言

1. 電磁超音波共鳴法を用いて CuHfTi バルク金属ガラスの高温域における弾性率計測を行い、25-570 の温度範囲における共振周波数および弾性定数の計測に成功した。
2. 約 420 で認められた共振周波数の急激な温度変化は、ガラス転移に起因した現象と考えられる。
3.  $C_{44}/B$  比は、室温 ~ 420 の温度範囲ではほぼ一定であるものの、440 においては有意な増加が認められた。したがって、ガラス転移は  $B$  の大きな低下を伴うと推測される。

### 引用文献

1. A. Inoue, T. Zhang and T. Masumoto, Mater. Trans., JIM, **30** (1989) 965.
2. A. Inoue, H. Yamaguchi, T. Zhang and T. Masumoto, Mater. Trans., JIM, **31** (1990) 104.
3. A. Inoue, T. Zhang and T. Masumoto, Mater. Trans., JIM, **31** (1990) 177.
4. M. Hirao and H. Ogi, EMATS for science and industry, (Kluwer Academic Publishers), 39 (2003).
5. D.V. Louzguine and A. Inoue, Jpn J. Mater. Res., **17** (2002) 2112.

# 非接触型走査型非線形誘電率顕微鏡を用いた 表面形状及び誘電率分布の同時計測

## Simultaneous measurement of topography and dielectric constant distribution by NC-SNDM with sub-nanometer order height resolution

大原 鉞也<sup>\*</sup>, 長 康雄<sup>\*\*</sup> (東北大 通研)

Koya Ohara and Yasuo Cho (R.I.E.C. Tohoku Univ.)

### 1. 緒言

近年我々は誘電材料の線形・非線形誘電率分布計測が可能な走査型非線形誘電率顕微鏡 (Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy; SNDM) を研究開発し報告してきた<sup>1-2)</sup>。この顕微鏡は試料に金属探針を接触させ、探針直下の容量を測定することで局所的な線形・非線形誘電率の値を計測することができる。現在のところ SNDM の分解能はサブナノメートルオーダーであることが確認されており<sup>3)</sup>、微小領域での強誘電体分極分布の観測法として注目を集めている。更に SNDM は超高密度強誘電体記録の記録再生ヘッドとしての応用も考えられており<sup>4)</sup>、SNDM は単なる評価技術としてだけでなく工学的な応用としても重要である。しかしながら、従来の SNDM は接触式の顕微鏡であるため探針の磨耗による分解能や信号強度の低下という問題が存在する。そのため非接触状態での SNDM 測定法(非接触型 SNDM; NC-SNDM)の開発が求められている。そこで今回、SNDM の測定モードの一つである高次非線形誘電率顕微法を用いた NC-SNDM の開発を行い、サブナノメートルオーダーで NC-SNDM 測定に成功したのでそれについて報告する。

### 2. 測定原理

Fig.1 に従来の SNDM のブロックダイアグラムを示す。SNDM は試料に交番電界  $E = E_p \cos(\omega_p t)$  を印加し、それによる試料の容量変化を周波数の変化として取り込んでいる。その試料の容量変化  $\Delta C_s / C_0$  と非線形誘電率の関係は、次式のように書くことができる。

$$\frac{\Delta C_s}{C_0} = \frac{\varepsilon(3)}{\varepsilon(2)} E_p \cos(\omega_p t) + \frac{\varepsilon(4)}{\varepsilon(2)} E_p^2 \cos(2\omega_p t) + \frac{\varepsilon(5)}{\varepsilon(2)} E_p^3 \cos(3\omega_p t)$$

ここで、 $\varepsilon(2), \varepsilon(3), \varepsilon(4), \varepsilon(5)$  は電束密度  $D$  を電界で展開した時の 1, 2, 3 及び 4 次の展開係数であり、

<sup>\*</sup> oohara@rie.c.tohoku.ac.jp  
<sup>\*\*</sup> cho@rie.c.tohoku.ac.jp

ここではそれぞれ 2, 3, 4 及び 4 次の誘電率と呼ぶ。この式から交番電界と同じ周波数成分を Lock-in 検波すると 3 次の非線形誘電率が、2 倍の周波数成分を Lock-in 検波すれば、4 次の非線形誘電率が測定できることが分かる。

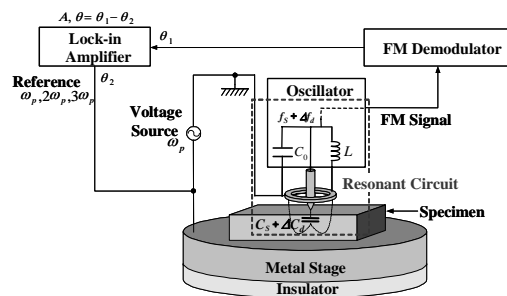


Fig.1. System Diagram of SNDM

NC-SNDM では 4 次の非線形誘電率に注目する。この定数は強誘電体の分極の向きに関わらず一定であり、また後に述べるように SNDM 測定に於いて探針-試料間の空隙に関する感度が高いため非接触状態をコントロールする信号に適している。そこでこの  $\varepsilon(4)$  信号を非接触状態で測定し、信号強度が一定になるようにフィードバックをかけて非接触状態を実現する。また、同時に分極の情報を含む  $\varepsilon(3)$  信号を測定し、非接触で分極分布を測定することが可能である。

Fig.2 に今回開発した NC-SNDM のブロックダイアグラムを示す。通常の測定に加え非接触状態を保つために Lock-in Amplifier を 1 台及びフィードバック回路を追加したシステムになっている。

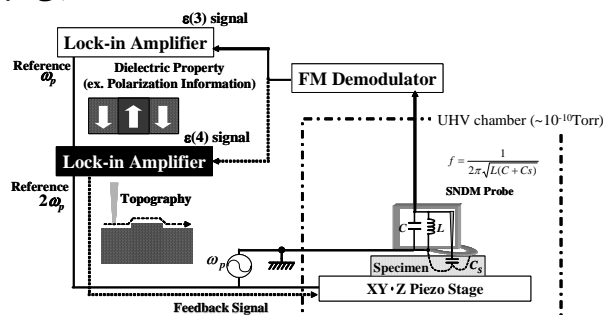


Fig.2. System Diagram of NC-SNDM

### 3. 理論解析結果

NC-SNDM の空隙に対する感度は, SNDM 信号の探針-試料間の距離依存性に対応する. Fig.3 に  $\epsilon(3)$  及び  $\epsilon(4)$  信号の探針-試料間距離依存性を示す. Fig.3(a) は探針を半径  $a$  の球で近似した計算モデル, Fig.3(b) は試料の比誘電率が 27.9 の時の計算結果である. 図中横軸は探針半径で規格化した探針-試料間距離, 縦軸は接触時の信号強度で規格化した SNDM 信号強度であり, この図で傾きが急であるほど空隙に対する感度が高いことを表している. この結果から  $\epsilon(4)$  信号の方が  $\epsilon(3)$  信号に比べて感度が高いことが分かり, また探針半径を小さくすれば感度が上がることも分かる.

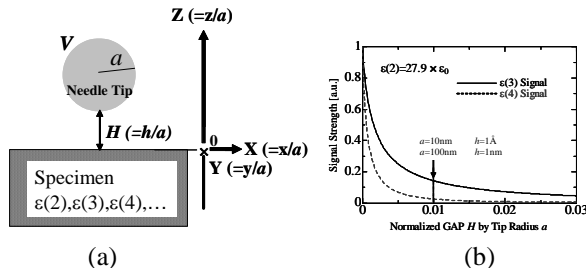


Fig.3. Gap Sensitivity of SNDM signal

### 4. 測定結果

次に NC-SNDM 測定を行った結果を示す. Fig.4 は HF でエッチング処理を施した周期分極 LiNbO<sub>3</sub>(PPLN) の分極及び凹凸像である. LiNbO<sub>3</sub> は HF によりマイナス面が選択的にエッチングされるため, この試料は分極分布に対応して凹凸が存在する. この結果からマイナス面がプラス面に比べ約 120nm 低いことが確認でき, これは他の接触段差計によって確認された値と一致した.

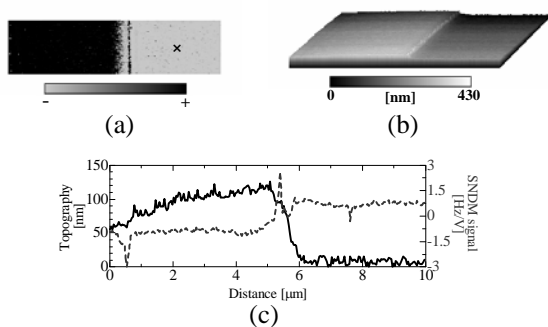


Fig.4. NC-SNDM image of PPLN

Fig.5 に機械研磨したマルチドメイン LiTaO<sub>3</sub> の分極及び凹凸像を示す. LiTaO<sub>3</sub> は機械研磨を行うとプラス面がマイナス面に比べより削れやすい性質があるため, この試料も分極分布に対応して段差が存在する. この図からも試料の凹凸に対応して数 nm の段差が存在することが確認できる. この大きさはカンチレバータイプの SNDM で測定した結果とほぼ一致しており, NC-SNDM がナ

ノメータオーダの分解能を有していることが確認できる.

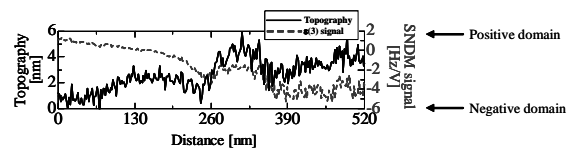


Fig.5. NC-SNDM image of multi-domain LiTaO<sub>3</sub>

Fig.6 に大気中でアニール処理を施すことにより原子 Step を作製した <sup>5</sup>LiNbO<sub>3</sub>(0001) の分極及び凹凸像を示す. Fig.6(a) は非接触原子間力顕微鏡で測定した凹凸像であり, この試料が原子 Step を有していることが確認できる. Fig.6(b) に  $\epsilon(3)$  信号を一定にするようフィードバックをかけて測定した凹凸像を示す. この試料は, 結晶全体にわたり分極の向きが一定のため,  $\epsilon(3)$  信号でフィードバックをかけても凹凸像が測定できることが確認できる. Fig.6(c) は  $\epsilon(4)$  信号を一定にして測定した凹凸像である. 表面状態がよくないために像がクリアではないが, 原子ステップが存在する間隔で段差があることが確認できる. また, 同時に測定した  $\epsilon(3)$  像 (Fig.6(d)) からこの試料が分極上向きで一定であることも確認できる.

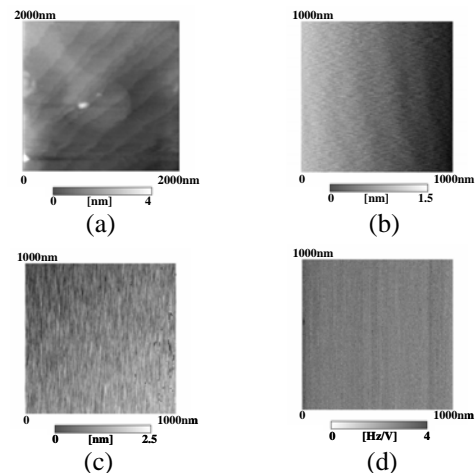


Fig.6. Topography and SNDM image of step-structure on LiNbO<sub>3</sub>(0001)

### 謝辞

計測用発振器を御提供下さった(株)小松村田製作所宇野雅雄様に深謝致します.

- 1) Y. Cho, A. Kirihara and T. Saeki: Rev. Sci. Instrum., **67** (1996) 2297.
- 2) Y. Cho, S. Kazuta and K. Matsuura: Appl. Phys. Lett., **75** (1999) 2833.
- 3) H. Odagawa and Y. Cho: Surf. Sci., **463** (2000) L621.
- 4) Y. Cho, K. Fujimoto, Y. Hiranaga, Y. Wagatsuma, A. Onoe, K. Terabe and K. Kitamura: Appl. Phys. Lett., **81** (2002) 4401.
- 5) A. Saito, H. Matsumoto, *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **43**, 2057 (2004)

# 微小気泡による超音波の非線形振幅減衰と熱生成

## Nonlinear Amplitude Attenuations and Heat Generation by Micro Bubbles in Ultrasonic Sound Propagation

◎中川勝文 (豊橋技科大 機械システム工)、野村信福 (愛媛大 機械工)  
Masafumi Nakagawa (Toyohashi U. T., Inst. Mech. Eng.), Sinfuku Nomura (Univ. Ehime, Inst. Mech. Eng.)

### 1. 結論

液体中に強力な超音波を印加するとキャビテーション気泡が発生し、このマイクロバブルの振動は音場のエネルギーを吸収し、音圧を大きく低下させる。著者らはこれまで伝熱促進<sup>(1)</sup>や液中プラズマに関する研究を行ってきたが、これらの特性を解明するためにはキャビテーションの強度や、音場の強さを求めることが必要となる。また、キャビテーション気泡を含む場の音場解析<sup>(2)</sup>を行い、音場の強さを求めるために、気泡振動によるマイクロ気泡の振幅減衰と熱発生を線形理論<sup>(3)</sup>の用いて求めてきたが、印加圧は数気圧にも及ぶことがあるので非線形効果による振幅減衰も調べる必要がある。

一方、医学の分野でもマイクロバブルを使って、患部を発熱させるなどのマイクロバブルの新しい利用方法が研究<sup>(4)</sup>されてきた。そして、マイクロバブルを含む流体中での波の減衰と、熱エネルギー発生を求めることが重要となってきた。本研究はマイクロ気泡の非線形振動を解析的に求め、線形理論との差を明らかにする。

### 2. 気泡振動の理論解析

強力な超音波が得られる数十から数百キロヘルツの超音波の波長は気泡の径に比べると十分大きいので、気泡群の特性は単一気泡の振動によって求めることが出来る。気泡内の質量と運動量保存式、熱拡散、物質拡散の式は

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_g}{\partial t} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} r^2 \rho_g v_r &= 0 \\ \frac{\partial v_r}{\partial t} + v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} &= -\frac{1}{\rho_g} \frac{\partial p_g}{\partial r} \\ \frac{\partial h_g}{\partial t} - \frac{1}{\rho_g} \frac{\partial p_g}{\partial t} + v_r \frac{\partial h_g}{\partial r} - \frac{v_r}{\rho_g} \frac{\partial p_g}{\partial r} &= \frac{\lambda_g}{\rho_g} \nabla^2 T_g \\ \frac{\partial \rho_v}{\partial t} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} r^2 \rho_v v_r &= D_{va} \rho_g \nabla^2 \frac{p_v M_v}{p_v M_v + p_a M_a} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 $\rho_g$ 、 $v_g$ 、 $h_g$ 、はそれぞれ気相の質量平均密度と速度とエンタルピーで、 $p_a$ 、 $p_v$ 、 $M_a$ 、 $M_v$ は空気と水蒸気の分圧と分子量を表し、 $\lambda_g$ 、 $D_{va}$ は気相の熱伝導率、空気中の水蒸気の拡散係数である。また、気泡は半径方向のみに振動するとした。

気泡の周りの液相の運動方程式は、レイリー・ペレセットの式を、熱伝導と溶解した空気の拡散方程式を用いた。

$$\begin{aligned} \rho_l R \ddot{R} + \frac{3}{2} \rho_l \dot{R}^2 + \frac{2\sigma}{R} + 4\mu \frac{\dot{R}}{R} &= p_{g,r=R} - p_\infty \\ \rho_l C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} + \rho_l C_l v_r \frac{\partial T_l}{\partial r} &= \lambda_l \nabla^2 T_l \\ \frac{\partial \rho_{al}}{\partial t} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} r^2 \rho_{al} v_r &= D_{al} \nabla^2 \rho_{al} \end{aligned} \quad (2)$$

ここで、 $R$ は気泡半径、 $p_l(R)$ 、 $p_\infty$ は気泡表面での液相内圧力と無限遠での圧力である。 $\nu_l$ 、 $\rho_l$ 、 $\lambda_l$ 、 $\sigma$ 、 $\rho_{al}$ 、 $D_{al}$ は液体の動粘性係数、密度、熱伝導率、溶解空気の密度、拡散係数である。水蒸気の蒸発と空気の溶解が考慮され蒸発速度は伝熱律速から求めた。飽和条件にはクラペイロンの式、空気の溶解にはヘンリーの式が使われた。

これらの気泡と液相の基礎式は $p_\infty$ が正弦波で変化する強制振動の場でCIP-CUP<sup>(5)</sup>法を用いて解かれた。

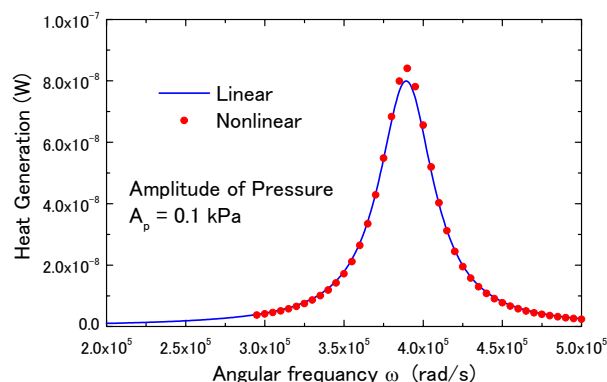


Fig. 1 Heat generation by a micro-bubble at small amplitude of external pressure.

### 3. 解析結果

Fig. 1 に印加する超音波の音圧が低い（外圧の圧力振幅が 0.1kPa）場合の気泡振動によって消散されるエネルギーを示す。本解析では超音波洗浄機に使われるような水槽を仮定し気泡径は  $50\mu\text{m}$  とした。図中の丸印は本解析結果で、実線は以前に示した線形解析の結果である。気泡の共振周波数の位置でピークを持つ。Fig. 2 はこの場合の気泡半径の振動の遅れの位相角を示したものである。気泡振動は共振点で位相が  $90^\circ$  ずれ、それ以降では反転する。Fig. 3 はこのときの気泡内温度分布を  $30^\circ$  ごとの位相に対して示したもので、外圧が 0.1kPa 程度の超音波場は線形理論（実線）とよく一致する。

Fig. 4 は外圧の振動振幅を大きくさせて場合の結果である。この図では Fig. 1 とは異なり、縦軸が対数でプロットされている。図の下部は圧力振幅が 1kPa の場合の結果であるが、このときも線形理論とほぼ一致する。ところが、図の上の2つの場合のように、圧力振幅を 10kPa、20kPa と増加させるとピークが左にずれてくる。これは非線形降下のために共振周波数が低下したことを示している。共振周波数低下の最も大きな原因は平均気泡径の増加にある。Fig. 5 はこのときの気泡内蒸気密度の分布を示したものであるが非線形効果のため膨張されている時間の方が長くなりしたがって気泡内の蒸気が多くなり、気泡径が増加し共振周波数が低下する。

Fig. 5 の上部から、印加圧力の振幅が大きい場合でも、共振周波数から離れれば、熱生成はほぼ線形理論で表せることが分かる。また、共振時の熱生成量は非線形効果が現れるとかなり小さくなる。これは非線形効果のために気泡振動の振幅が小さくなったためである。

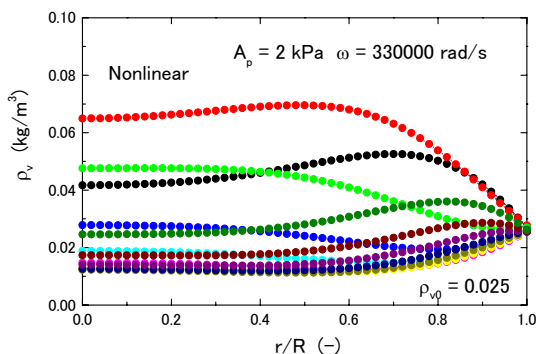


Fig.5 Vapor density distributions in side the bubble at large external pressure.

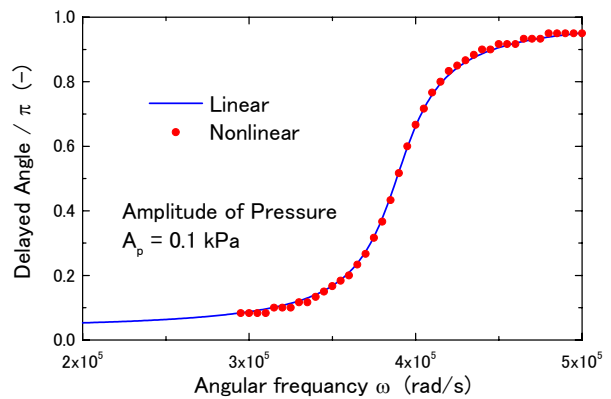


Fig. 2 Delayed angle of radius vibration of micro-bubble at small external pressure.

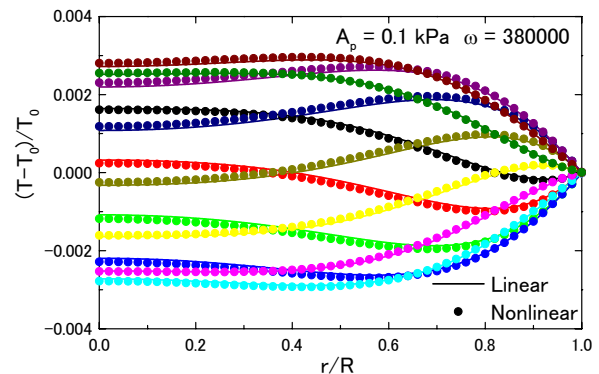


Fig. 3 Temperature distributions of gas inside the bubble at each  $30^\circ$  phase.

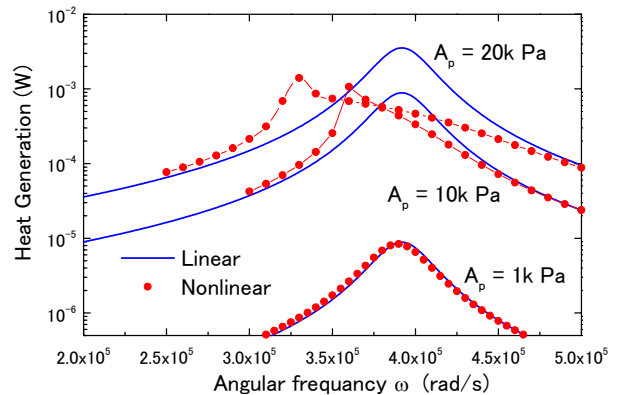


Fig. 4 Heat generation by a micro-bubble at large amplitude of external pressure.

### 引用文献

1. S. Nomura and M. Nakagawa et al. : Jpn. J. Appl. Phys. **44-6B** (2005) 4674.
2. S. Nomura and M. Nakagawa : Heat Transfer Japanese Research, **22-6**(1995), 275.
3. M. Nakagawa and S. Nomura : Acoustical Science & Technology, **22-4**(2001), 283.
4. R. Glynn Holt and Round A. Roy : Ultrasound in Medicine and Biology, **27-10**(2001), 1399.
5. T.Yabe and P.Y.Wang : J. Phys. Soc. Jpn. **60-7** (1991) 2105.

## Bi および Mn 同時添加による KNbO<sub>3</sub> 強誘電体セラミックスの圧電的性質 Piezoelectric Properties of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and MnCO<sub>3</sub> co-doped KNbO<sub>3</sub> Ferroelectric Ceramics

◎松本研司、晝間裕二、吉田武尊、永田肇、竹中正（東理大理工）

Kenji Matsumoto, Yuji Hiruma, Takeru Yoshida, Hajime Nagata, Tadashi Takenaka (TUS)

### まえがき

近年の無鉛圧電材料の研究において、KNbO<sub>3</sub> セラミックスは単結晶において大きな圧電性( $k_t=0.69$ )を有し、キュリー温度  $T_c$  が高いことから非常に注目されている。[1,2]しかし、KNbO<sub>3</sub> は潮解性および難焼結性のため、通常焼成において高密度セラミックス試料を作製することが難しいため、ホットプレス法 [3]や、水熱合成法により合成された微細な KNbO<sub>3</sub> 粉体を用いた高密度試料の作製[4]が報告されている。また、KNbO<sub>3</sub> セラミックスの作製プロセスは重要であり、ボールミルを 100 時間以上行うことにより KNbO<sub>3</sub>-BNT 系セラミックスにおいて密度比が 95% 以上のものが得られている[5]。我々はこれまでに KNbO<sub>3</sub> に Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> および MnCO<sub>3</sub> を添加し、縦結合(33)モードの電気機械結合係数  $k_{33}=0.30$  という結果を得ている。[6]

本研究は、作製プロセスおよび、Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、MnCO<sub>3</sub> の添加方法を最適化することにより、通常焼成において高密度、高抵抗率の KNbO<sub>3</sub> セラミックス試料を作製し、その圧電特性の改善を計ることを目的とする。

### 実験方法

試料の作製は通常のセラミックス作製方法を用いて行った。K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> を化学量論比になるように秤量した後、

- (1) 仮焼前に Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を  $x$  wt% 添加、仮焼後に MnCO<sub>3</sub> を  $y$  wt% 添加。(KNBi  $x$  Mn  $y$  (1) と略記)
- (2) 仮焼後に Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と MnCO<sub>3</sub> をそれぞれ  $x$  wt%、 $y$  wt% 添加した。(KNBi  $x$  Mn  $y$  (2) と略記)

仮焼は 800~1000°C で、本焼成は 1035~1080°C で行った。なお、混合・粉碎はエタノールを溶媒としたボールミルにて行った。作製した試料は、所定の

測定用形状に切り出し、銀電極を焼き付け、電気的諸特性の測定を行った。

比誘電率  $\epsilon_s$  および誘電損失  $\tan\delta$  の温度特性は LCR メータ(YHP 4275A)を、 $P$ - $E$  ヒステリシス・ループの観測は Virtual Ground 方式の強誘電体テスタ(TOYO Corporation Model 6252 Rev. C)で、抵抗率はハイレジスタンスメータ(YHP 4329A)、圧電特性の測定はインピーダンスアナライザ(YHP 4294A)を用いて共振-反共振法により行った。また、 $X$  線回折測定は粉末  $X$  線回折装置(Rigaku RINT2000)を用い、微細構造の観察には走査型電子顕微鏡(HITACHI S-2400)を用いた。

### 実験結果

Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と MnCO<sub>3</sub> を添加することでいずれの作製方法においても通常焼成で密度比が 95% 以上の緻密な試料を得た。特に、Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と MnCO<sub>3</sub> をそれぞれ 0.3 wt%、0.4 wt% 添加した試料では密度比 97% 以上、抵抗率も  $2.0 \times 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$  以上の値となり、電気

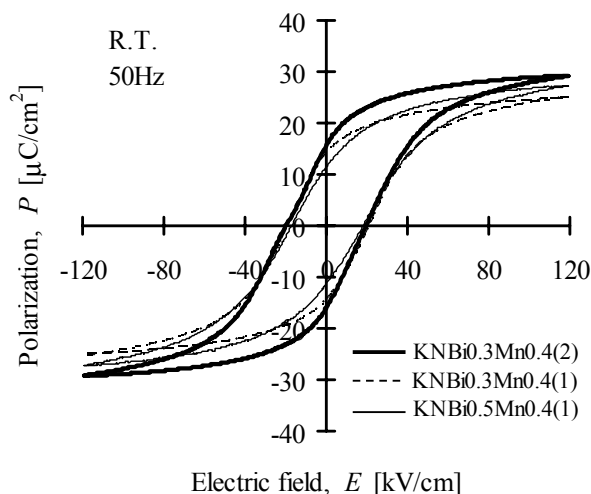


Fig.1  $P$ - $E$  hysteresis loops of KNBi  $x$  Mn0.4(1,2).

tadashi@takenaka.ee.noda.tus.ac.jp

的諸特性を評価するのに十分な値であった。**Fig.1**に室温、測定周波数 50 Hz のときの  $P$ - $E$  ヒステリシスループの観測結果を示す。KNBi0.3Mn0.4(1)では  $P_r=14.6 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  であるのに対し、KNBi0.3Mn0.4(2)では  $P_r=15.7 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  と大きな値を得た。

**Fig.2** にユニポーラ駆動における電界誘起歪み特性を示す。作製方法(2)では歪みが大きく上昇し、KNBi0.3Mn0.4(2)においては、 $S_{\text{max}}=0.176\%$ 、また、歪みを印加電界で割った値の最大値

$\text{Dynamic } d_{33\text{max}} = S / E \text{ (at } 55 \text{ kV/cm)} = 235 \text{ pm/V}$  という結果が得られた。

**Fig.3, 4** に分極処理を行った、KNBi0.3Mn0.4(1)とKNBi0.3Mn0.4(2)の共振-反共振波形を示す。

KNBi0.3Mn0.4(1)と比較して、KNBi0.3Mn0.4(2)では最大の位相が  $84^\circ$  と分極が進んだことがわかる。

また、この共振-反共振波形から算出した縦結合モードの電気機械結合係数  $k_{33}$  は、KNBi0.3Mn0.4(1)では 0.38 に対し、KNBi0.3Mn0.4(2)では 0.46 と改善した。この値は無鉛圧電セラミックスとしては比較的大きな値である。また、圧電定数  $d_{33}$  はKNBi0.3Mn0.4(1)が  $97.5 \text{ pC/N}$ 、KNBi0.3Mn0.4(2)では  $102.3 \text{ pC/N}$  を得た。

### まとめ

本研究では、 $\text{Bi}_2\text{O}_3$  および  $\text{MnCO}_3$  の添加方法および作製プロセスを最適化することによって、通常焼成において高密度、高抵抗率の  $\text{KNbO}_3$  セラミックスを得ることができた。今回、作製プロセスの最適化を行ったことで、 $k_{33}=0.46$ 、 $d_{33}=102.3 \text{ pC/N}$  という無鉛圧電セラミックスとしては比較的大きな圧電特性が得られた。

### 参考文献

- [1]K.Nakamura, T. Tokiwa, and Y. Kawamura, *J. Appl. Phys.* **91** (2002) p.9272.
- [2]S. Wada, A. Seike and T. Tsurumi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40** (2001) p.5690.
- [3]R. E. Jaeger and L. Egerton, *J. Am. Ceram. Soc.* **45** (1962) p.209.
- [4]K.Toda, S. Tokuoka, N. Ohtake, K. Uematsu and M. Sato, *Trans. MRS-J* Vol. **28** (2003) pp.353-356.
- [5]H. Ishii, H. Nagata and T. Takenaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol. **40** (2001) pp.5660-5663.
- [6]T. Yoshida, Y. Hiruma, R. Aoyagi, H. Nagata and T. Takenaka, *Key Eng. Mater.* Vol.**301**(2006)pp.19-22.

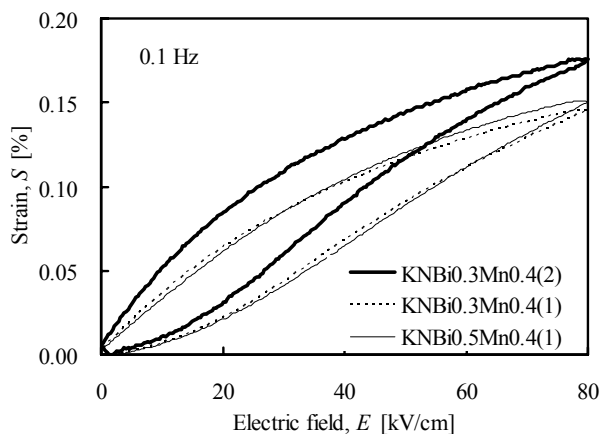


Fig.2 Strain,  $S$ , versus electric field,  $E$ , of  $\text{KNBi } x \text{ Mn}0.4(1,2)$  under unipolar behavior.

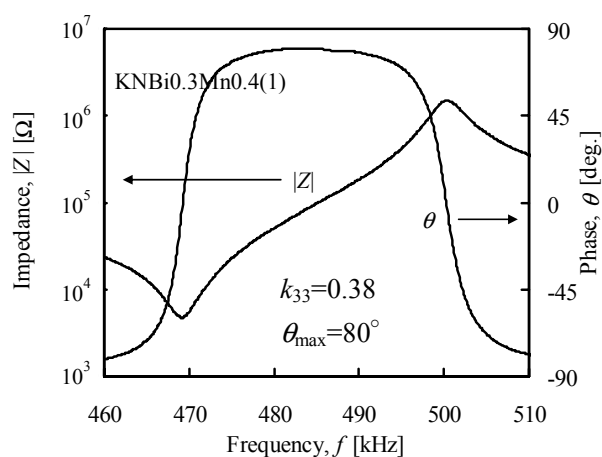


Fig.3 (33)-mode frequency dependence of impedance,  $|Z|$ , and phase,  $\theta$ , for  $\text{KNBi}0.3\text{Mn}0.4(1)$ .

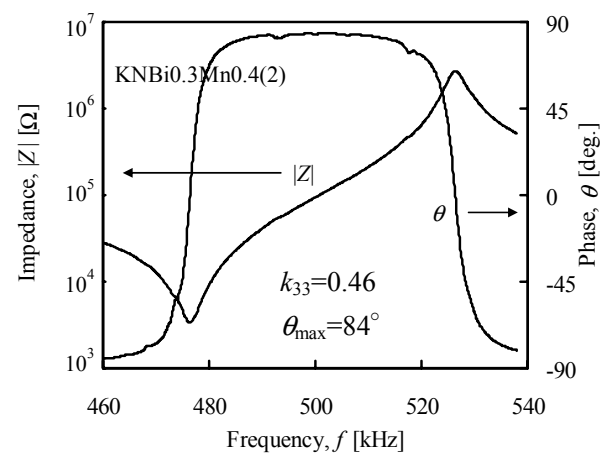


Fig.4 (33)-mode frequency dependence of impedance,  $|Z|$ , and phase,  $\theta$ , for  $\text{KNBi}0.3\text{Mn}0.4(2)$ .

## 強誘電体薄膜 $BaZr_xTi_{1-x}O_3$ の 超格子構造による温度特性の制御

### Modification of the temperature dependence of the dielectric properties by the symmetric superlattice thin films of $BaZr_xTi_{1-x}O_3$

日野孝紀（新居浜高専、材料）、河原敏男、大野隆裕、村杉政一、  
田畑仁、川合知二（大阪大 産研）

Takanori Hino (Niihama NNCT, MSE), Toshio Kawahara, Takahiro Ohno, Masakazu Murasugi, Hitoshi Tabata and Tomoji Kawai (Osaka Univ. ISIR)

#### 1. 序論

近年、環境問題から鉛の使用は制限されるようになった。鉛を含まない強誘電体として $BaTiO_3$ があるが、この材料は、Zrを添加することにより、 $Pb(MgNb)O_3$ 、 $Pb(ZnNb)O_3$ と同様のリラクサー強誘電体を作製できるため、興味をもたれている[1, 2]。 $BaZr_xTi_{1-x}O_3$ は、ペロブスカイト構造をとり(111)方向にZrとTiが並ぶため、(111)配向の薄膜を作製することにより、Zr, Tiの配列の対称性(degree of order)の効果を調べることが出来る[3]。パルスレーザー堆積(PLD)法は、レーザーを用いた成膜法で、雰囲気ガスを制御することにより、目的とする酸化物を作製することが出来る。そのため、高温超電導体超格子の作製なども行われてきた[4]。このように、PLD法を用いることにより、対称性を制御した強誘電体超格子のものがなされてきた。本研究では、PLD法を用いて超格子構造を導入した強誘電体薄膜を作製し、超格子構造をもたない薄膜との特性の比較を行った。

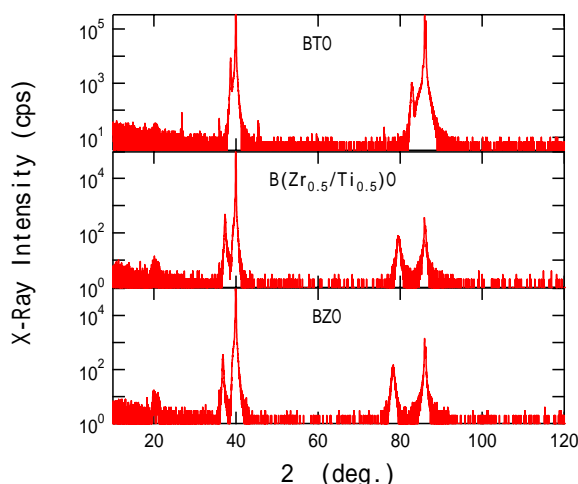


Fig. 1 XRD patterns for  $BaZr_xTi_{1-x}O_3$  thin films.

#### 2. 実験方法

ターゲットは、 $x$ を0, 0.25, 0.5, 0.75, 1と変化した粉末を1センチの大きさに整形し、焼結して作製した。 $x$ に対応してそれぞれ、A, B, C, D, Eと呼ぶ。このターゲットからArFエキシマレーザーを用いたPLD法で薄膜試料を作製した。チャンバー内の酸素圧は1 Pa、基板温度は700で成膜した。レーザーパワーは、80 mJ、繰り返し周期は2 Hzとした。Nb 1 wt%ドープ $SrTiO_3$  (111)を基板に用いた。単層の薄膜とABCDE/ABCDE、または、ABCDE/EDCBAの構造を10回繰り返し積層超格子薄膜を作製した。このときの一つの層は、5 layersである。

薄膜は、構造解析としてX線回折測定を行い、また、断面の透過電子顕微鏡(TEM)観察を行った。誘電率はHP4194Aを用いて誘電率と誘電ロス測定した。また、温度を液体窒素のガスフロー冷

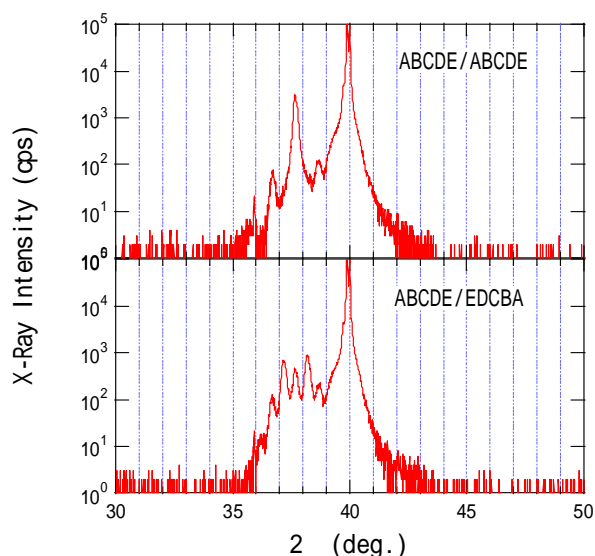


Fig. 2 XRD patterns of  $BaZr_xTi_{1-x}O_3$  (111) for superlattices.

却下で制御して 80 K から 350 K で測定した。

### 3. 結果と考察

Figure 1 に、 $x = 0, 0.5, 1$  の組成比で作製した単層の薄膜の X 線回折パターンを示す。基板のピークの低角側に薄膜のピークが観測され、 $x$  が増えるにつれて基板からのずれが大きくなるのがわかる。

Figure 2 に、超格子薄膜の(111)ピークの X 線回折パターンを示す。それぞれメインピークとともに超格子の繰り返し周期に対応したサテライトピークが観測される。このピークの間隔は、ABCDE/ABCDE のときと比べて、繰り返し周期が 2 倍になる ABCDE/EDCBA のときには狭くなり、また、メインピークの高さが小さくなる。ABCDE/ABCDE の TEM 像を Fig. 3 に示すが、矢印で示すように、大きく格子定数が変わる A/E 界面が観察され、この間隔が、サテライトピークの間隔と一致する。順序を逆にした超格子 (EDCBA/EDCBA) も作製したが、超格子 (ABCDE/ABCDE) と同じ X 線回折パターンを示し、基板界面の第一層とは関係なく超格子構造が成長し、基本的には、積み重ね順序にはよらず、繰り返し周期による X 線回折像が得られていることがわかる。そのため、繰り返し周期の異なる超格子薄膜では、サテライト構造が異なる。

Figure 4 に比誘電率の温度特性を示す。(a)は  $x = 0.5$  の単層膜の温度特性であり、(b)は超格子薄膜の温度特性である。超格子の全体としての組成比は  $x = 0.5$  となる。単層膜では、200 K 以下付近にブロードなピークを持つ特性を示し、リラクサー特性から 100 K から 150 K あたりで周波数分散を示す。また、室温付近と低温側の両方で誘電率が

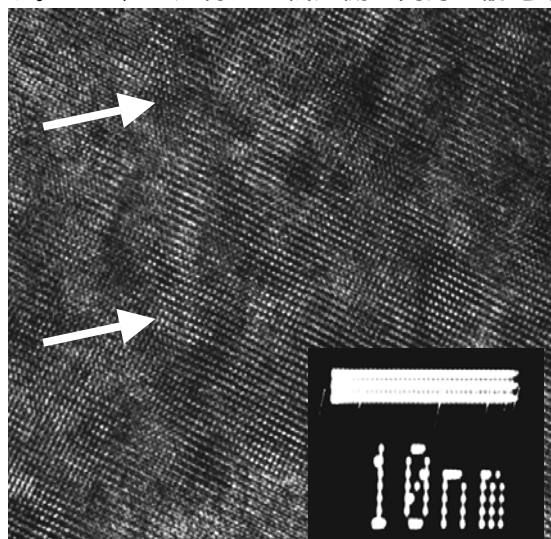


Fig. 3 TEM images for the superlattice films. (ABCDE/ABCDE).

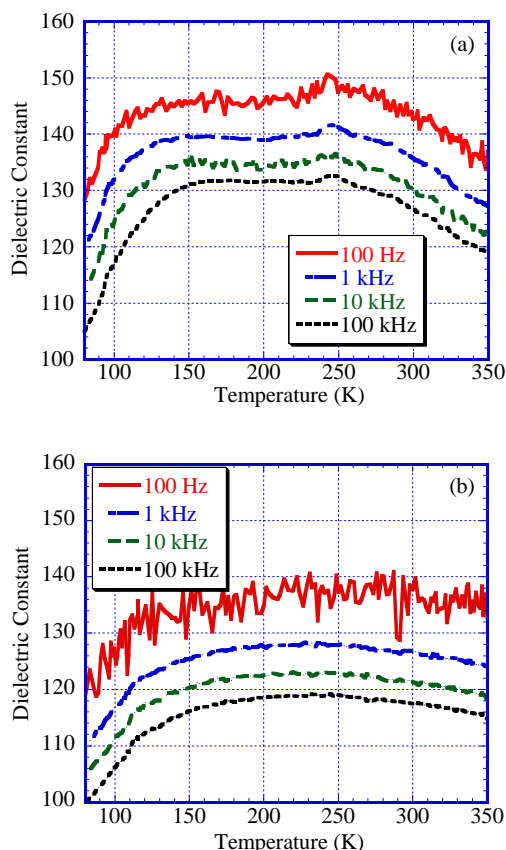


Fig. 4 Temperature dependence of dielectric constant of  $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ . (a)  $x = 0.5$ , (b) superlattice (ABCDE/EDCBA).

減少する。超格子薄膜では、比誘電率の値はほぼ同じであり、200 K 以下の低温側の温度特性は単層膜と同様に温度とともに減少している。しかし、高温側ではほとんど減少せず、温度依存の少ない特性を示す。すなわち、超格子構造を導入することにより室温付近の温度特性の改善に成功した。

### 4. 結論

鉛を含まない強誘電体超格子を作成し、同じ組成比の単層薄膜と誘電特性を比較した。比誘電率の温度特性は、超格子構造を導入することにより室温付近の温度変化が小さくなり、環境による変化の小さい誘電体が作製出来た。

### 謝辞

本研究の一部は、文部科学省ナノテク支援プロジェクトの支援を受けて行われた。

### 引用文献

1. P. S. Dobal *et al.*: J. Appl. Phys., **89** (2001) 8085.
2. Z. Yu *et al.*: J. Appl. Phys., **92** (2002) 2655.
3. Y. Hotta *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys., **42** (2003) 5908.
4. H. Tabata *et al.*: Appl. Phys. Lett. **58** (1991) 1443.

# 水熱合成法によるエピタキシャルPbTiO<sub>3</sub>薄膜の圧電特性

## Piezoelectric properties of the hydrothermal deposited epitaxial PbTiO<sub>3</sub> thin film

森田 剛\*、長 康雄 (東北大学 通研)  
Takeshi Morita and Yasuo Cho (Tohoku Univ., RIEC.)

### 1. はじめに

チタン酸鉛(PbTiO<sub>3</sub>)薄膜は、高周波トランスデューサやマイクロアクチュエータ・センサ(MEMS)への応用が期待されるが、高品質でリーク電流を抑制した結晶を合成するのが極めて困難であった。従って、単結晶としても、PbTiO<sub>3</sub>の強誘電特性や圧電特性に関する実験結果はほとんど見あたらない。

一方、水熱合成法は 200 °C 以下という極めて低い反応温度で強誘電体薄膜を合成することができる。このため、鉛の揮発が無いことや残留歪みが小さくなり、結晶性の優れた薄膜が得られる。チタン金属上に成膜された多結晶 PZT 薄膜はマイクロ超音波モータや各種センサに応用されてきた<sup>1</sup>。

最近では、単結晶基板を用いることでエピタキシャル薄膜が成膜できることが報告されている。今までに、BaTiO<sub>3</sub> や PZT、PbTiO<sub>3</sub> 薄膜が合成された<sup>2,3</sup>が、強誘電及び圧電特性を評価するものは無かった。これに対して、我々は SrRuO<sub>3</sub> 導電性基板を用いて PZT 及び PbTiO<sub>3</sub> の完全単一配向エピタキシャル薄膜を合成し強誘電特性を評価することに成功している<sup>4,6</sup>。これらの報告では、100nm の厚さの PbTiO<sub>3</sub> において、理論予想値を超える 97μC/cm<sup>2</sup> の自発分極値を測定した。本研究では、超音波トランスデューサの応用を考え、膜厚を厚くし、従来は測定が極めて困難であった PbTiO<sub>3</sub> 薄膜の圧電特性についての報告を行う。

### 2. 成膜方法

反応試薬(Pb(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>:1.0g, TiO<sub>2</sub>:0.2g, KOH 10N 15ml)を圧力反応容器(Parr Model 4744)内に調合し、単結晶基板の鏡面研磨面が下側になるようにして、反応容器の底から約 8mm のところに固定した。固定方法に関しては、図 1 に示すように、溶液内の乱流を抑制することで大面積に均一に成膜が可能になるような支持方法に改良した。基

板は 7.5 × 7.5 × 0.5mm<sup>3</sup> の大きさで、(100)SrTiO<sub>3</sub> に 50nm 厚のエピタキシャル SrRuO<sub>3</sub> を RF スパッタによって成膜したものである。SrTiO<sub>3</sub> 基板表面はスパッタする前に予め原子ステップ処理をしてある。

電気炉で圧力反応容器を 150 °C、24 時間保持して水熱反応を行った。反応後に基板を取り出し、超音波洗浄及び大気環境下での乾燥処理(200 °C/1h)を行った。

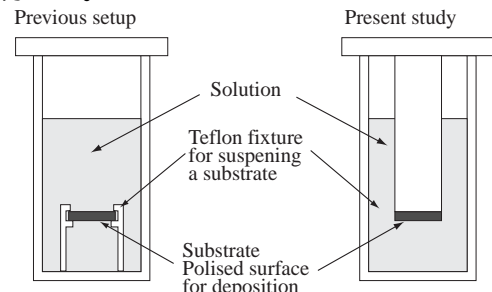


Fig.1 Supporting mechanism in the solution. The previous method (left) and improved one (right).

### 3. 測定結果

SEM 観察(図 2)により、PbTiO<sub>3</sub> 薄膜は 430nm の厚さであり、X 線逆格子マッピングによる結晶性の評価から高品質な薄膜が得られていることが確認された。反応条件を変えることで、成膜速度は従来<sup>5,6</sup>の 4 倍以上になったが、ドメイン構造は a ドメインを若干含んでいた。X 線の Intensity における c/a は 50 程度である。図 3 に示す非線形誘電率顕微鏡のドメイン観察でも、c ドメインが優勢で若干の 90° ドメイン境界が観察された。また、従来と同様分極処理をしなくても、成膜時に分極方向が基板から表面方向に一樣に揃っていた。

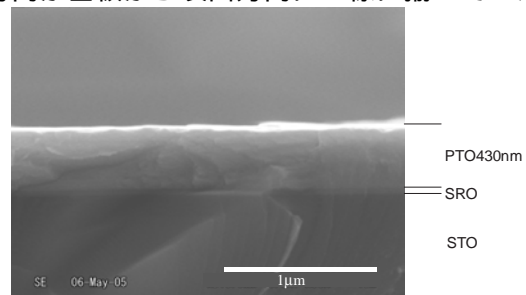


Fig.2 Cross sectional view of the epitaxial PbTiO<sub>3</sub> film.

\*現所属 東京大学 新領域創成科学研究科  
tmorita@iecee.org

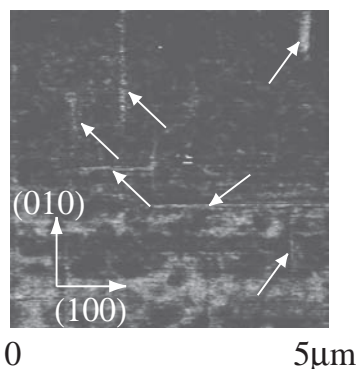


Fig.3 SNDM observation of ferroelectric domain of epitaxial PbTiO<sub>3</sub> film. Arrows show the ac domain wall.

白金の上部電極を蒸着し、強誘電特性と圧電特性を測定した。図4に示す強誘電特性に関しては、今までに報告した100nm厚のDEヒステリシス曲線に比べてインプリントの影響が大きく、自発分極値は60 μC/cm<sup>2</sup>と100nm厚の場合と比べて約6割に減少した。ヒステリシス曲線の形から、インプリントが大きい為に初期分極方向が安定で、反転が完全に行われていないことがわかる。この大きなインプリントは速い成膜反応により、SrRuO<sub>3</sub>の溶解が進み境界層が厚くなったことに関連していると推察される。100nm厚のPbTiO<sub>3</sub>薄膜では約20nmの境界層が存在することが高分解能TEMの観察で明らかになっている<sup>7</sup>。

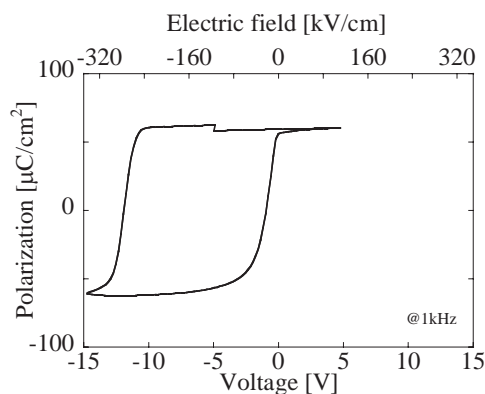


Fig.4 Ferroelectric properties of the epitaxial PbTiO<sub>3</sub>.

さらに、原子間力顕微鏡を用いて、圧電効果について測定した結果を図5に示す。薄膜が線形性の良い圧電特性を示しており、圧電定数  $d_{33eff}$  は97pC/Nであった。直線性に優れているのは、ドメインの回転が無く、電界方向の結晶歪みのみが圧電歪みに関与していることを示唆している。測定結果は現象論を用いて予想されていた単結晶の値(79.2pC/N)<sup>7</sup>に比べて大きな値である。しかし、DEヒステリシス測定結果同様に比較的大きなインプリントが観測された。

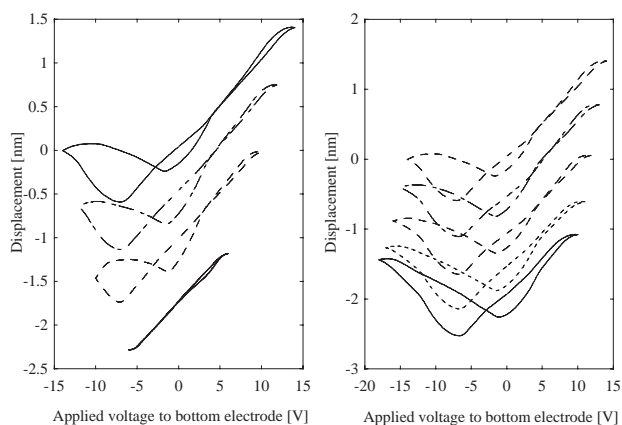


Fig.5 Piezoelectric properties of the epitaxial PbTiO<sub>3</sub> film. The right results were measured with offset voltage.

#### 4. まとめ

従来は極めて困難であったエピタキシャルPbTiO<sub>3</sub>薄膜を水熱法により成膜し、強誘電性と圧電特性等を評価した。高品質なPbTiO<sub>3</sub>薄膜が合成されたが、成膜速度を速くすることにより、完全なc軸配向ではなく、若干aドメインを含んだ薄膜になった。これらの結晶性は、DEヒステリシス曲線等に見られるインプリント現象と深く関係しているものと予想される。

圧電特性に関しては、優れた線形性を示すと共に、97pC/Nという大きな圧電定数を持つことを明らかにした。このような線形性の優れた薄膜は、高周波超音波トランスデューサに適していると期待され、今後応用していく予定である。

#### 謝辞

本研究の一部は村田学術振興財団の研究助成を受けて行われました。

#### 引用文献

1. T. Morita, MK. Kurosawa and T. Higuchi: Sensors and Actuators **A83** (2000) 225
2. K. Kajiyoshi, N. Ishizawa and M. Yoshimura: Jpn. J. Appl. Phys. **30-9B** (1991) L120,
3. AT. Chien, X. Xu, JH. Kim, J. Sachleben, JS. Speck and FF. Lange: J. Mater. Res. **14-8** (1999) 3330
4. T. Morita, Y. Wagatsuma, Y. Cho, H. Morioka and H. Funakubo and N. Setter: Appl. Phys. Lett. **84-25** (2004) 5094
5. T. Morita and Y. Cho: Appl. Phys. Lett. **58-12** (2004) 233
6. T. Morita and Y. Cho: J. of the Korea Phys. Soc. **46 (1)** (2005) 10
7. MJ. Haun, E. Furman, Jang SJ. and Cross LE: Ferroelectrics **99** (1989) 63

## シリカ系超構造薄膜の特性向上の検討

## Improvement of Performance for Super-structure Thin Film Composed of Silica

◦霜鳥 寛崇、藤塚 俊、野毛 悟、宇野 武彦(神奈川工大)

Hirotaka Shimotori, Shun Fukjituka, Satoru Noge and Takehiko Uno (Kanagawa Inst. Tech.)

## 1. まえがき

これまで筆者らは不純物ドーピングしたシリカの分極処理による圧電性の検討を進めてきた。それはゲルマニウムをドーピングしたシリカガラス(germanosilicate)では、熱分極により2次非線形光学効果発現することが知られており<sup>1)</sup>、それにヒントを得たものである。スパッタリング形成のgermanosilicate単一の薄膜では、分極の維持が困難なことから、不純物をドーピングしたシリカのナノ薄層の周期構造とすることにより、圧電性の向上と分極の維持を狙い、これまでである程度の効果を確認している<sup>2)-4)</sup>。この構造を、超構造と呼ぶことにする。今回、圧電特性向上等を目的に、作製条件の検討、分極に関する焦電効果および異常光起電圧効果について調べた。また、新たにシリカ超構造薄膜において、作製条件によっては分極処理なしでも大きな圧電性が観測され、これは特性向上にとって有望である。

## 2. 作製条件による圧電性の向上

Fig.1に筆者らが提案しているシリカ系超構造薄膜の構造図を示す。それぞれ異なる不純物をドーピングしたシリカのナノ薄層を順次周期的に重ねて、ミクロンオーダーの薄膜とする。擬似的に1次元格子の構造をとるため、超構造と呼ぶことにする。現在、我々はドーピング材としてゲルマニウム、チタン、およびスズを用いている。膜形成はRFスパッタリングにより、ターゲットは石英ガラスとしペレット状のドーピング原料を石英ターゲットに載せてドーピングを行っている。スズのドーピング原料は、 $\text{SnO}_2$ を用いるほかないが、ゲルマニウムとチタンのドーピング原料には、金属と酸化物が考えられ、両者を比較した。作製条件の微妙な差異のため、形成された膜の特性は、現在のところばらつきが大きい。ドーピングの原料を全て酸化物ペレットとした方が大きな圧電性が得られる傾向が見られた。圧電性の経時変化については、ドーピング原料による有意な違いはみられない。

noge@ele.kanagawa-it.ac.jp

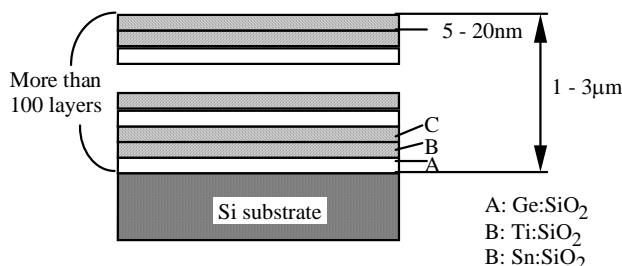


Fig. 1. Silica-based-artificial-lattice structure. (Silica superstructure)

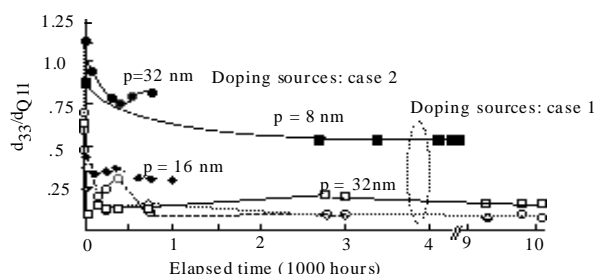


Fig. 2. Aging characteristics of the piezoelectric constant.

Fig.2に圧電定数 $d_{33}$ の経時特性を示す。横軸は分極後の経過時間、縦軸は圧電定数であり、水晶の圧電定数 $d_{11}$ ( $d_{Q11}$ とする)に対する比で示した。分極処理後間もない間は、圧電定数の時間変化が大きく、やがてほぼ一定値に落ち着く。ドーピング原料を全て酸化物とした方が、圧電性は大きい。図中のパラメータ $p$ は、ナノ層の厚さ、すなわち超構造の格子周期である。格子周期が小さいほど圧電性が大きくなる傾向が見られる。作製装置の関係で、格子周期を小さくすることは困難であったため、小さい格子周期による検討は進んでいないが、今後進める予定である。

## 3. 分極に伴う現象の観測

この超構造では、分極により $c$ 軸配向圧電膜と同じ性質を持つと考えられるため、焦電効果および異常光起電圧効果について観測を行った。

焦電効果 焦電効果は実験 Fig. 3 に示す方法で観測した。試料の薄膜表面に、白金の半透膜を蒸着し、波長 806 nm の赤外光を照射して、応答電圧を観測した。Fig. 4 に結果を示す。分極処理を施した試料では、赤外光のオン・オフ

により電圧応答が観測されたが、分極処理を施さない試料では観測されない。このことから、分極した超構造シリカには分極が存在していると考えられる。

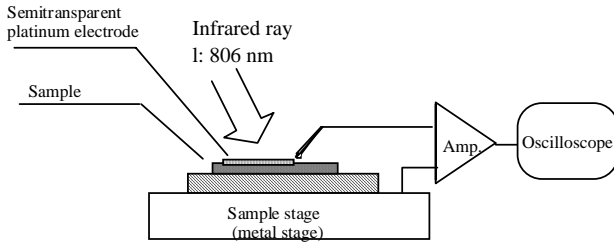


Fig. 3. Observation method of pyroelectricity.

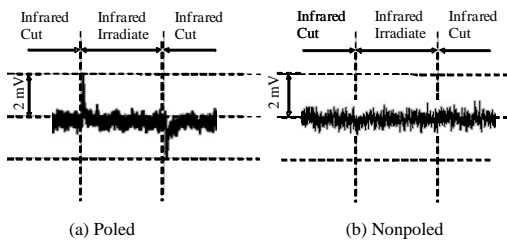


Fig. 4. Pyroelectric response of the superstructure silica film.

異常光起電圧効果 異常光起電圧効果は、強誘電体で観測される現象であり、紫外光照射による起電圧である。焦電効果は温度による分極変化であるのに対し、異常光起電圧効果は、紫外光により生じた自由電子が分極により移動することによる。これについてはすでに文献4) で発表しているが、 $\text{LiNbO}_3$  の 1/10 程度の応答が観測されている。

#### 4. 自然分極現象

超構造シリカ薄膜において、今回新たに薄膜形成後、熱分極処理を施さない as-depo 膜において比較的大きな圧電性を観測した。Fig. 5 にその例を示す。Fig. 5(a) は、試料を上向きにセットした場合の圧電応答で、基準試料としての x カット水晶板による応答とあわせて示す。(b) は試料の上下を反転してセットした場合の応答であるが、(a) とは逆向きの電圧応答が観測されている。

Fig. 5 から、この試料では水晶の約 1/2 の圧電定数を有する。Fig. 5 の応答波形測定とは別に、Piezo d33 Meter (IACAS 製、Model ZJ-3B) により測定したが、ほぼ同じ値が得られた。格子周期は約 10 nm であり、さらに短周期にすれば、水晶を凌駕することも不可能ではないと思われる。さらに多くの試料で、as-depo 状態で水晶の 20–45% の圧電応答が観測されている。このような自然分極の試料では圧電応答の面内均一性も良好である。なお熱分極試料では処理の際の電界不均一性などにより、圧電応答の位置依存性が大きいという問題がある。また、自然分極試料では、

紫外光照射による起電圧効果も観測されている。

自然分極の生じるメカニズムおよび形成条件は現時点では明らかではないが、超構造をとらない試料では、決して観測されなかった現象であることから、ナノ薄膜の周期構造が有効に作用しているものと考えている。シリカ超構造薄膜の圧電性向上には、自然分極が有効と考えられ、形成条件の検討とメカニズム解明が重要である。

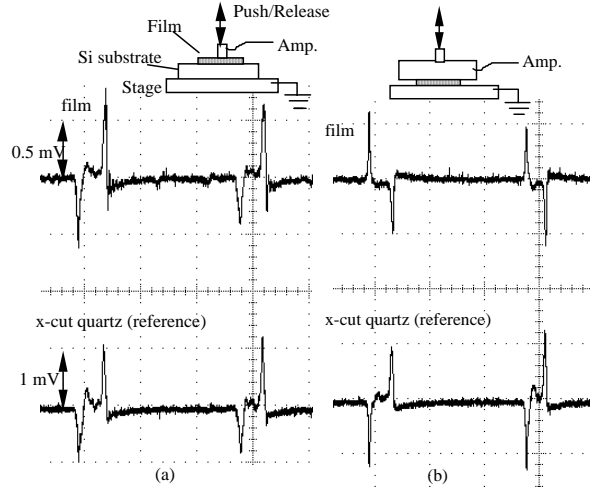


Fig. 5 Piezoelectric response of a natural polarized film.

Lattice period of the film: 10 nm

(a) Film : top side (b) Film: bottom side

#### 5. むすび

シリカ系超構造薄膜の特性、特に圧電性の向上を目指して検討した。特性向上には、ドーピング原料を酸化物とすることが有効と思われる。分極試料において焦電性、異常光起電圧効果が観測され、分極存在の証とされる。

超構造薄膜において、as-depo 状態でも圧電などの分極に伴う現象を観測した。圧電応答は比較的大きい。このような自然分極発現のための形成条件は明確ではないが、その検討により高い圧電性の実現が期待される。

なお、本研究は一部、神奈川工科大ハイテクリサーチセンター（文科省私大助成事業）の援助を受けて行われた。文献

- 1) T. Fujisawa T., M. Takahashi and A. J. Ikushima,; Appl. Phys. Lett. **71** p.1032 (1997)
- 2) S. Noge, M. Shiroishi and T. Uno: J. Electroceramics **13** p.525 (2004)
- 3) S. Noge, M. Shiroishi, and T. Uno: Jpn. J. Appl. Phys. **43** p.5487(2004)
- 4) T. Uno, S. Noge and H. Shimotori,; Jpn. J. Appl. Phys. **44** p.4336(2000)

# 水熱合成法における圧電多結晶膜の 成膜プロセスに関する基礎検討

-過酸化水素を用いた Ti 基板表面処理が圧電多結晶膜の特性に及ぼす影響-

## Novel deposition process of piezoelectric polycrystalline film on titanium surface by hydrothermal method

-Effect of titanium surface treatment with hydrogen peroxide  
on the piezoelectric film properties-

遠藤聡人、川島徳道、竹内真一、石河睦生\*、黒澤実\* (桐蔭横浜大, 東工大\*)  
Akito Endo, Norimichi Kawashima, Shinichi Takeuchi, Mutsuo Ishikawa, Minoru Kurosawa  
(Toin University of Yokohama, Tokyo institute of Technology).

### 1. はじめに

近年、我々は、 $Pb(Ti,Zr)O_3$  (PZT) 等のペロブスカイト( $ABO_3$ )型強誘電体の圧電多結晶膜を、水熱合成法を用いて、Ti 基板上に成膜し、超音波センサの有用性を報告してきた<sup>1,2)</sup>。

水熱合成法の成膜過程は、“Nucleation Process”(結晶核形成プロセス)と“Crystal Growth Process(結晶成長プロセス)”という過程に分けられる。Nucleation Process は、Ti 基板から溶出した  $Ti^{4+}$  イオンを核として、不均一核形成条件を満足するように PZT の結晶核が形成される。

しかし、液相での圧電多結晶の合成は、出発原料の濃度、合成温度、合成時間などの条件を一定に保っても、作製した圧電多結晶膜の材料特性の個体差が顕著であった。そして、Crystal Growth Process では、形成された結晶核の状態が結晶成長にも影響を及ぼす。そこで、良好な結晶核を安定して成膜することにより、素子の個体差を抑え、材料特性値の改善することを目的とした。

現在、我々が研究を行っている水熱合成法においては、合成前の Ti 基板を化学洗浄しているが、これは主に、基板上的不純物を取り除く工程であり、基板表面の粗さや化学的な工程を考慮する必要がある。

そこで今回は、反応性の高い過酸化水素を利用して、Ti 金属表面を酸化腐食した後、基板からの  $Ti^{4+}$  イオンの溶出を多くさせる事により、Nucleation Process に及ぼす影響について確認した。

### 2. Ti 基板の表面処理

本研究で用いた水熱合成法の手順を Fig.1 のフローチャートに示す。材料の均一性および材料特性値を測定するにあたり厚さ  $40\ \mu m$  のチタン基板を用いた。Ti 基板の化学洗浄においては、メタノール - アセトン - メタノール - 蒸留水で各 10 分間超音波洗浄した後に過酸化水素による表面処理を行った。本研究で

用いた過酸化水素の濃度は 30% であり、その溶液内に Ti 基板を 60 分間浸漬した。過酸化水素による基板の影響を比較検討するため、表面処理を行った Ti 基板と化学洗浄のみの Ti 基板を水熱合成装置内下部に挿入し、出発原料溶液を注入した。合成においては、過酸化水素水に浸漬させた Ti 基板と浸漬させない Ti 基板の特性を比較するため、同時に合成を行った。

Figure1 に水熱合成法のフローチャートを示す。

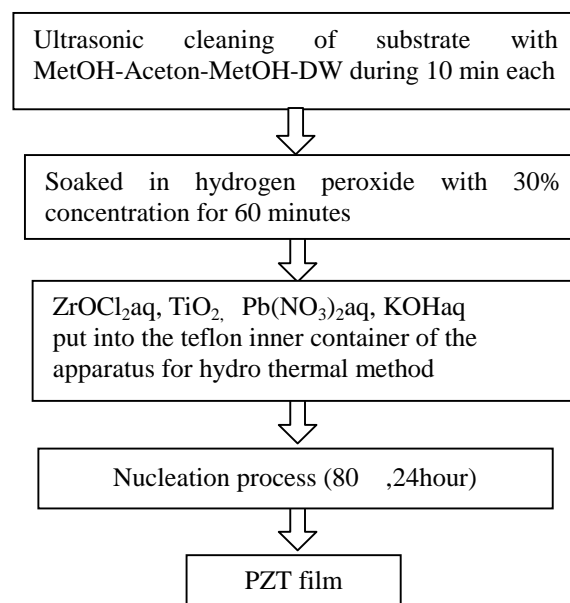


Fig.1 Flow chart of pretreatment and hydrothermal deposition of PZT poly-crystals on Ti substrate

### 3. 実験結果

過酸化水素により前処理を行った Ti 基板界面の親水性の状態を調べるために、過酸化水素の浸漬による表面処理時間と Ti 基板表面の接触角の関係を、接触角計(CA-X、協和界面科学)で測定した。Fig.2 に表面処理時間と接触角の関係を示す。

Figure\_2 から Ti 基板を過酸化水素に浸漬し表面処理を行うと、0min ~ 60min の間では接触角が著しく低くなるが、60min ~ 120min の間では、接触角が低くなる傾向が緩やかになった。Fig.2 から表面処理時

間を60分とすれば未処理の場合と比較してTi表面が十分に酸化腐食されていることが分かる。Ti<sup>4+</sup>イオンの溶出を早め、Nucleation Process に影響を及ぼすことが出来ると考えた。

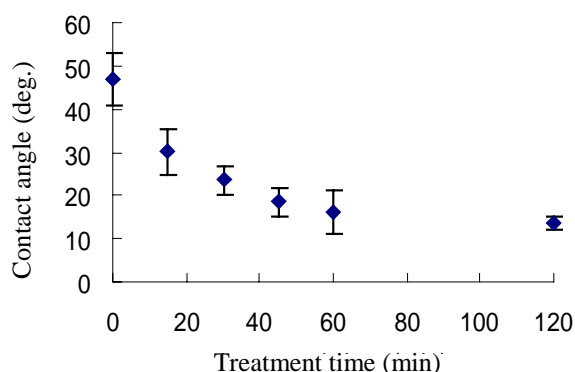


Fig.2 Relationship between immersed time in hydrogen peroxide and contact angle on the surface of Ti substrate

次に Ti 基板の表面が十分に酸化腐食されている場合、Nucleation Process にどのような影響を及ぼすかを検討した。過酸化水素を用いて60分表面処理したものと未処理の各々の Ti 基板を用いて水熱合成を行った。成膜された PZT 結晶膜の表面を、走査電子顕微鏡(SEM)を用いて観察した結果を Fig.3 に示す。

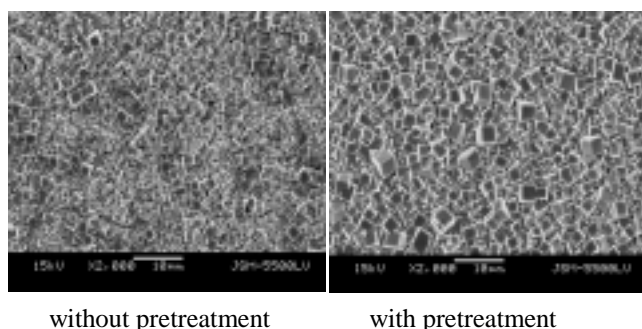


Fig.3 SEM images of the deposited PZT poly-crystals on Ti substrate with and without pretreatment

表面処理の有無が PZT 多結晶膜に与える影響を比較すると、表面処理された後に成膜された PZT 多結晶膜は、未処理に比べて結晶粒子径が均一になり、また結晶粒子径も肥大化することが観察できた。

次に、作製した素子の材料定数について計測を行った。その結果を Table1 に示す。

膜厚を計測すると前処理により 3 μm 薄くなるが、標準偏差の結果は、前処理を行う事により約 4 μm から約 1 μm と減少し、平滑な膜面が得られることが判った。また、密度およびヤング率を計測すると密度、ヤング率の値が約 160% 増加している。この結果から、膜厚が薄くなり、密度、ヤング率が増加する事により、結晶核が基板表面に多く形成していることが考

えられる。

次に、表面処理された後に成膜された PZT 多結晶膜を用いてパイモルフ振動子を作製し、その共振周波数及び振動変位の測定結果<sup>3)</sup>から圧電定数  $d_{31}$  を求めた。用いた Ti 基板の厚さは 40 μm、幅 10mm 長さ 20mm である。測定結果から表面処理により  $d_{31}$  が 187% 向上していることが分かった。また、作製したパイモルフ振動子を用いて絶縁破壊電界を測定した結果、表面処理を行うことで 4 倍程度向上することが分かった。

Table1 The average and standard deviation of film thickness and density on Ti substrate with and without pretreatment

	without pretreatment	with pretreatment
Average Density (g/cm <sup>3</sup> )	3.1	6.9
Average Film thickness (μm)	2.9	4.6
Average Young's modulus (× 10 <sup>10</sup> N/m <sup>2</sup> )	1.9	3.4
Piezoelectric constants: $d_{31}$ (pC/N)	-27	-50
Dielectric breakdown Voltage (V/μm)	3.2	12.8

#### 4. まとめ

過酸化水素により Ti 基板表面を酸化腐食するという表面処理を行うことにより、良好な結晶核を安定して成膜することができた。また材料定数等の測定結果から、電気的な特性も向上させることが出来ることが分かった。

Ti 基板に過酸化水素で前処理を行うと、時間の経過に伴い親水性になる傾向を示した。そして、合成を行った後、PZT 圧電多結晶膜の材料特性を計測してみると、膜厚が薄く平滑になり、ヤング率と密度が向上している傾向を示した。また、圧電定数  $d_{31}$  および絶縁破壊電界の値が向上した。

これらの変化は、基板表面を親水化させることにより、基板から Ti<sup>4+</sup>イオンの溶出を早め、結晶核形成を促進していると考えている。

以上のことから水熱合成法の問題としてあげられていた素子の個体差の問題や圧電定数値の改善が見られた。

#### 参考文献

- 1.石河睦生, USE2004 講演予稿集, (2004), 61
- 2.桂尚樹,音講論, Mar. 2003., 1233-1234
3. Ohba Y., Miyauchi M., Tsurumi T. and Daimon M., Vol32, (1993),4095

# (Bi<sub>1/2</sub>Na<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub>-(Bi<sub>1/2</sub>K<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub> 系 非鉛圧電セラミックスの電氣的諸特性

Electrical Properties of (Bi<sub>1/2</sub>Na<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub>-(Bi<sub>1/2</sub>K<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub> Lead-free Piezoelectric Ceramics

©吉井一滋, 晝間裕二, 青柳倫太郎, 永田肇, 竹中正 (東理大理工)

Kazushige Yoshii, Yuji Hiruma, Rintaro Aoyagi, Hajime Nagata and Tadashi Takenaka (Tokyo Univ. of Sci.)

## はじめに

近年、環境保全に対する意識の高まりを受け、電子部品における鉛などの有害元素を排除する動きが活発となっている。圧電材料として使用される電子セラミックス中の鉛については、現段階では代替品がないことから規制対象から除外されているが、高性能非鉛系圧電材料の研究開発は急務かつ必要不可欠であると考えられる。特に、圧電セラミックスの中で、アクチュエータ系応用分野では、圧電特性の最低条件として、圧電定数  $d_{33} > 300$  pC/N、動作温度範囲を示すキュリー点  $T_c > 200^\circ\text{C}$  が要求されており、その候補として、BaTiO<sub>3</sub> 系、(Bi<sub>1/2</sub>Na<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub> 系、(Bi<sub>1/2</sub>K<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub> 系、KNbO<sub>3</sub> 系が挙げられる。また、これまでに、(Bi<sub>1/2</sub>Na<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub>-(Bi<sub>1/2</sub>K<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub> 系に関し、その構造相境界(MPB)近傍組成において  $d_{31} = 46.9$  pC/N、 $d_{33} = 151$  pC/N という比較的大きな値を示すことが報告されている<sup>1), 2)</sup>。しかし、この組成ではキュリー温度  $T_c$  より低い温度に圧電性が消失する脱分極温度  $T_d$  が存在する。そのため、圧電セラミックスとして利用できるのはそれ以下の温度に限られてしまうが、これまで  $T_d$  についてはほとんど評価されていない。本研究では、 $x(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3-(1-x)(\text{Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2})\text{TiO}_3$  ( $x=0\sim 1.0$ ) [以下 BNKT100 $x$  と略す]において圧電、誘電の温度特性を測定し、 $T_d$  の評価を行った。

## 実験方法

試料は通常の固相反応プロセスにより、仮焼 800~950°C -4h、本焼 1100~1200°C -2h で円柱状の焼結体を作製した。組成は BNKT100 $x$  ( $x=0\sim 1.0$ ) で、銀ペーストを 500°C で焼き付けた後、誘電率  $\epsilon_s$  や誘電損失  $\tan\delta$  の温度特性を LCR メーター (YHP4275A) により周波数 1 MHz で測定した。圧電特性測定用の試料はシリコンオイル中で室温で、2~8 kV/mm の電界による分極処理を行った。(33)モードは  $2 \times 2 \times 5$  mm<sup>3</sup>

e-mail: tadashi@takenaka.ee.noda.tus.ac.jp

の棒状試料を用い、インピーダンスアナライザー (HP4294A) による共振-反共振法で室温~ $T_d$  付近までその温度特性を評価した。

## 実験結果

作製した試料は全ての組成において相対密度 95% 以上の緻密な焼結体であり、X 線回折によりペロブスカイト単一相であることを確認した。

Fig. 1 に BNKT の各組成の圧電温度特性、Table 1 に BNKT の各組成における  $T_d$ 、室温での電気機械結合係数  $k_{33}$  と自由誘電率  $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ 、および圧電定数  $d_{33}$  の値を示す。ここで、 $T_d$  は MPB 付近の組成である BNKT82 で  $142^\circ\text{C}$  と最も低く、MPB から離れると高くなるのがわかり、 $d_{33}$  は MPB 付近の組成である BNKT80 で 168 pC/N という高い値を示したが、 $T_d = 162^\circ\text{C}$  と低く、 $k_{33}$  の温度特性が悪い。また、BNKT90 は  $T_d = 212^\circ\text{C}$  と高いが、 $d_{33} = 87.4$  pC/N と低い。これに対して、BNKT70 は  $T_d = 223^\circ\text{C}$  と高く、 $d_{33}$  についても 134 pC/N と比較的高い。しかし、BNKT70 の  $k_{33}$  は 0.438 で、MPB と比較して大きく低下している。この原因の一つとして、正方晶性が増したことにより抗電界  $E_c$  が大きくなり、正方晶側の組成において十分に分極処理を行うことができなくなった

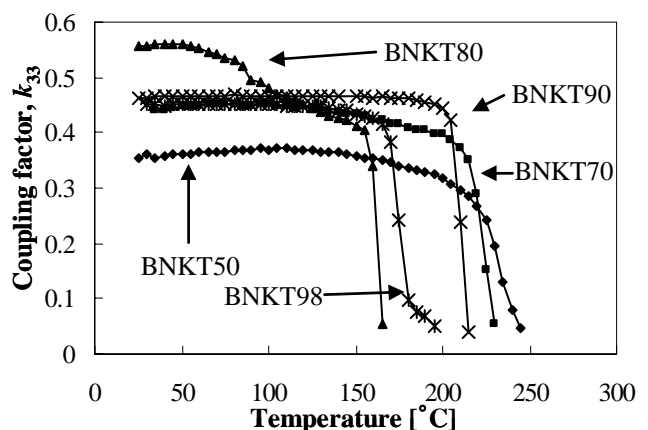


Fig. 1 Temperature dependence of coupling factor,  $k_{33}$ , for BNKT100 $x$ .

**Table 1** The depolarization temperature,  $T_d$ , and piezoelectric properties of BNKT100x.

$x$	$T_d$ [°C]	$k_{33}$	$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$	$d_{33}$ [pC/N]	$x$	$T_d$ [°C]	$k_{33}$	$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$	$d_{33}$ [pC/N]
0.50	235	0.360	920	97.3	0.82	142	0.543	779	149
0.70	223	0.438	1110	134	0.90	212	0.465	423	87.4
0.80	162	0.557	930	168	0.98	176	0.456	407	81.1

ことが挙げられる。分極条件を最適化することにより十分な分極処理を行うことができれば  $k_{33}$  および  $d_{33}$  は大きく改善されると考えられる。

**Fig. 2** に BNKT の各組成の誘電率  $\epsilon_s$  と誘電損失  $\tan\delta$  の温度特性を示す。ここで、 $\tan\delta$  のピークは BNKT90 で 190°C 付近にあり、BKT が増えるにつれて低温側へシフトしている。

**Fig. 3** に BNKT50 の  $k_{33}$  と  $\tan\delta$  の温度特性を示す。ここで、圧電性の消失する温度 (235°C) と、 $\tan\delta$  のピークとは異なっていることがわかる。

また、これまで我々は、非鉛系圧電セラミックス材料として BNKT に BaTiO<sub>3</sub> を加えた三成分系セラミックス  $x(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-}y(\text{Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-}z\text{BaTiO}_3$  ( $x+y+z=1$ ) [以下 BNBK $y:z$  と略す] の  $d_{33}$  および  $T_d$  について報告を行ってきた<sup>2),3)</sup>。**Fig. 4** に今回実験を行った BNKT 系と BNBK2:1 系の  $d_{33}$  と  $T_d$  の関係をそれぞれ菱面晶側と正方晶側の組成に分けて示す。これらの結果から  $T_d$  と  $d_{33}$  は相反する傾向があることがわかる。また、同じ  $T_d$  のときの BNBK2:1 系と比べると、 $d_{33}$  は BNKT 系の方が大きい、有望と考えられる。

### まとめ

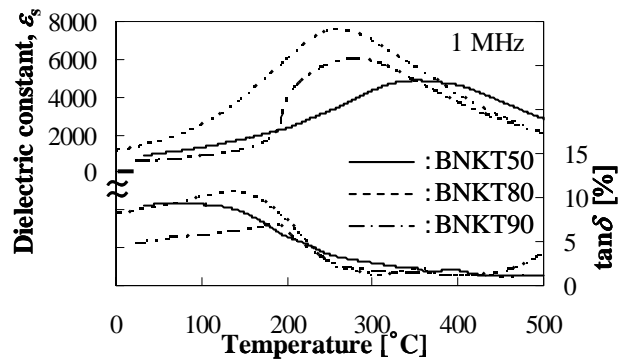
BNKT100 $x$  ( $x=0\sim 1.0$ ) において圧電温度特性を測定し、圧電性の消失する温度  $T_d$  を明らかにした。これにより、BKT を固溶することで MPB 組成に比べ  $T_d$  が高温化し、MPB 以外の組成で  $\tan\delta$  のピークと  $T_d$  が異なっていることを確認した。また、BNKT70 において  $T_d=223^\circ\text{C}$ 、 $d_{33}=134$  pC/N を得た。この  $d_{33}$  の値は分極処理条件を最適化することにより改善されるものと考えている。

### 謝辞

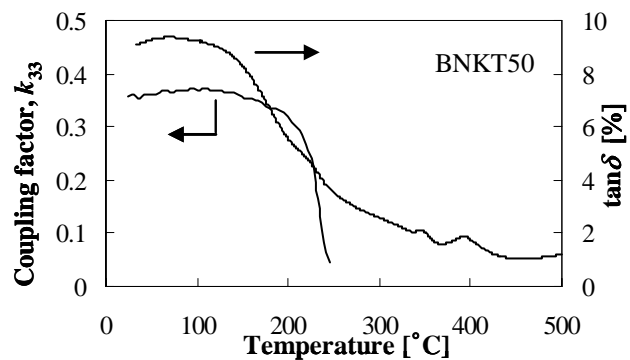
本研究の一部は科学研究費補助金基盤研究 (B)17360327 の助成を受けて行われた。

### 文献

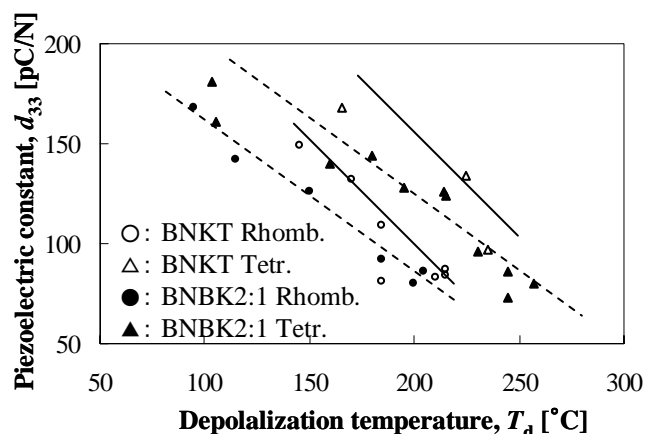
- 1) A. Sasaki, T. Chiba, Y. Mamiya and E. Otsuki: *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** (1999) 5564
- 2) H. Nagata, M. Yoshida, Y. Makiuchi and T. Takenaka: *Jpn. J. Appl. Phys.* **42** (2003) 7401



**Fig. 2** Temperature dependence of dielectric constant,  $\epsilon_s$ , and dielectric loss,  $\tan\delta$ , for BNKT50, 80 and 90.



**Fig. 3** Temperature dependence of coupling factor,  $k_{33}$ , and dielectric loss,  $\tan\delta$ , for BNKT50.



**Fig. 4** Depolarization temperature,  $T_d$ , vs piezoelectric constants,  $d_{33}$ , of BNKT and BNBK2:1<sup>3)</sup>.

- 3) Y. Hiruma, Y. Makiuchi, R. Aoyagi, H. Nagata and T. Takenaka: *Ceramic Transactions*, (2006) (In press)

## 超音波共鳴スペクトロスコピーによる水晶の弾性定数と圧電定数の測定：Bechmann 値は正しいか？

### Measurements of Elastic Constants and Piezoelectric Coefficients of $\alpha$ -Quartz by Resonant-Ultrasound Spectroscopy: Are Bechmann's Values Correct?

荻博次、大森俊伸、中村暢伴、平尾雅彦（阪大 基礎工）

Hirotsugu Ogi, Toshinobu Ohmori, Nobutomo Nakamura and Masahiko Hirao (Osaka Univ. Grad. Sch. Eng. Sci.)

#### 1. 緒言

水晶は最も代表的な圧電材料の一つである。安価に人口合成が可能であり、良好な圧電性を示し内部摩擦が小さいという優れた性質を持ち、すでに多くの振動子デバイスに適用されている。あらゆるデバイスの設計には、弾性定数と圧電定数が必要とされる。Bechmann[1]が1958年にこれらの値を発表して以来、弾性定数と圧電定数の両者を計測した報告は極めて少なく、現在においても Bechmann 値が標準的に使用されているようである。

水晶は点群  $3\ 2$  の対称性を示し、6つの独立な弾性定数と2つの圧電定数を有する。このような低い対称性を示す固体の弾性定数と圧電定数を全て決定するには、従来のパルスエコー法などの測定法では問題が多い。方位の異なる複数の試料に対して正確な音速測定を行わなければならない。結晶を切り出す際の方位誤差、複数の手法の組み合わせによる実験誤差をかなり容認しなくてはならないためである。

著者らは、近年、一つの微小固体から全ての独立な弾性定数と圧電定数を同時に決定する手法を考案した[2]。この手法を RUS/Laser 法 (Resonance ultrasound spectroscopy coupled with laser-Doppler interferometry) と呼んでいる。直方体、球、円柱など、規則形状を持つ試料を針状の圧電振動子センサ上に置き、試料の自由振動の共鳴周波数を正確に測定する。共鳴周波数は数多く存在し、個々の共鳴周波数は試料の密度と寸法、弾性定数、圧電定数に依存する。密度と寸法を計測しておき、測定値ともっとも近い共鳴周波数群を与える弾性定数と圧電定数を逆計算によって決定するのである。

本研究では、RUS/Laser 法によって水晶の弾性定数と圧電定数を測定した結果について報

告し、従来値と比較する。

#### 2. RUS/Laser 法

Fig.1 に示すように、2つの針状の圧電トランスデューサと支持針から構成される3点支持圧電振動子の上に直方体試料を設置する。一本のトランスデューサから連続正弦波振動を送り、他方のトランスデューサで振動振幅を受信する。送信周波数をスイープすることで Fig.2 に示すような共鳴スペクトルが得られる。試料

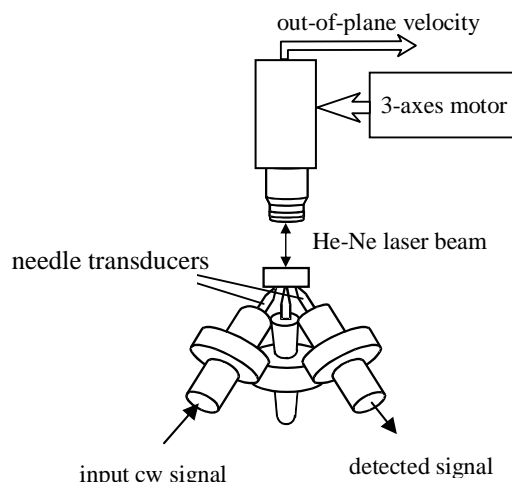


Fig.1 Setup of the RUS/Laser method .

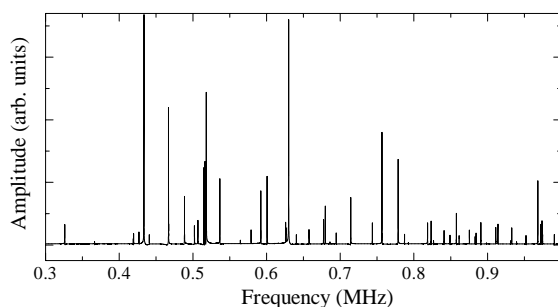


Fig.2 Resonant spectrum of a rectangular parallelepiped  $\alpha$ -quartz crystal with dimensions of  $4.8 \times 5.2 \times 5.8 \text{ mm}^3$  .

とピンデューサの間には音響結合剤は必要としない。また、試料の振動を妨げる外力は負荷されておらず、試料の自重だけが音響結合に貢献するため、試料とトランスデューサ間の接触は安定し、高い精度の共鳴周波数測定が可能となる。測定システム全体は真空中に配置し、大気圧の影響も除去した。試料の内部摩擦にも依存するが、およそ  $10^{-6}$  の相対誤差で共鳴周波数を測定することができる。筆者らが開発した高感度3点支持振動子は、質量が数 mg の試料に対しても測定を行なうことができる。

個々の共鳴周波数のモードを正確に特定するため、Fig.1 に示すように共鳴状態にある試料の上面にレーザー光を当て、反射光の周波数シフト量（ドップラーシフト）から振動振幅を測定し、レーザー光をスキャンさせて振動パターンを測定した。振動パターンは計算することができるため、振動パターンの測定値と計算値を比較することで、正確にモードを特定することができる[2]。

直方体に対しては自由振動の共鳴周波数の解析解は存在しないが、変位と電気ポテンシャルをルジャンドル関数を基底とする多項式によって近似して、レーリー・リッツ法を適用することで  $10^{-4}$  より小さい相対誤差によって共鳴周波数を計算することができる[2]。測定した共鳴周波数を再現するような弾性定数と圧電定数の組み合わせを最小自乗法により決定する。誘電率はこれまでに報告されている値の平均値を使用した。弾性定数と圧電率を合わせて未知数は8つであり、これらを決定するために使用した共鳴周波数の数は70程度である。Fig.3 には収束した後の共鳴周波数の計算値と測定値を比較している。両者の平均差異は0.05%であり、極めて良い一致を示している。これは得られた弾性定数と圧電定数が正しい値であることを裏付けている。

### 3. 結果と考察

本研究で使用した直方体水晶単結晶の寸法は、結晶の X, Y, Z 軸に沿う辺の長さがそれぞれ約 4.2mm, 約 5.2mm, 約 5.8mm である。測定結果の例を Table 1 に示す。Table 1 は2つの異なる結晶に対する測定結果を Bechmann の結果と比較している。測定法や試料が異なるにもかかわらず、RUS/Laser 法によって決定した弾性定数と圧電定数は Bechmann によって報告さ

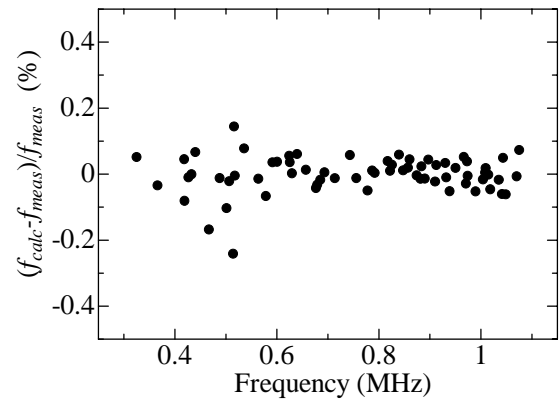


Fig.3 Comparison between measured ( $f_{meas}$ ) and calculated ( $f_{calc}$ ) resonant frequencies of  $\alpha$ -quartz. The rms error is 0.05%.

Table 1 Elastic constants (GPa) and piezoelectric coefficients ( $C/m^2$ ) of  $\alpha$ -quartz.

	$C_{11}$	$C_{33}$	$C_{44}$	$C_{66}$	$C_{13}$	$C_{14}$	$e_{11}$	$e_{14}$
crystal 1	86.61	105.4	58.10	39.73	11.8	-17.8	0.177	-0.093
crystal 2	86.61	105.6	58.02	39.84	11.6	-18.0	0.171	-0.079
Bechmann [1]	86.74	107.2	57.94	39.88	11.9	-17.9	0.171	-0.041

れた値とほぼ一致した。しかし、圧電定数  $e_{14}$  に関しては、両者の一致は見られなかった。RUS/Laser 法によって決定した  $e_{14}$  の絶対値は Bechmann のそれを大きく上回った。これは  $e_{14}$  の力学応答に対する貢献度が低いことが原因と考えられる。そのため、従来法では  $e_{14}$  の貢献が測定誤差に埋もれてしまい、この値を正確に決定できなかったと思われる。 $e_{14}$  の共鳴周波数への貢献度も小さいが、本研究の測定精度や計算精度を考慮すると、この値も数十%程度の誤差で決定することができる。つまり、Bechmann 値に比べて  $e_{14}$  の絶対値は優位に大きな。

### 4. 結言

著者らが開発した RUS/Laser 法によって水晶の弾性定数と圧電定数を決定した。その結果、 $e_{14}$  以外の係数は Bechmann 値とほぼ一致した。 $e_{14}$  の絶対値は RUS/Laser 法による測定の方が Bechmann 値を大きく上回った。RUS/Laser 法は比較的圧電定数の小さい水晶に対しても適用することができ、多くの圧電体の材料定数の正確な測定法の標準的な手法となり得る。

### 引用文献

1. R. Bechmann, Phys. Rev. **110** (1958) 1060.
2. 荻博次, 中村暢伴, 平尾雅彦: 超音波テクノ, **15** (2003) 60.

**-Mn の低温域における磁気変態と弾性特性****Magnetic phase transition and elastic properties of  $\alpha$ -Mn at low temperature**

川崎康典\*、垂水竜一、田部恭裕\*\*、荻博次、平尾雅彦（阪大 基礎工）  
加賀山朋子（阪大 極限センター）

Yasunori Kawasaki, Ryuichi Tarumi, Yasuhiro Tabe, Hirotsugu Ogi, Masahiko Hirao (Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ.), and Tomoko Kagayama (Kyokugen, Osaka Univ.)

**1. 緒言**

-Mn ( $I\bar{4}3m$ ) は約 95K で常磁性  $\leftrightarrow$  反強磁性の磁気相転移を生じ、さらにその磁気相転移温度 (Néel 点) は顕著な圧力依存性を示すことから [1,2]、超高压下では超伝導などの特異な物性の発現が期待されている。しかし、-Mn 単体の結晶構造は極めて複雑であるために、単結晶の作成は容易ではなく、多結晶についても現在に至るまで詳細な物性は知られていない。特に弾性特性については十分な計測がなされていない。

そこで本研究では、試料に対して音響的に非接触な測定が可能である電磁超音波共鳴法 (EMAR 法) を利用して、低温域 (4K ~ 室温) における -Mn 多結晶の弾性率及び内部摩擦計測を行い、磁気相転移の弾性率および内部摩擦への寄与を明らかにするとともに、音響的 Debye 温度を実験的に決定することを目的とする。実際の手順としては、まず超音波共振法 (RUS 法) と EMAR 法を併用し、室温における弾性率と内部摩擦を決定し、その後、低温域における実験を行う。得られた弾性率の温度依存性 (4 ~ 293K) は、Einstein 格子モデルを用いた準調和近似理論を用いて理論解析し、磁気相転移と格子の非調和性について検討を行う。

**2. 実験方法****2-1. 試料**

試料には、純度 99.98% の -Mn 多結晶を用いた。試験片は各辺の長さがそれぞれ  $x = 4.864$ 、 $y = 4.536$ 、 $z = 1.123$  (mm) とする直方体形状であり、アルキメデス法を用いて計測した密度は  $7.404$  ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) であった。なお、本研究で用いた多結晶 -Mn は、等方弾性体とみなすことができるため、独立な弾性率は 2 つである。

\* kawasaki@me.es.osaka-u.ac.jp

\*\* 現京大大学院工能科

**2-2. 電磁超音波共振法 (EMAR 法) [3]**

EMAR 法とは、電磁的に発生させたローレンツ力を音源として材料の共振周波数と内部摩擦を計測する手法である。試料とセンサーの間に音響的接触を必要としないことから、定量的に内部摩擦を計測できるといった優れた特徴を持つ。以下に EMAR 法の計測原理を説明する。

試料をソレノイドコイル中に設置し、コイルに高周波交流電流を流すことで試料表面に渦電流を誘導する。この渦電流と外部静磁場との相互作用によってローレンツ力が発生し、これが音源となって超音波振動が発生する (受信原理は発生原理の逆過程に従う)。この際、交流電流の周波数を掃引すると、試料の共振周波数において、受信振幅はピークを示す。共振周波数は、計測された各共振ピークにローレンツ関数をフィッティングし、その中心周波数を採用した。得られた共振周波数を用いて、Rayleigh-Ritz 法を用いた収束計算により弾性率を決定した。EMAR 法により、 $B_{2g}$ 、 $A_g$ 、 $B_{3g}$ 、 $B_{1g}$  振動グループにおける共振スペクトルの計測を行った。得られた共振ピークは、レーザードップラー振動計を用いた変位計測から完全なモード同定を行い [5]、その後低温試験を行った。

試料の冷却には He ガスの断熱膨張を利用した低温装置を使用し、測定は一定時間毎に共振周波数と減衰係数を自動計測するプログラムを利用した。

**2-3. 弾性率および内部摩擦 [4]**

弾性率テンソル  $C_{ijkl}$  は、Hooke の法則における応力  $\sigma_{ij}$  とひずみ  $\varepsilon_{kl}$  の間の比例定数で、

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (1)$$

と表せる。弾性率は、構成原子の配置と原子間結合力を直接反映しており、物質の熱力学的特性にも大きく関与する。

一方、内部摩擦  $Q^{-1}$  は、EMAR 法で計測した超音波減衰係数 を用いて次のように求められる。

$$Q^{-1} = \alpha / \pi f \quad (2)$$

ここで  $f$  は得られた共振周波数である。いま、複素弾性率を  $\tilde{C}_{ijkl}$  と書くと、弾性率  $C_{ijkl}$ 、および内部摩擦  $Q^{-1}_{ijkl}$  は、

$$\tilde{C}_{ijkl} = C_{ijkl} (1 + jQ^{-1}_{ijkl}) \quad (3)$$

と定義できるため、 $Q^{-1}_{ijkl}$  は複素弾性率の虚数部分として表すことができる。これにより、内部摩擦はテンソル表記することができ、弾性率と対応して、各方位の弾性・非弾性特性について論じることができる。

### 3. 実験結果と考察

Fig.1 に体積弾性率  $B$  と剛性率  $C_{44}$ 、Fig.2 に対応する内部摩擦テンソルの温度依存性を示す。図のように、高温の常磁性相から低温の反強磁性相への相転移では、体積弾性率の大きな低下が、また関連する内部摩擦  $Q_B^{-1}$  には顕著なピークが確認された。計測された。このような  $B$  の変化は、ランダウの 2 次変態理論によると妥当であり、過去の研究においても同様の傾向が認められるが[6]、転移点における内部摩擦のピークはこれまで知られていない。低温側の反強磁性相について Einstein の格子モデルをもとにした準調和近似理論による解析を行った結果、格子の非調和性を示す Grüneisen 定数が 9.14 となった。相転移点における内部摩擦の増大にフォノン散乱が起因すると考えれば、このような大きな  $B$  の低下と  $Q_B^{-1}$  のピークをとともに説明することができる。一方、 $C_{44}$  及び  $Q_{44}^{-1}$  は相転移にほとんど寄与しないと考えられる。

### 4. 結言

本研究では、電磁超音波共振法を用いて、多結晶  $\alpha$ -Mn の弾性率及び内部摩擦の温度依存性の評価を行った。その結果、磁気転移点である Néel 点付近において、体積弾性率  $B$  に大きな変化が見られ、これに関連した内部摩擦にはピークが生じることを新たに見出した。このことから、 $\alpha$ -Mn の磁気転移には、体積膨張成分が大きく寄与する

ものと考えられる。

Table. 1. Elastic moduli, Bulk modulus  $B$  and acoustic Debye temperature  $\Theta_D$  of  $\alpha$ -Mn

	$C_{11}$ [GPa]	$C_{44}$ [GPa]	$B$ [GPa]	$\Theta_D$ [K]
4K	203.4	85.01	90.01	479.3
295K	194.2	80.85	86.41	467.5

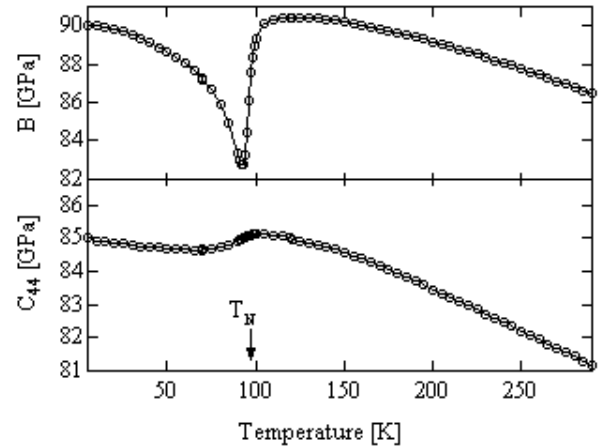


Fig. 1. Temperature dependence of elastic moduli

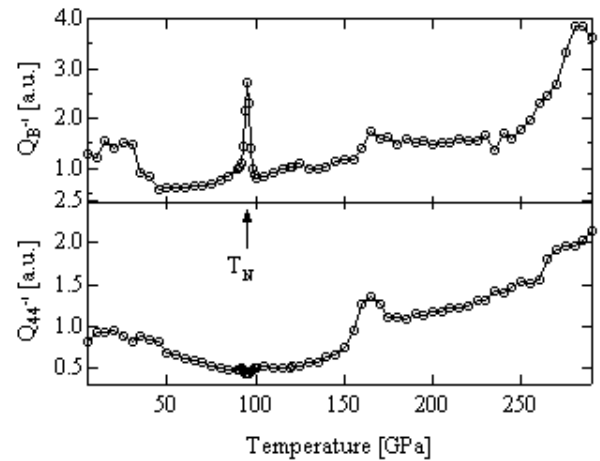


Fig. 2. Temperature dependence of internal friction

### 参考文献

- [1] N.Môri, J. Phys. Soc. Jpn. **37** (1974) 1285.
- [2] S.Tamura, High Temp.-High Pressures **18** (1986) 95.
- [3] M.Hirao and H.Ogi:EMATs for science and industry,(Kluwer Academic Publishers,Boston,2003).
- [4] 比企能夫, 弾性・非弾性, 共立出版株式会社 (1969).
- [5] H. Ogi, K. Sato, T. Asada and M. Hirao, J. Acoust. Soc. Am, **112**, 2553 (2002).
- [6] M.Rosen,Phys.Rev.,**165**,357(1968)

# ソニック結晶による音場の集束

## — 数値解析 —

### Focussing of acoustic waves by a sonic crystal

◎ 田中 智、 向井 嵩洋、 宮下 豊勝、 (龍谷大・理工)

Satoshi Tanaka, Takahiro Mukai, and Toyokatsu Miyashita  
(Dept. Electronics and Informatics, Ryukoku Uni.)

#### 1. はじめに

我々は、人工的に音響散乱体を周期的に並べ、しかも  $10 \times 10$  程度の小規模の2次元配列を作って得られるソニック結晶のフル・バンドギャップを用いた音響導波路の解析を行ってきた [1]。それに対して、本報告では、そのバンドギャップ、正確には、第一バンドギャップより充分低い周波数帯、すなわち通過帯におけるソニック結晶の応用を扱っている。バンドギャップにおいては、散乱体の間隔は関係する音波・超音波の波長の約  $1/2$  のサイズである。それより充分低い周波数においては、結晶の散乱体配列のミクロな構造は効かず、実効的に一様な媒質として働く。その顕著な性質の現れの一つとして、ホスト媒質とは屈折率の異なる連続的な媒質のごとく働き、実効的に境界面で音波・超音波が屈折する。

よく知られているように、アクリル樹脂のような物質で空気中または水中音波・超音波に対する集束レンズを作ると、レンズ形状が凹型になるが、特に空気とレンズ間のインピーダンス不整合が大きく、大きな音波・超音波の反射を伴い、実用上不都合である。それに対して、ソニック結晶を整形して音響レンズを構成した場合は、充填率によって異なるが、本報告において示すように、実効的インピーダンスがホスト媒質である空気または水のそれに近くなるため、入射損失の小さい空中または水中音響レンズの実現が可能である。

空気中アルミニウム円柱2次元配列による音響レンズならびに Fabry-Perot 干渉計の実験的考察が、Cervera らによって報告されている [2]。それに対して、Gupta と Ye は、三角格子2次元配列ソニック結晶により構成される音響レンズ特性を、円柱状物体による2次元音波散乱の計算を基本とする多重散乱法を用いた数値計算によって考察をしている [2]。特に結晶サイズが大きい(散乱体の数が多い)連続体としてマクロにとらえられる場合を扱い、さらに幾何光学的なレンズの結像公式に合わせて、実効的屈折率を論じている。

我々は、実験的にも数値解析的にも考察してきた空気中アクリル樹脂円柱2次元配列からなるソニック結晶 [4] の新しい応用として、2次元ソニック結晶音響レンズの数値解析を始めている。

#### 2. 2次元ソニック結晶の通過帯

まず、Fig. 1 に示す透過率周波数特性は、空間の標本化間隔  $\Delta x (= \Delta y)$  を基準にして、格子間隔  $a = 50\Delta x$  散乱体半径  $r = 20\Delta x$ 、すなわち充填率が 0.503 の場合で、 $11 \times 11$  個のアクリル樹脂円柱の2次元正方配列から成るソニック結晶に対して、弾性波 FDTD 法で計算した結果である。ここで、最初のバンドギャップより充分低い

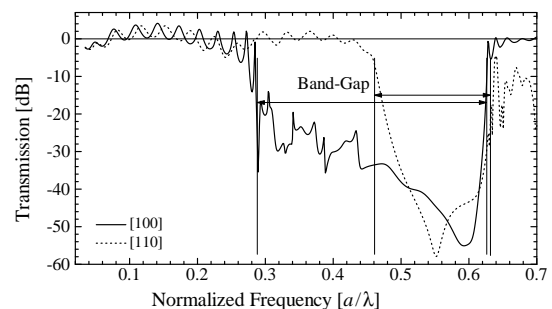


Fig. 1: Band-gap structure of a sonic crystal made of acrylic resin cylinders in air.

通過帯、具体的には規格化周波数において約  $0.1 \sim 0.25$  に注目する。一般に Krammers-Kronig の関係から、急峻なバンドギャップに近接する周波数帯において、屈折率は周波数に依存して変わり分散が生じる。

#### 3. 散乱体の周期配列による2次元凸レンズ

先の Fig. 1 に示した透過率周波数特性計算の場合と同じ2次元結晶構造で、数値分散誤差をより多く伴うことになるが、計算時間が長くなるのを避けて、充填率を同じ 0.503 に保って、空間の標本化間隔を 2.5 倍に粗くした。すなわち、格子間隔を  $a = 20\Delta x$ 、散乱体半径を  $r = 8\Delta x$  として波動伝搬計算を行った。レンズの基になる結晶格

子と方向には、正方格子および三角格子のそれぞれの2つの方向、勿論一般的には任意の方向が可能であり、それらから階段的境界になるが凸形状に切り出した周期配列のブロックが音響レンズの候補となる。まず、**Fig. 2**に示すように、[100]方向正方格子を、球面や放物面ではなく、むしろ菱形に整形した場合を報告する。勿論、菱形にする



Fig. 2: An acoustic lens made of acrylic resin cylinders in air with a [100]-directional square alignment.

には三角格子結晶が適しているが、現在の我々の知見では、他の格子形状と曲面の場合と比べて劣らない結果を得ている。レンズの径は、適用規格化周波数 0.2 近傍において約 4 波長である。

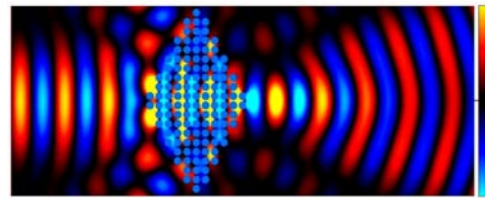
#### 4. シミュレーションによる 2 次元音波の収束

さて、Fig. 1に示したソニック結晶の [100] 方向バンドギャップより充分低い規格化周波数が 0.2 近傍において、音波伝搬を弾性波 FDTD 法でシミュレートした。この周波数において、音波の波長は結晶格子間隔の約 5 倍に等しく、散乱体が波長に比べて細かく分布し、周期構造のマクロな特性、特に実効屈折率が効く領域といえる。

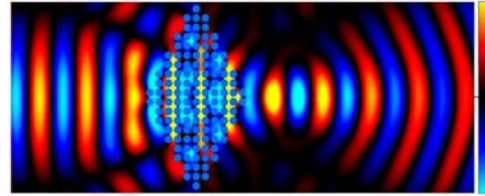
規格化周波数が 0.215, 0.200, 0.175 の場合について、この音響レンズによる平面音波の収束の様子を **Fig. 3**に示す。音圧振幅を 20 dB レンジの明るさ（オリジナルは擬似カラー）で表現しており、隣り合う明るい領域は互いに 180 度位相が異なる波面を表している。音響レンズの左から、レンズ径にほぼ等しい幅をもちガウス型に振幅分布をテーパされた平面音波を入射している。レンズの前面における反射は近軸では充分小さく、端点近くの散乱がレンズの前後に認められる。この図から概略的に読むことができる焦点距離を周波数に対してプロットすると、**Fig. 4**が得られる。焦点距離は、周波数が高くなる程ほぼ直線的に短くなっている。波長  $\lambda$  を尺度として焦点距離を測ると、 $2\lambda$  前後となっている。

#### 5. おわりに

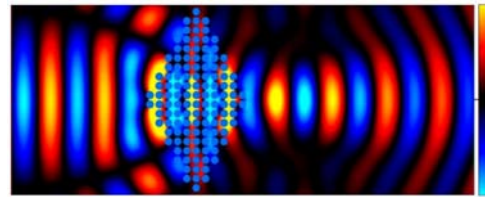
空气中に配置したアクリル樹脂散乱体の正方格



(a) A normalized frequency of 0.215.



(b) A normalized frequency of 0.200.



(c) A normalized frequency of 0.175.

Fig. 3: Focussing of acoustic waves by a sonic crystal lens.

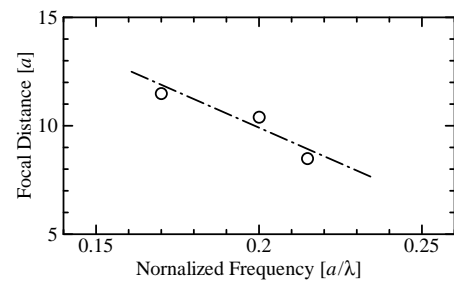


Fig. 4: Focal distance of the acoustic lens.

子配列を菱形に切り出した音響レンズによって良好な音波の収束が得られた。すなわち、端面における音波の反射が小さく、2 波長程度の近距離に単一焦点を結ぶ単純な収束音場分布が得られた。ただし、焦点距離は波長に依存して変わる。今後さらに、母体のソニック結晶の分散特性からの解析、ならびに実験的確認を行う計画である。

#### 文献

- [1] T. Miyashita, Meas. Sci. Technol. vol.16, No.5, pp.R47-R63, May 2005.
- [2] F. Cervera, L. Sanchis, J.V. Sánchez-Pérez, R. Martínez-Sala, C. Rubio, and F. Meseguer, C. López, D. Caballero and J. Sánchez-Dehesa, Phys. Rev. Lett., vol.88, No.2, 023902, 2002.
- [3] B. C. Gupta and Z. Ye, Phys. Rev. E, vol.67, 036603, 2003.
- [4] T. Miyashita, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 41, pp. 3170-3175, 2002.

E-Mail: miya@rins.ryukoku.ac.jp

# 表面反射法による粘弾性測定と摩擦の関係

## Viscoelasticity Evaluation by Surface Reflection Method and Friction Property

小俣順昭 (オムロン), 近藤猛, (京工織大院), 倪慶清 (信州大)  
Nobuaki Omata (OMRON), Takeru Kondo (Kyoto Institute of Technology)  
and Qing-Qing Ni (Shinshu Univ.)

### 1. はじめに

ゴム材料の摩擦特性と粘弾性特性には深い関係があると知られており、自動車用タイヤなどは粘弾性特性を計測することで、摩擦特性の評価を行っている。タイヤと路面などの実際のすべりでの振動数は、100Hz~1MHz 帯となるため、材料開発のために、高周波数での粘弾性特性の計測が必要である。

従来、粘弾性特性の計測には、動的粘弾性測定 (Dynamic Mechanical Analysis, 以下 DMA) が用いられている。この方法は 100Hz 以下の低周波振動下での測定であり、高周波数領域は時間温度換算により評価している。時間温度換算は換算誤差の問題などが指摘されている。そこで、直接高周波数振動を与えることができる超音波に着目し、超音波による粘弾性特性の評価方法を研究してきた。<sup>1)</sup>

従来の超音波を用いた粘弾性評価としてはゴム試料中を伝播させて減衰係数を求める粘弾性特性評価方法が考案されているが、減衰による信号強度の低下などが問題となっていた。そこで、試料表面反射波の複素反射率を利用した粘弾性評価方法 (以下表面反射法) を検討し摩擦係数との関係を検討した。

### 2. 原理

表面反射波による粘弾性評価は古くからせん断波を用いて液体の粘度を測定する試みがなされてきた。<sup>2)~5)</sup> また、縦波を用いた複素音響インピーダンスの検討報告<sup>6)</sup> もあるが、物性までは検討していなかった。

試料表面での複素反射率 (絶対値と位相遅れ) から、貯蔵弾性率  $L'$ , 損失弾性率  $L''$ , 損失正接  $\tan \delta$  を求める式を(1)~(3)に示す。

$$L' = \frac{Z_{Buffer}^2 (1 - |R|^2)^2 - 4|R|^2 \sin^2 \theta}{\rho (1 + 2|R| \cos \theta + |R|^2)^2} \quad (1)$$

$$L'' = \frac{Z_{Buffer}^2 4|R| (1 - |R|^2) \sin \theta}{\rho (1 + 2|R| \cos \theta + |R|^2)^2} \quad (2)$$

$$\tan \delta = \frac{L''}{L'} = \frac{4|R| (1 - |R|^2) \sin \theta}{(1 - |R|^2)^2 - 4|R|^2 \sin^2 \theta} \quad (3)$$

$\rho$  : 試料密度

$Z_{Buffer}$  : 遅延材の音響インピーダンス

$\theta$  : 反射に伴う位相差遅れ

$|R|$  : 反射率の絶対値

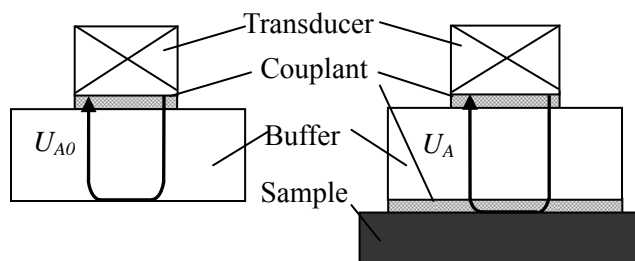


Fig. 1 Schematic of measurement apparatus of surface reflection

### 3. 実験方法

図1に実験の概要を示す。それぞれの界面を市販の接触媒質により音響結合させて、遅延材を介して試料に、垂直に超音波を入射させ、試料表面での反射波  $U_A$  と空気での反射  $U_{A0}$  を計測し周波数解析を行った。得られたデータから空気での反射を基準に正規化して式(1)~(3)によって  $L'$ ,  $L''$ ,  $\tan \delta$  を求めた。

試料は自動車タイヤによく用いられる BR

(ブタジエンラバー), SBR (スチレンブタジエンラバー), さらに, 紙幣搬送用のゴムローラに用いられる PNR (ポリノルボルネンラバー) を用いた. 遅延材には PS (ポリスチレン) を用いた.

測定は, 縦波トランスデューサを 3 種類用いて 1 MHz ~ 100 MHz の帯域の測定を行った. また, 比較データとして, 摩擦係数の測定として, 同試料で作成したゴムローラと紙を滑らせる摩擦試験を行った.

#### 4. 結果と考察

図 2 に超音波表面反射法による  $\tan$  と摩擦係数  $\mu$  の周波数特性を示す. 表面反射法による  $\tan$  は計測周波数範囲では SBR のピークが見られ, PNR はより低周波に, BR はより高周波にピークがあることを推測されるような周波数特性が得られた. 摩擦係数についても計測周波数範囲で,  $\tan$  と同じような傾向が得られた. ここで, SBR のピーク周波数が一致するように摩擦係数  $\mu$  を各試料とも 3 桁対数軸上でシフトさせている.

図 3 に表面反射法による  $\tan$  と摩擦係数  $\mu$  の関係を示す. その結果, 両者の間に線形的な関係を得た. 同じ周波数シフト量で各試料について相関関係を得たことから, 表面反射法による  $\tan$  と摩擦係数  $\mu$  の周波数特性には一定の関係があると考えられる. よって, 表面反射法によって摩擦特性の評価が可能であると考えられる.

#### 5. まとめ

超音波表面反射法による  $\tan$  と摩擦係数  $\mu$  の間に相関関係を得た. このことから, 本測定方法による摩擦特性の評価が可能であることが分かった.

この方法は, DMA のように広範囲の温度制御は必要なく, また試料表面での反射波を使用するため, 試料形状などの制限も少なく, 測定方法もトランスデューサを試料に接触させるだけというシンプルな方法であるため, 従来の方法では不可能であった, 使用状態でのリアルタイム粘弾性評価による摩擦係数検討に貢献できるものと期待できる.

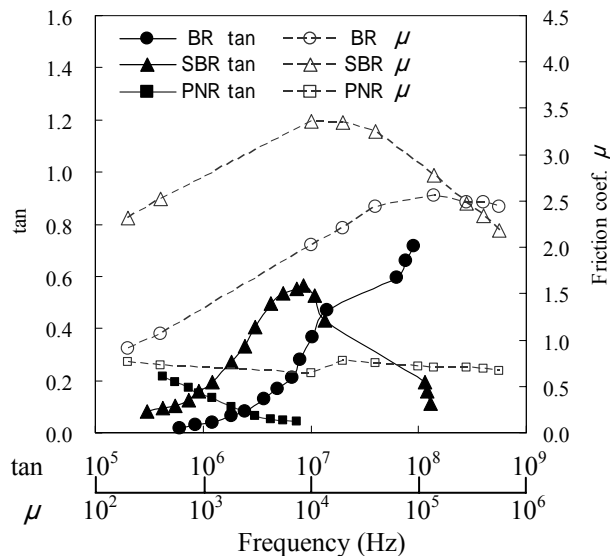


Fig.2 Frequency relationship between ultrasonic  $\tan$  and friction coefficient  $\mu$

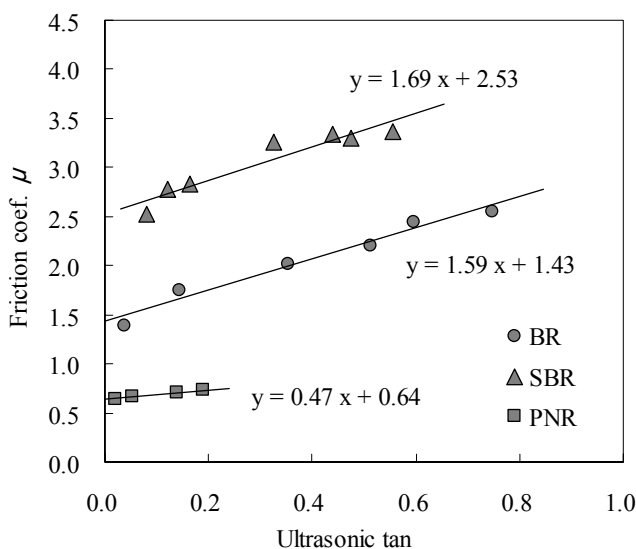


Fig.3 Relationship between ultrasonic  $\tan$  and friction coefficient  $\mu$

#### 引用文献

1. 近藤・小俣: 材料学会, FRP シンポジウム (2005)
2. 実吉純一: 超音波技術便覧, (1978) 606.
3. H.T.O'Neil: Phys.Rev. **75** (1949) 928.
4. W.P.Mason, W.O.Baker, H.J.McSkimin and J.H.Heiss: Phys.Rev. **75** (1949) 936.
5. S.M.Crawford: Proc.Phys.Soc.69B(1956) 1312.
6. 八木・守屋: 第 22 回超音波エレクトロニクス基礎と応用に関するシンポジウム(2001)

## 微小水滴の瞬間凍結に伴う AE 発生と 誘電率ジャンプの測定

### Acoustic Emission and Dielectric measurement for solidification process of a small water droplet

©小林貴司、佐々木宣之、中島春彦 (農工大 工)

Takashi Kobayashi, Nobuyuki Sasaki and Haruhiko Nakajima (Tokyo University of Agri. and Tech.)

#### 1. はじめに

我々はこれまで、過冷却水滴の凍結に伴う超音波の発生(Acoustic Emission, AE)について調べてきた<sup>1)</sup>。その結果、凍結に伴う AE を捕捉し、凍結初期における表面の凍結および凍結後期における凍結表面の歪み、気泡について観察した。そして、巨視的な水滴の凍結のメカニズムは一連の複合的なプロセスの結果であることがわかった。今回は、凍結瞬間について、結晶化速度、結晶化度等を誘電測定で調べた。

測定原理としては、水と氷の比誘電率の違いを利用し、水から氷への結晶化を検出する。水滴を間に挟んだコンデンサを作成し、共振回路により、共振周波数の変化を捉える。今回用いた周波数は 1GHz 付近であるが、水の緩和時間は  $10^{-11}$ s のオーダーであるため、外部電場に対し水分子の配向はまだ追従可能であり、約 80 の比誘電率をもつ。一方、氷は、緩和時間のオーダーが  $10^{-5}$ s であり、水分子の配向が追従することができないため、比誘電率は約 3 となる。

#### 2. 実験方法

底が撥水性をもつフッ素樹脂でコーティングした銅基板の容器にシリコンオイル  $17\mu\text{l}$  を入れ、その中に  $0.02\mu\text{l}$  の水滴を滴下した。水滴の上から長さ 5mm、先端の直径  $60\mu\text{m}$  の針を近づけていき、針と基板との距離が  $100\mu\text{m}$  の位置で固定した。以上の条件で水滴を針と基板で

挟んだもので測定用キャパシターを形成した。測定用キャパシターを電圧制御発振器(VCO)の LC 共振器に並列に接続した(Fig. 1)。

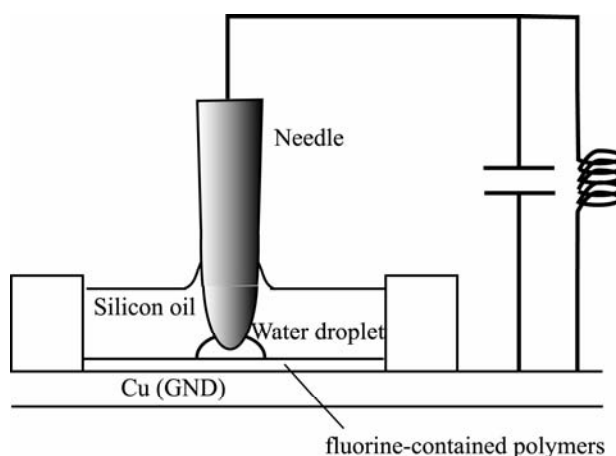


Fig. 1 A capacitor made of a needle and a small water droplet.

水滴と VCO からなる誘電セルを冷却室の中に入れ、その共振周波数の変化を測定した。周波数の測定は、周波数カウンタと FM 検波器で行うが、周波数カウンタでは 1s 毎、FM 検波器では数十  $\mu\text{s}$  毎の測定が可能である。今回用いた装置のブロック図を Fig. 2 に示す。FM 検波器の検波する周波数が 10.7MHz 付近であるため、もう一つの VCO と Double Balanced Mixer (DBM) を用いて周波数を下げてから FM 検波器に入力している。

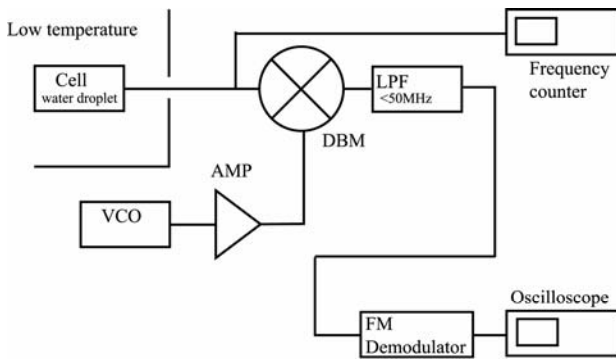


Fig. 2 Block diagram of the experimental system.

### 3. 実験結果および考察

水滴を室温(27°C)から-10°Cまで冷却を行ったときの周波数カウンタで測定した共振周波数の変化を Fig. 3 に示す。冷却開始から徐々に周波数が小さくなっているが、これは水の比誘電率が温度の低下に伴い増加していることを示している。冷却開始から1時間後からは周波数がほぼ一定の部分があるが、冷却室の温度が-10°Cでほぼ一定となった部分である。冷却開始から2時間後に約2MHzの共振周波数のジャンプが見られた。この時点で水の結晶化が起きたと考えている。

この共振周波数のジャンプが起こったところを拡大すると Fig. 4 のようになる。約2MHzの共振周波数の増加が起こっている。周波数カウンタでの測定のため、測定間隔は1sであり、1s以内に結晶化が完了していることがわかる。

ジャンプ後の周波数は1.329GHzであるが、冷却途中の水の状態における周波数と同じ値である。氷の比誘電率と冷却途中の水の比誘電率は大きく異なるので奇妙ではあるが、今回の共振周波数の変化は、シリコンオイルの温度変化、水および氷の熱膨張による効果等を総合したものであり、詳細は未定である。また、今回のように針を用いたキャパシターの場合に、共振周波数を計算するための静電容量は、平面コンデンサの場合と異なり単純な式で表すことができない。有限要素法等を用い静電容量を計算し、比較することが必要と考えている。

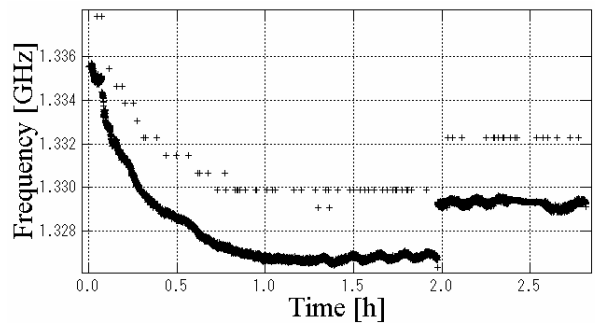


Fig. 3 Change of frequency.

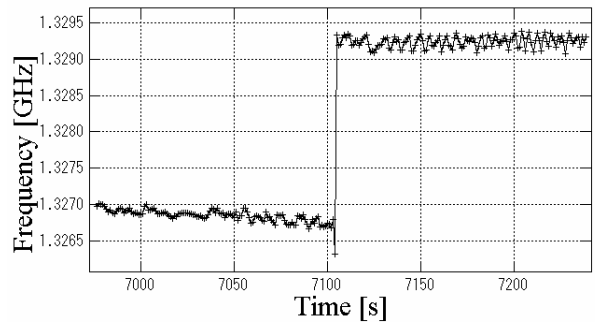


Fig. 4 Change of frequency.

### 4. まとめ

水滴を含む共振回路を作成し、水滴の結晶化に伴う共振周波数の跳びを測定した。FM 検波器を用いた高速測定については、現在、準備中である。今後は、水の量をさらに減らした場合の変化について調べていきたい。

### 謝辞

東北大通研の長康雄教授には VCO 及びその使用方法を提供して頂きました事にここに感謝します。

### 引用文献

1. 濱田枝里 他:USE04 講演論文集 (2004) 65.

# 広帯域振動複屈折法によるひもミセル系の配向緩和測定

## Observation of Orientational Relaxation on Worm-like Micelle Solution by Quadrapole Flow Birefringence Spectroscopy

細田 真妃子<sup>1</sup>、堀井 和由<sup>2</sup>、高木 堅志郎<sup>2</sup>、小川 英生<sup>1</sup>、野村 浩康<sup>1</sup>、酒井 啓司<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>東京電機大、<sup>2</sup>東大生研)

Maiko Hosoda<sup>1</sup>, Kazuyoshi Horii<sup>2</sup>, Kenshiro Takagi<sup>2</sup>, Hideo Ogawa<sup>1</sup>, Hiroyasu Nomura<sup>1</sup>, and Keiji Sakai<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>Tokyo Denki Univ., <sup>2</sup>Inst. of Industrial Sci., Univ. of Tokyo)

### 1. はじめに

流動場による分子あるいは分子集合体の配向・変形のダイナミクスを調べる手法として振動場流動複屈折法が有力である。我々は Hz~kHz 域での測定が可能な四重極流動複屈折法を開発し、ひも状ミセルの配向緩和現象を観察した。ある種の界面活性剤分子は水溶液中で球状のミセルを形成するが、この水溶液中に塩を添加すると形状が球から棒・ひも状、と変化する。この形状は塩と界面活性剤分子の濃度比に依存する。今回はひもミセルを形成する典型的な界面活性剤 CTAB について複屈折現象のスペクトル測定を行なった。

### 2. 測定原理および装置

本装置では対向する四つのピエゾアクチュエータによって流体のずり流れを誘起する。上下および左右の対向する二つのアクチュエータを組として、それぞれ逆位相の電圧を印加する。Fig.1 にその模式図を示す。

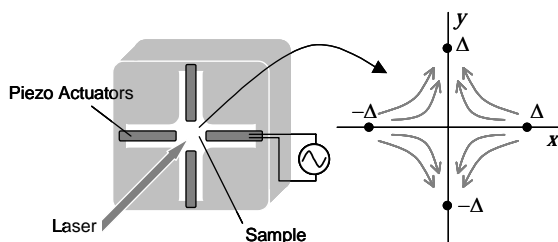


Fig.1 Schematic view of the Quadrapole flow birefringence spectroscopy.

流体中において、対向する二つの湧き出しと吸い込みの組による流動場を考える。Fig.1 においてレーザー光が透過する方向に振動子および試料セルは十分に大きく  $z$  軸に対して対称であるとする。非圧縮条件が成り立つ場合、位置  $\mathbf{r}_i$  にある湧き出しによる流動場は次式で表される。

$$\Delta\phi(\mathbf{r}) = \sum_{i=p,n} C_i |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|, \quad (1)$$

$C_i$  は湧き出し口である  $\Delta$  における流れの強さを表している。  $|\mathbf{r}| \ll \Delta$  の条件で流体速度を計算する

と、ずり変形の大きさは

$$\gamma_{ij} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_i \partial x_j} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} C e^{i\omega t} + O\left\{ \left( \frac{|\mathbf{r}|}{\Delta} \right)^2 \right\}. \quad (2)$$

となり、空間的に一様なずり場が実現される。そして湧き出しと吸い込みが角周波数  $\omega$  で周期的に変化することで振動流動場が誘起される。流動場と分子配向場間にカップリングが存在するとき、これに伴って誘起される配向は複屈折現象として測定される。一般的な配向緩和現象では、配向のオーダーパラメータ  $Q$  の運動は次の方程式で記述される。

$$\frac{\partial Q_{ij}}{\partial t} = -\Gamma Q_{ij} + \frac{\mu}{\nu} \gamma_{ij}. \quad (3)$$

ここで  $\Gamma$  は緩和周波数、 $\mu$  および  $\nu$  は回転粘性およびカップリング定数である。周期振動における配向緩和スペクトルは

$$Q_{ij}(\omega) = \frac{(\mu/\nu)\gamma_{ij}}{i\omega + \Gamma}. \quad (4)$$

となる。したがって、アクチュエータの振動周波数を掃引し、応答信号の振幅および位相を測定することにより配向緩和現象を観測することが可能になる。

### 3. ひも状ミセルにおける緩和周波数の観察

この四重極法を用いて界面活性剤水溶液におけるミセルの配向ダイナミクスを測定した。試料は CTAB (セチトリメチルアンモニウム臭化物) にサリチル酸ナトリウムをモル比 0.6 で添加した水溶液である。CTAB 水溶液は添加塩量の変化に加え、温度を制御することによりミセルの形状を制御することができる。すなわち温度の上昇により、ひも・棒・球の形状の変化を観察することが可能である。添加塩のモル比 0.6 の溶液においてはそのミセル形状は 20 付近でひも、40 付近で棒、45 以上では球状であるとされている。

Fig.2 は四重極法で測定した流動複屈折の複素

スペクトルの温度依存性である。スペクトル全域

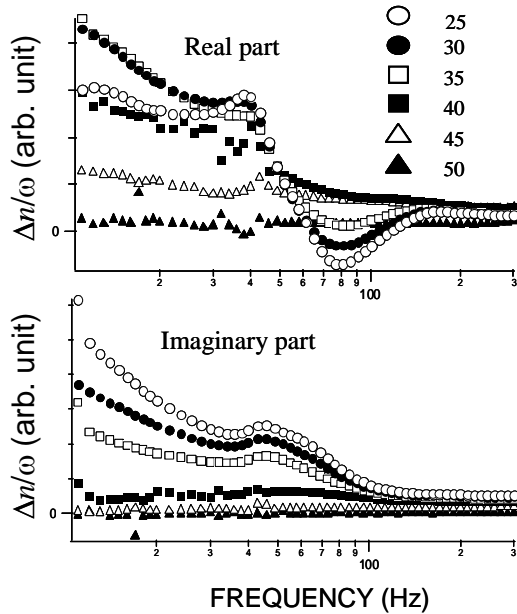


Fig.2 Complex relaxation spectra of orientational motion of worm-like.

では周波数の増加に伴って複屈折量が減少する

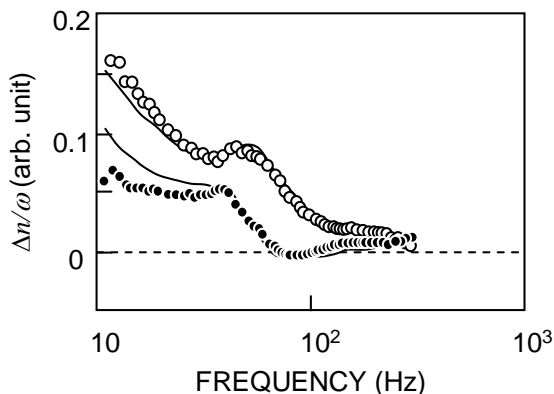


Fig.3 Resonance spectra of CTAB solution at 25 and the theoretical curve of eq.(5).

緩和現象が観察された。これはこれまでにリブロン複屈折法で測定された結果とよく一致する。従来の方法ではそれぞれのミセル形状によって異なった緩和スペクトルを示し、球状ミセルにおいては複屈折は観察されないとされてきたが、今回の結果では 50 においても弱いながら緩和スペクトルが現れている。この結果がひもミセルの残存によるものか、あるいは球ミセルの変形によるものかは現在のところ不明であり今後さらに詳細な検討が必要である。

一方、きわめて特徴的なふるまいとして、35 以下において 60Hz 付近にピークを持つ共鳴現象に特有な複素スペクトルが観察された。これは従来の緩和による記述では説明できないまったく

特異なスペクトルである。

このスペクトルを解析する最初のアプローチとして、きわめて現象論的ではあるがこれを配向緩和と共鳴のスペクトルの和として再現することを試みた。

ずり流動にともなう配向はずり速度  $\partial v$  に比例する。さらに共鳴の成分はこれを引き起こす復元力がピエゾ素子によって与えられる変位に比例するとして、その応答スペクトルは

$$Q(\omega) = \left\{ \frac{A/\Gamma}{i\omega + \Gamma} + \frac{B}{i\omega} \frac{\gamma}{i(\omega - \omega_0) + \gamma} \right\} \partial v \quad (5)$$

となる。ここで  $\omega_0$  は共鳴の固有振動数、 $\gamma$  はピー

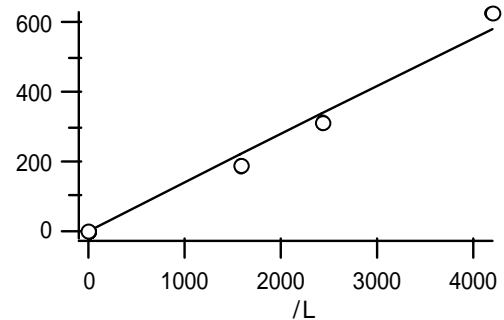


Fig.4 Relation of the resonance frequency and the inverse of the gap of quarapole actuators. The solid line shows the linear dispersion giving the frequency independent elasticity.

ク幅である。Fig.3 中の実線はこのスペクトルであり、測定値と非常によい一致を示すことが分かった。

ギャップ長を変化させずに温度だけ変化させると、この共鳴スペクトルは 40 近辺で消失する。このように共鳴部分と緩和部分は温度について異なった挙動を示す。

この共鳴成分の固有振動数を圧電素子間距離を変化させて測定した結果を Fig.4 に示す。共鳴周波数は距離の逆数に比例し、配向状態の振動を起こす原因が試料の弾性的なふるまいに起因していることを示唆している。この特異な配向ダイナミクスについてはいまだに不明な点が多く、その解明には今後の検討が必要である。

#### 4. まとめ

開発した四重極流動複屈折法を用いて、界面活性剤水溶液のミセル状態の高精度観測ができるようになった。またひもミセルの配向ダイナミクスを複屈折の広帯域スペクトルとして測定した結果、その配向が共鳴的にふるまうという特異な現象が観察された。これは今後ミセルの動的形成機構を考察する上できわめて重要な情報である。

# ハイドロホン相反校正における 超音波非線形伝搬の影響

## Influence of the ultrasonic nonlinear propagation on the hydrophone calibration by two-transducer reciprocity method

©吉岡正裕, 佐藤宗純, 菊池恒男, 松田洋一 (産総研)  
Masahiro Yoshioka, Sojun Sato, Tsuneo Kikuchi and Yoichi Matsuda (AIST)

### 1. はじめに

ハイドロホン感度の絶対校正法として, 相反原理を応用した2振動子による校正法(以下, 相反法)<sup>1)</sup>, スキャン法<sup>2)</sup>, レーザ干渉法<sup>3)</sup>等がある. レーザ干渉法と相反法による校正値を比較したところ, 校正時の音圧が高いほど相反法による校正値が低下するというレーザ干渉法では見られない現象が生じた.

スキャン法では, 超音波パワーが強くなると非線形伝搬のためビームプロファイルが影響を受けて, 校正値が低下することが報告されており<sup>4)</sup>, IEC規格 61101<sup>2)</sup>には, 非線形性の影響による誤差の見積もりについて記述されている. 一方, 相反法に関する規格 IEC60866<sup>1)</sup>では, 線形音場を前提として算出した回折や吸収に関する補正値を用いているが, 非線形伝搬の影響については記述されていない.

そこで本稿では超音波の非線形伝搬が相反法に及ぼす影響を調べるため, KZK (Khokhlov Zabolotskaya Kuznetsov)の式を用いて検討を行った<sup>5)</sup>. この式は, 超音波音場の測定値とよく一致する非線形音響モデルとして知られ, これを利用したハイドロホンの比較校正も行われている<sup>6)</sup>. 本研究では, 校正値低下の原因は超音波の非線形伝搬の影響として説明できることがわかったので報告する.

### 2. 相反校正法の原理

相反法の概略図を Fig. 1 に示す. はじめに電流  $I_1$  (A) で駆動する振動子から放射される超音波を, 距離  $d$  (m) の位置に置かれた平面反射板を介して振動子自身で受波する. この受波出力電圧  $U_1$  (V) を測定して振動子の送波感度  $S_1^*$  (Pa/A) を自己相反の原理で求める. 次に反射板を取り除き被校正ハイドロホンで超音波を受波した際の実出力電圧  $U$  (V) を測定する. 平面音場を仮定した音圧を  $p_1$  (Pa) とすると, ハイドロホンの受波感度  $M^*$  (V/Pa) は以下の式から求められる<sup>1)</sup>.

$$M^* = \frac{U}{p_1} = \frac{U}{I_1 S_1^*} = \frac{U}{I_1} \left( \frac{I_1 J_p}{U_1} \right)^{1/2} \quad (1)$$

$$J_p = 2A_1 / (\rho c) \quad (2)$$

ここで,  $A_1$  (m<sup>2</sup>) は振動子の有効面積,  $\rho$  (kg/m<sup>3</sup>) は伝

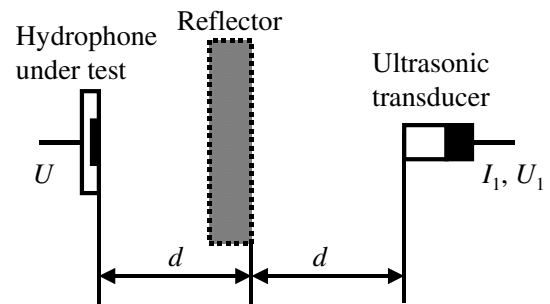


Fig. 1 Schematic diagram of the hydrophone calibration by two-transducer reciprocity method.

搬媒質の密度,  $c$  (m/s) は音速である. 平面波仮定との相違から生じる影響等を補正して得られる最終的な感度  $M$  (V/Pa) は(3)式で与えられる<sup>1)</sup>.

$$M = \frac{\sqrt{r k_{ul}}}{k_u} G M^* \quad (3)$$

ここで,  $r$  は反射板の音圧反射係数,  $k_{ul}$  は振動子出力の測定電圧と開放端電圧の比,  $k_u$  は校正時の被校正ハイドロホン出力電圧測定と校正後音圧測定に利用する際の終端条件の違いを補正する係数, また  $G$  は超音波の回折と吸収に関する補正値で, 以下のように表される<sup>1)</sup>.

$$G = \frac{\sqrt{G_1}}{G_2} \exp(\alpha d) \quad (4)$$

$G_1, G_2$  はそれぞれ振動子または被校正ハイドロホンの受波音圧(受波面における音圧の平均値)を音源音圧(音源表面の送波音圧)で規格化した値で, 線形音場を仮定した回折を考慮して理論計算される<sup>7)</sup>.  $\alpha$  (neper/m) は伝搬媒質の吸収係数である.  $G$  は音源音圧に依存しない.

### 3. 超音波非線形伝搬の影響

はじめに本節以降で使用される実験条件について述べる. 実験では, 23°C の水中で半径 6.35 mm の振動子を 5 MHz で駆動し, 放射音波を伝搬距離  $2d = 370$  mm にて半径 0.2 mm のメンブレンハイドロホンで受波し, 5 MHz の音圧分布測定やハイドロホン感度校正を行った.

KZK の式により音圧分布を計算するためには, 音源音圧の値が必要である. そのため, 線形性が成立する音場における伝搬距離 370 mm の音軸上音圧を

レーザ干渉法による校正値で測定し、回折と吸収を考慮<sup>7)</sup>して音源音圧を算出した。同時に測定した振動子への入力電流から、音源音圧と入力電流の関係（振動子は線形動作していると仮定）を求めた。相反法の実験においては、振動子入力電流を調節して、音源音圧を約 10 kPa から 100 kPa 以上まで変化させている。

音軸に直交する面における超音波音圧分布を KZK の式から理論計算した。Fig. 2(a) は基本波音圧分布を音源音圧で規格化したグラフである。音源音圧が 11.4 kPa の場合（実線）に比べて、114 kPa の場合（点線）は伝搬に伴い大きく減衰している。一方、Fig. 2(b) に示した 2 次高調波は音源音圧が高いときは逆に大きくなる。理論計算と同じ条件における音圧分布の測定値（●:音源 11.4 kPa, ■:音源 114 kPa）は基本波、2 次高調波とも理論値と一致していることを確認した。このように音源音圧が高くなると、非線形伝搬の影響により減衰が増加し、受波面の音圧分布も変化する。

#### 4. 感度校正値の比較

Fig.2(a)に示した KZK の式による音圧分布理論値を、振動子の有効径の範囲で面積分することで、非線形伝搬の回折と吸収への影響を考慮した規格化受波音圧  $G_1'$  を算出できる。同様に hidroホンで受波した場合の規格化音圧を  $G_2'$  とすると、非線形伝搬を考慮した回折と吸収に関する補正值  $G'$  は以下のように求められる。

$$G' = \frac{\sqrt{G_1'}}{G_2'} \quad (6)$$

Fig. 3 はレーザ干渉法で得られた 5 MHz における hidroホン感度の校正結果(●)と相反法を用いて校正した結果(■:  $G$  を使用, ▲:  $G'$  を使用)を比較したグラフである。線形音場での補正值  $G$  を使用した場合、音源音圧が高くなると感度が低下し、114 kPa ではレーザ干渉法による校正値と比べて 20% まで差が広がる。一方非線形性を考慮した  $G'$  を使用した場合の校正値はレーザ干渉法と同様に、音源音圧によらず 6% 以下の変動幅となった。

#### 5. まとめ

校正時の音源音圧が高くなると、相反法による hidroホン感度校正値が低下していく現象は、超音波の非線形伝搬の影響である。そこで、KZK の式から算出した回折と吸収に関する新しい補正方法を提案し、その妥当性を実験により示した。

#### 引用文献

1. IEC 60866: 1987.
2. IEC 61101: 1991.
3. M. Yoshioka, J. Ohto, T. Kikuchi and S. Sato, 18th Int. Cong. Acoust, Spring (2004), Mo.P1.12.
4. S. S. Corbett III, IEEE Trans. UFFC, **35** (1988) 162.

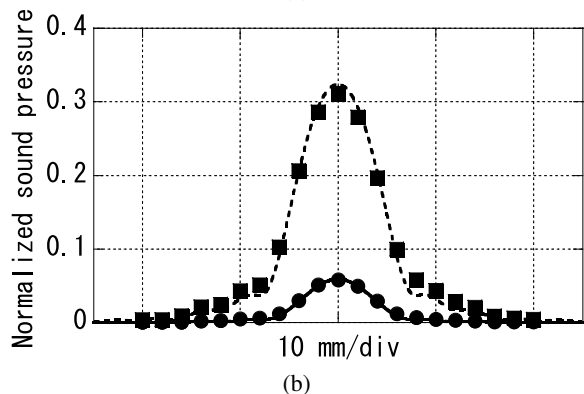
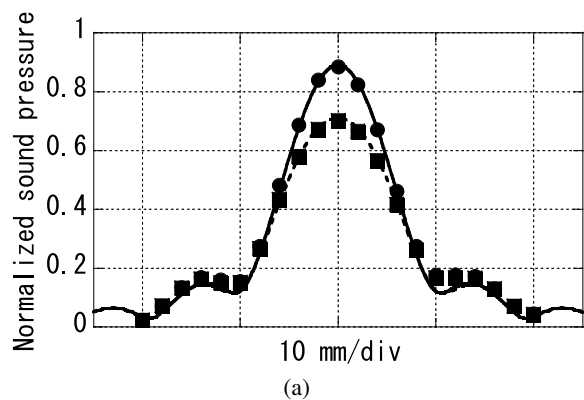


Fig. 2 Distributions of (a) fundamental (5 MHz) and (b) secondary harmonic (10 MHz) sound pressure at propagation distance 370 mm, normalized by that on surface of the transducer whose radius is 6.35 mm. ● and solid line are measured and theoretical values for sound pressure on transducer surface 11.4 kPa. ■ and dashed line are those for 114 kPa.

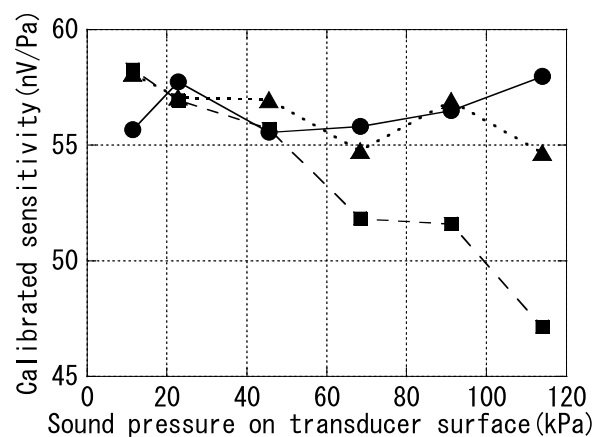


Fig. 3 Variations of measured sensitivity of the membrane hydrophone whose radius is 0.2 mm, with sound pressure on transducer surface for a frequency of 5 MHz. ● is calibrated by laser interferometry. ■ and ▲ are by two-transducer reciprocity corrected by  $G$  and  $G'$ , respectively.

5. 鎌倉友男：非線形音響学の基礎 第 6 章，愛智出版，(1996).
6. Peter A. Lewin, IEEE Trans. UFFC, **47** (2000) 1354.
7. B. Fay, Acustica, **36** (1976) 209.

# 熱誘起ナノ結晶シリコン超音波源出力の可変指向性 Tunable Output Directivity of Thermally Induced Ultrasound Generator Based on Nanocrystalline Silicon

渡部祥文、本多由明 (松下電工) 越田信義 (農工大)  
Yoshifumi Watabe, Yoshiaki Honda (Matsushita Electric Works Ltd.)  
and Nobuyoshi Koshida (Tokyo Univ. of A&T)

## 1. はじめに

単結晶シリコン(c-Si)をHF溶液中で陽極酸化することで得られるナノ結晶ポーラスシリコン(nc-PS)は、キャリア閉じ込め効果を示す量子サイズのシリコンナノ結晶からなる多孔体であり、c-Siでは見られない様々な性質を示す<sup>1)</sup>。その性質の一つに熱伝導率、熱容量の極端な低下があり、nc-PS層とc-Si基板の間には大きな熱物性のコントラストが生じる<sup>2)</sup>。最近この特性を利用した熱誘起による新しい超音波源が開発された<sup>3,4)</sup>。従来の超音波源は振動子の機械振動によって超音波を発生しているのに対し、このデバイスは表面無振動で周波数特性が平坦、残響のないパルス音波が発生可能、シリコンプロセスによる微細化やアレイ化が可能など、多くの優れた特徴を有している<sup>5,6)</sup>。我々は、このデバイスの特徴を利用した空中超音波センサによる物体検出を検討してきた。本報告では、本デバイスのパルス超音波出力の指向性制御について報告する。

## 2. 実験

Fig. 1 に測定に用いた nc-PS 超音波源の模式図を示す。デバイスは、基本構成として c-Si 基板、nc-PS 層、W 発熱薄膜、Al パッドからなる。nc-PS 層は良好な熱絶縁層として働く。そのため、発熱薄膜に交流電力を供給すると、発生したジュール熱は発熱薄膜の表面近傍空気と直ちに熱交換し、空気の粗密を生じさせ超音波が発生する。このとき、nc-PS 層は高い断熱性により空気との熱交換の効率を高め、c-Si 基板は高い放熱性により発熱薄膜の定常的な温度上昇を抑制する。

デバイス作製条件を以下に示す。p-Si (100) 基板(80-120 cm)を、HF(50 wt%):C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH=1:1.2

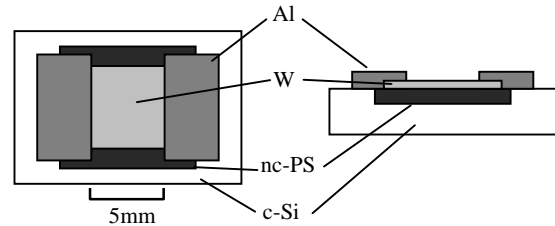


Fig. 1. Schematic illustration of nc-PS ultrasonic emitter (left : top view, right : cross-sectional view).

の混合溶液中、100 mA/cm<sup>2</sup> の電流密度で所定の時間の陽極酸化を行い、nc-PS 層を形成した。次に、W 発熱薄膜を 50 nm の厚さで形成し、最後に Al パッドを形成した。

作製したデバイスにパルス幅 10 ~ 50 μs (20 ~ 100 kHz)、周期 0.1 s、印加電圧 35 V の正弦波半波パルスを入力して正弦波状のパルス超音波を発生させ、デバイスから 15 cm 位置での発生音圧を測定した。また、指向性はデバイスを 5° ずつ回転して測定した。

## 3. 測定結果と考察

Fig. 2 に示すパルス幅 20 μs の指向性を例に、出力音圧の指向角の算出方法を示す。指向角は音圧が半減する全角度と定義すると、測定値と理論値の指向角は各々 136.2°、120.0° となる。ここで、超音波源の指向性 D の理論値は、パルス正弦波の波長 λ、方形の音波発生領域 1 辺の長さ 2a における理論式(1)より算出した。

$$D(\theta) = \frac{\sin(2a / \lambda \sin \theta)}{2a / \lambda \sin \theta} \quad (1)$$

Fig. 3 に指向角のパルス幅依存性を示す。パルス幅 50 μs の指向角は 180° で全方向に超音波が放射されているが、パルス幅の減少に伴い

E-mail: wata@srl.mew.co.jp

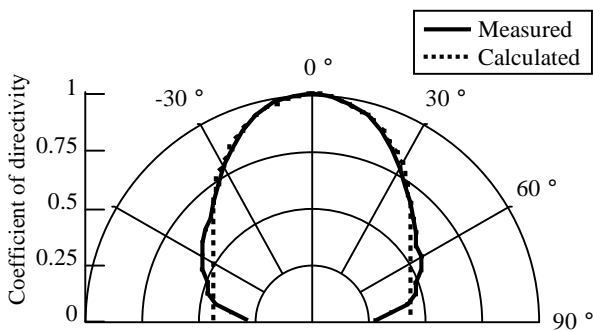


Fig. 2. Directivity at a output pulse with a width of 20  $\mu$ s.

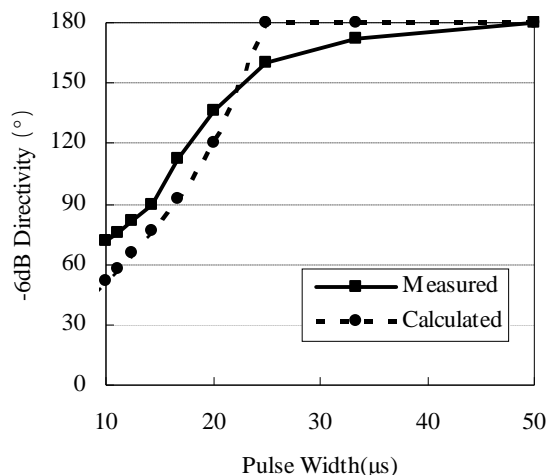


Fig. 3. -6dB Directivity as a function of pulse width.

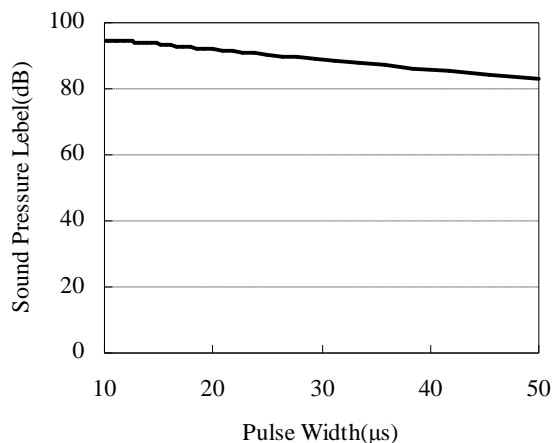


Fig. 4. Pulse width dependence of sound pressure.

指向角も減少し、パルス幅 10  $\mu$ s の測定値では指向角は 71.6°、理論値では 51.5° と非常に狭くなった。このことから、入力パルス幅制御によって指向角を大きく変化できることが示唆される。超音波センサの検知エリアを機械的な回転機構を設けないシンプルなセンサ構成で、物体の位置検出が可能と考えられる。ここで、

パルス幅が小さい領域で理論値に比べ指向角が大きくなるのは、発熱薄膜などの熱容量による熱的な応答性の遅れが原因であり、低熱容量化によって理論値と整合でき、更なる狭指向角化を達成できる。

次に、Fig. 4 に出力音圧の入力パルス幅依存性を示す。入力パルス幅 10 ~ 50  $\mu$ s における平均音圧は約 92 dB で、ほぼ一定の出力を示す。これは熱誘起式の nc-PS 超音波源は機械振動がなく共振点を有しないためである。入力パルス幅制御により指向角を変化させても出力音圧がほぼ一定であることから、この特性はセンシングにおいてマイク感度の補正が不要となるという利点を生む。

#### 4. まとめ

従来の振動子を用いた超音波源とは全く異なる発生原理の熱誘起 nc-PS 超音波源により、可変指向性を備えたパルス超音波源の開発可能性を示した。この超音波源は、入力パルス幅を操作することにより、音圧出力がほぼ同一のまま指向角が変化する。この特徴を積極的に利用すると、超音波センサの検知エリアが入力パルス幅によって制御できる。複雑なセンサ構成や信号処理を必要としない空中 3 次元イメージセンサが低コストで可能になるであろう。今後は、更なる指向角の狭角化とシステム化の検討を進めていく。

#### 引用文献

1. N. Koshida and N. Matsumoto: Materials Science and Engineering R **40** (2003) 169.
2. A. Drost, P. Steiner, H. Moser and W. Lang: Sens. Mater **7** (1995) 111.
3. H. Shinoda, T. Nakajima, K. Ueno and N. Koshida: Nature **400** (1999) 853.
4. N. Koshida, T. Nakajima, M. Yoshiyama, K. Ueno, T. Nakagawa and H. Shinoda: Mater. Res. Soc. Symp. Proc. **536** (1999) 105.
5. T. Kihara, T. Harada, J. Hirota and N. Koshida: Jpn. J. App. Phys. **43** (2004) 2973.
6. K. Tsubaki, H. Yamanaka, K. Kitada, T. Komoda, N. Koshida: Jpn. J. App. Phys. **44** (2005) 4436.

# 超音波 ICカードにおける伝送速度の高速化に関する研究

## A study on high speed information transmission of the smart IC card using ultrasonic

◎鈴木真ノ介, 石原学 (小山高専 電気情報), 片根 保, 斉藤 制海 (千葉大 工),  
小林和人 ((株) 本多電子)

Shin-nosuke Suzuki, Manabu Ishihara(Oyama NCT.), Tamotsu Katane, Osami Saito (Chiba Univ. Eng.)  
and Kazuto Kobayashi (Honda Electronics co., ltd)

### 1. はじめに

現在, 日常生活の中にキャッシュカードや鉄道運賃システム用カード等の様々な IC カードが導入されている. 最近では, 携帯電話に同様の機能を付加した機種や, 電子マネーと称して IC カードに現金をチャージすることでキャッシュレスでの買い物をすることも可能となっている. それら IC カードの通信媒体には主に電磁波が用いられているが, 電磁波には心臓ペースメカ等の埋込型医療機器の誤動作や生体への悪影響が懸念される. さらに, 空中での伝搬特性が優れていることから, スキミングによる情報搾取を可能としている.

そこで, 本研究では生体や電子機器に影響が少なく, 空中での減衰が著しい超音波による情報伝送を用いた IC カードシステム<sup>1)</sup>を提案している. これまでの研究成果として, 共振周波数 60kHz の超音波振動子を用いた実験モデルにおいて, カードリーダー・ライターからカードへの情報伝送が最大伝送速度 2.4kbps (伝送距離 35mm), カードからリーダー・ライターへの情報伝送では, 密着状態で 2.4kbps, 伝送距離 1.4mm まで 1.2kbps で各種データの送受信に成功した.

しかし, これらの伝送速度は従来の IC カードと比較すると遠く及ばないものである. 今回は, 情報漏洩の観点から伝送距離は極短距離とし, 伝送速度の高速化に特化した. 超音波振動子をこれまでより共振周波数の高いものとしてシステムを再構築したところ, 伝送速度の高速化に成功した.

### 2. システム構成

Fig.1 に超音波 IC カードシステムの構成を示す. 図は IC カードからリーダー・ライターへの情報伝送を示している. 本システムでは, 超音波振動子を 1 対用いてカードリーダー・ライター間を半二重通信方式により情報伝送を行うことを想定している.

情報伝送は以下のように行われる. まず, カード内のデジタル情報 (①) は, 振動子に印加するための変調波 (②) に変換される. この変調波は, 直流電圧をスイッチングのみで形成されるよう, 方形波にバイアスを印

加し, カード内での消費電力を抑えるためにデューティ比を小さく (1~2%) している. この波形は情報伝送速度と一致したスイッチング周波数であるため, 振動子の共振周波数と一致していないが, 伝送可能であることが確認されている<sup>2)</sup>. その変調波を送信側振動子に印加すると超音波が送信され, 受信側振動子により電気信号に変換する.

受信された電気信号は Fig.2 に示される受信回路によりデジタル情報に復調される. まず, 増幅回路および整流・平滑回路にて波形整形を行い, コンパレータによりデジタル信号を検出する. その後, マルチバイブレータによりデジタル信号とパルス幅を一致させ, 電圧レベル変換素子でコンピュータの入力電圧にレベル変換する. その信号をコンピュータに入力することで情報伝送は完了する. なお, リーダ・ライターからカードへの情報伝送の場合, 基本的には同様であるが, カード内には大型の増幅回路が搭載できないので, 送信側振動子への入力電圧を増加させる必要がある.

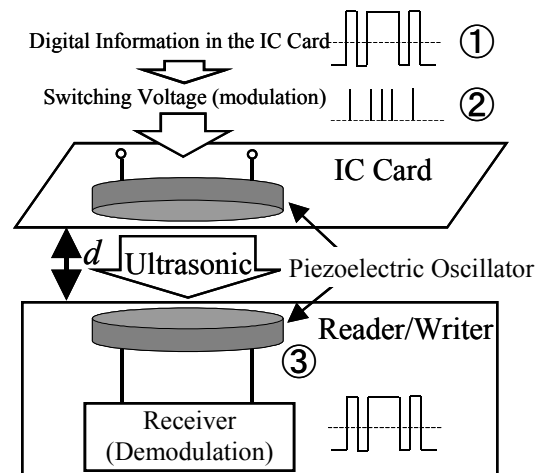


Fig.1 IC Card System using Ultrasonic.

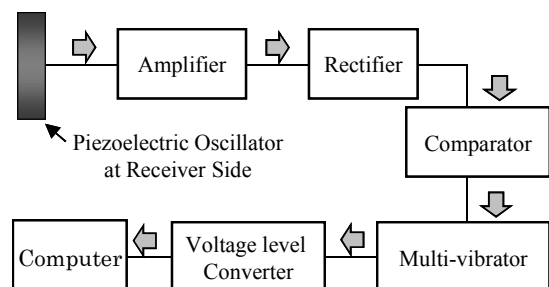


Fig.2 Configuration of the Receiver.

E-mail: shin-s@oyama-ct.ac.jp

今回、超音波振動子はこれまでの共振周波数 60kHz から、伝送速度の高速化を考え、より高周波を扱えるように 1MHz のものを用いた。材質は従来通りジルコン酸チタン酸鉛系磁器 Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> である。

### 3. 情報伝送実験

前述の構成のような実験システムにより、情報伝送の高速化を検証する各種実験を行った。実験は超音波振動子 1 対を用いてカードからリーダ・ライターへの情報伝送を想定した。カード内の情報源およびリーダ・ライター内のコンピュータには取り扱いの容易な MS-Windows 搭載のパソコンとインターフェースとしてシリアルポートを用い、情報伝送ソフトウェアとして Windows 標準搭載のハイパーターミナルを使用した。伝送するデジタル情報としては文字、テキストファイル、画像ファイルを用いた。なお、ハイパーターミナルは双方向独立した伝送路を要するため、リーダ・ライターからカードへの情報伝送路は直接ケーブルで接続した。

情報伝送実験を行った結果を Table 1 に示す。その時の各部の波形を Fig.3 に示す。なお、Fig.3 における番号は Fig.2 中の番号に一致している。表中の入力電圧を最小入力電圧として、記載の伝送速度および距離で伝送に成功した。1mm 以下の短距離ではあるが、共振周波数のより高い振動子を用いることで、シリアルポートの最大伝送速度(115.2kbps)での伝送に成功している。振動子の共振周波数(1MHz)と印加電圧の周波数(115.2kHz)はかなり開きがあるが、印加電圧が方形波であるためその高調波成分が振動子の共振周波数と一致し、信号を送受信可能としていると考えられる。また、密着状態であれば、必要な入力電圧はカード内の IC を駆動するのと同程度であるため消費電力も抑えられている。距離が離れた場合は伝送速度を下げるか、受信側での増幅を含めた波形整形で対応可能である。

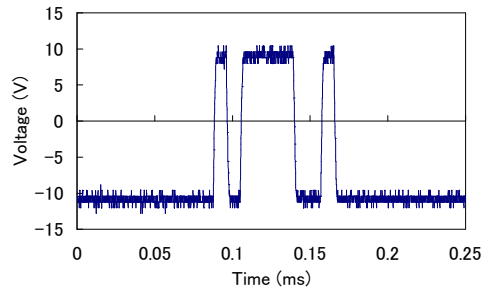
### 4. まとめ

生体や電子機器への安全性および情報セキュリティに配慮した超音波 IC カードにおいて、伝送速度の高速化を検討したところ、共振周波数のより高い振動子を用いることで、短距離ながらシリアルポートの最大値である 115.2kbps での伝送に成功した。

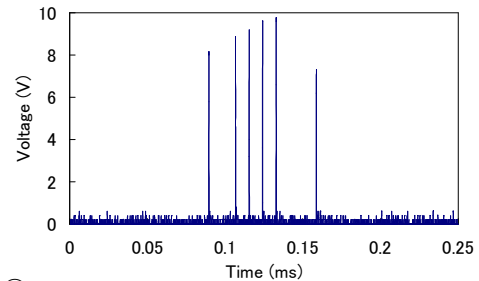
現在、鉄道運賃用に用いられている IC カードの伝送速度が 212kbps であることから、これを今後の目標値とする。また、今回のシステムは 1 方向のみの伝送であったので、双方向情報伝送可能で、かつ、カード側にマイ

Table 1 The Results of Transmission Speed and Distance, Input Voltage Configuration.

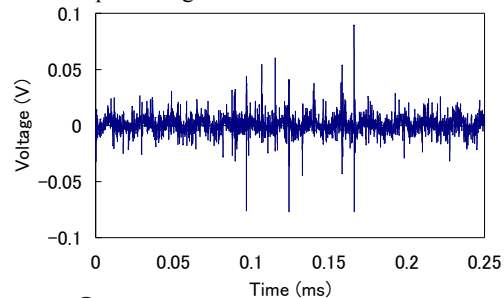
Transmission speed [kbps]	Distance $d$ [mm]	Input Voltage [V <sub>p-p</sub> ]	Duty[%]
57.6	0.00	3.9	1
	0.30	3.3	1
	0.60	10.0	1
115.2	0.00	4.5	2
	0.35	10.0	2
	0.55	10.0	2



① Digital Information from PC ( Figure “a” )



② Input Voltage of the Transfer side Oscillator



③ Received Voltage at the Oscillator

Fig.3 Waveforms in the Information Transmission Experiment. (115.2kbps,  $d=0.35$ mm)

コン、電池等を搭載し、カード側を独立したシステムへの変更についても取り組む予定である。

### 謝辞

本研究は文部科学省科学研究費補助金（課題番号：16760280）の助成を受けたものであり、関係各位に深く感謝致します。

### 参考文献

- 1) 鈴木真ノ介ら：2005 年電子情報通信学会総合大会 論文集, A-20-1, p. 348 (2005)
- 2) 鈴木真ノ介ら：2005 年電子情報通信学会ソサイエティ大会発表予定, A-20-2 (2005)

## 二層型圧電振動子を用いた 2次高調波抽出法

A detection method for second harmonic waves  
using the double-layered piezoelectric transducer

福田誠, 西平守正, 今野和彦(秋田大・工学資源)  
Makoto FUKUDA, Morimasa NISHIHIRA and Kazuhiko IMANO  
(Fac. of Eng. and Resource Sci., Akita Univ.)

### 1. はじめに

超音波トランスデューサより送波された基本波から非線形効果によって生じる高調波を用いたハーモニックイメージング<sup>1)</sup>は, 従来の基本波のみのイメージングに比べて良い画像が得られるとされ, 近年多くの検討がなされている. このようなハーモニックイメージングを実現するためには, 受波波形から高調波を抽出する方法が必要となる. 2次高調波を抽出する方法の一つとしてパルスインバージョン法<sup>1)2)</sup>が提案されている. この方法は, 互いに逆位相となるように基本波を2回送波し, 各々の送波信号に対応した2つの受波信号を加算することで基本波成分を打ち消すことができる. 一方, 2次高調波は2乗の非線形で発生するため, 両受波信号とも同位相として受波されることになり, 結果として2次高調波成分のみを抽出することができる. ただし, 2回の送受波が必要になるため, 2次高調波成分を用いた実時間イメージングへの課題も多い.

このような高調波を受波するためのトランスデューサとしては, 分極反転型トランスデューサ<sup>3)</sup>, 送受波分離型トランスデューサ<sup>4)</sup>, PZT振動子に受波用のPVDFフィルムを貼った二層探触子<sup>5)</sup>などが検討されているが, 前者は電気的な接続方法を変えられない. 後者の2つは送波用と受波用の2種類の振動子を用意する必要がある.

本報告では, 同特性の振動子を2枚貼り合わせた二層型圧電振動子(以下, double-layered piezoelectric transducer: DLPT)を用い, 送波時と受波時においてスイッチングにより電気的接続方法を切り替え, 実時間で2次高調波を抽出する方法について検討する.

### 2. 抽出システム

2次高調波の抽出に用いるトランスデューサは, 共振周波数2MHzの凹面型圧電振動子(PbTiO<sub>3</sub>)を2枚重ねて構成される. 圧電振動子の分極方向はそれぞれ逆向きで, 直径20mm, 焦点距離は40mmおよび41.1mmである. これら2枚の圧電振動子を, 導電性ペーストを用いて貼り合わせてDLPTを作製する<sup>6)</sup>.

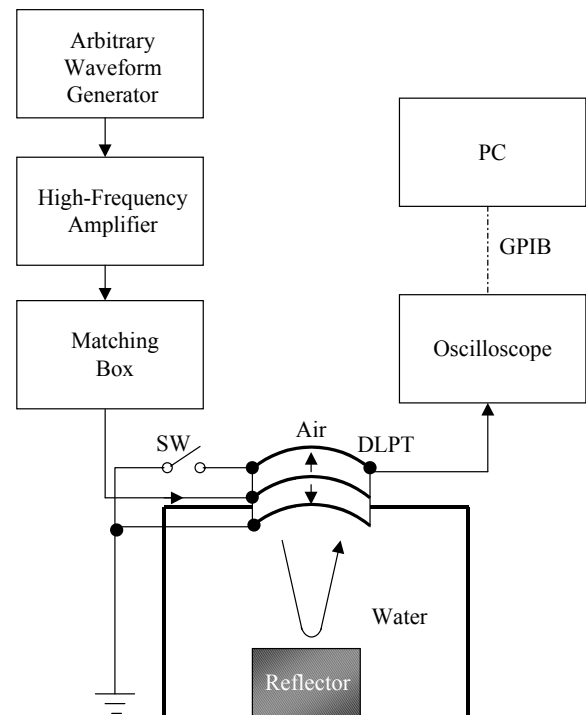
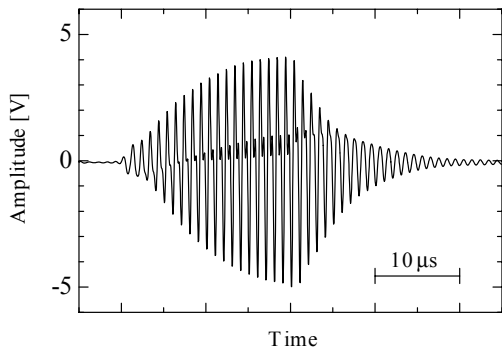


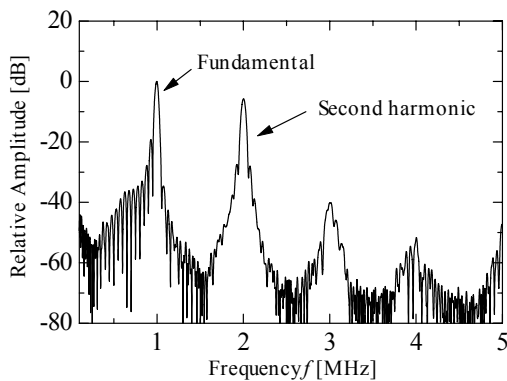
Fig.1 A detection system for second harmonic waves using the double-layered piezoelectric transducer (DLPT)

DLPTを用いた2次高調波抽出システムをFig.1に示す. 一定の周期で逆位相のバースト正弦波20波を発振器より交互に発生させる. 高周波アンプおよび整合器を介し, DLPTを並列接続(SW on)で駆動する. 水中を伝搬し反射体によって反射されたエコー超音波をDLPTの直列接続(SW off)で受波する. 電気的接続方法を送波と受波でスイッチングすることでDLPTの共振周波数をそれぞれ1MHz, 2MHzに変えることができ, より感度の良い状態で基本波を送波し, 2次高調波を受波することができる.

逆位相で送波された超音波の反射波が交互に受波されるため, これらをオシロスコープ内で加

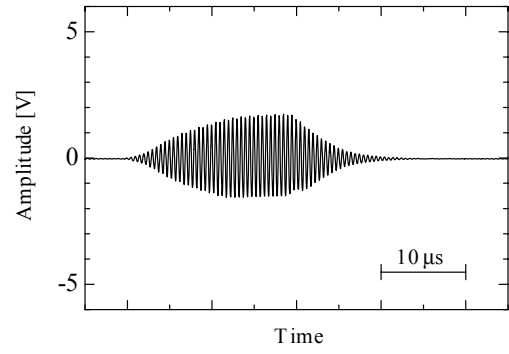


(a) Waveform

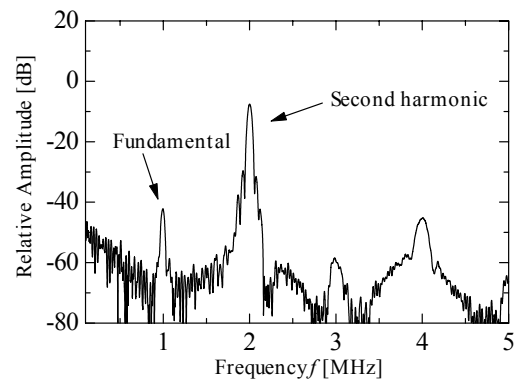


(b) Spectrum

Fig.2 Received waves on DLPT



(a) Waveform



(b) Spectrum

Fig.3 Result of detection for second harmonic waves using Fig.1

算平均することで基本波成分が相殺し、2次高調波のみが抽出される。得られた波形のデータは GPIB を介して PC に取りこまれる。

### 3. 実験結果と考察

受波された超音波波形を Fig.2(a)に、この波形の周波数スペクトルを Fig.2(b)に示す。2次高調波成分は含まれているが、基本波成分が 5dB 程度強いことがわかる。本システムを用いて、逆位相の送波による受波波形を加算平均することで、Fig.3(a)のような波形を得ることができた。この波形の周波数スペクトルは Fig.3(b)のようになり、基本波成分が 40dB 減少し 2次高調波成分が値を減ずることなく抽出できる。基本波成分が完全に消えない原因としては、送波波形が大きい音圧であるため基本波成分にもひずみが生じている可能性が考えられる。本検討で用いた DLPT は、短い超音波を送波する目的にも使用でき<sup>6)</sup>、今後は多目的トランスデューサとしての応用も期待できると考えられる。

### 4. おわりに

二層型圧電振動子(DLPT)を用いた2次高調波の抽出システムを構築した。DLPT のスイッチングを送波と受波で変えることで、感度よく2次高調波を抽出することができた。さらに、逆位相の駆動波形を一定周期で交互に DLPT に印加し、受波波形を加算平均することで、2次高調波の実時間での抽出ができた。

今後は、本システムを用いたハーモニックイメージングの検討を予定している。

### 参考文献

- 1) 川岸 他, 日本音響学会誌, **59** (2003) 552.
- 2) D. H. Simpson, *et al.*: IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr., **46** (1999) 372.
- 3) K. Nakamura, *et al.*: IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr., **50** (2003) 1558.
- 4) H. Adachi, *et al.*: Acoust. Sci & Tech. **23** (2002) 53.
- 5) I. Akiyama, *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4631.
- 6) M. Fukuda, *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 3131.

# 計測用空中音波のデジタル変調

## Digital Modulation of Airborne Sound for Measurement

© 柏崎賢一, 小田中育生, 澤村喬平, 水谷孝一 (筑波大院・シス情工), 昆 昭彦(山武)  
Kenichi Kashiwazaki, Ikuo Odanaka, Kyohei Sawamura, Koichi Mizutani (Univ. Tsukuba)  
and Akihiko KON (Yamatake Corp.)

### 1. はじめに

快適性・生産効率・省エネルギー性等の観点から大型建築物や農業施設等の大規模空間における環境制御技術が注目されており<sup>(1,2)</sup>、効率的で省エネルギー性の高い環境制御を行うには空間内の風向・風速、温度、湿度等の微気象計測が必要不可欠である。微気象計測において大規模空間を非接触、非破壊でモニタリング可能な音響波プローブは有効である<sup>(3-5)</sup>。更に CT 法を用いて温度、風向・風速を 2 次元再構成する方法も提案されている<sup>(6-8)</sup>。多くの場合、同じ形式の信号が使用されているため計測に時間を要していた。

本研究では、複数の音響波プローブの同時使用を目的としてプローブに用いる音響信号にデジタル変調を施してみた。

### 2. 音響波プローブによる計測

Fig. 1 に音響波プローブの構成を示す。計測対象空間に測定基線を設け、その両端にスピーカ (SP) とマイクロフォン (MIC) を対向させる。SP と MIC は D-A・A-D コンバータ及び増幅器を介して PC で制御されている。PC で生成された音響信号をアンプで増幅し、SP で音響波に変換して送波し、空間中を伝搬させる。音響波は音軸に沿った媒質の状態の情報を取得しながら伝搬して MIC で受波される。

PC で相互相関法を用いて音響波の伝搬時間 (TOF) が計測できるが、式(1)~(3)を用いて測定基線上の空間平均気温  $\bar{T}$  と風速の測定基線と平行な成分  $V_d$  を算出できる。ここで、 $L$  は測定基線長、 $N$  は音響信号が通過するセル数、 $T_0=273.15$  K である。なお、双方向のプローブ (伝搬時間:  $TOF_{21}$ 、 $TOF_{12}$ ) を用いると風速測定が可能になる。

$$TOF = \sum_{n=1}^N \frac{\Delta L}{c_n} = \frac{L}{\bar{c}} \quad (1)$$

$$\bar{T} = \frac{T_0}{331.32^2} \bar{c}^2 - T_0 \quad (2)$$

$$V_d \approx \frac{1}{2} \left( \frac{L}{TOF_{21}} - \frac{L}{TOF_{12}} \right) \quad (3)$$

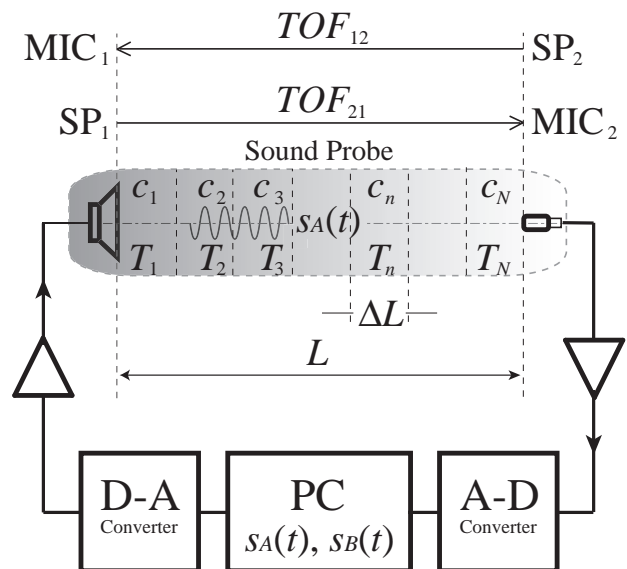


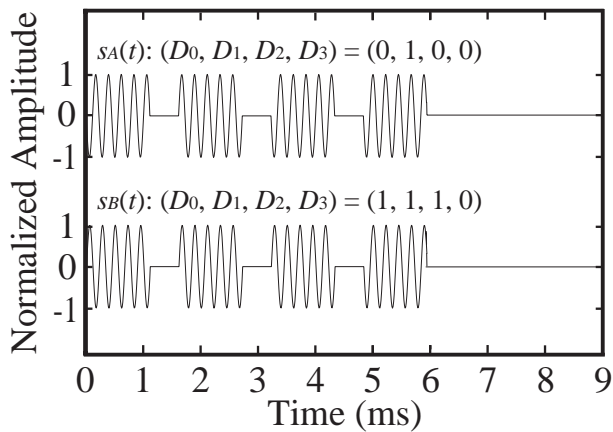
Fig. 1 Schematic diagram of an ultrasonic probe composed of loud speaker (SP), acoustic path and microphone (MIC). The ultrasonic probe is connected with a personal computer via a digital to analog (D-A) and analog to digital (A-D) converter. Airborne sound launched from the SP is digital modulated and demodulated by the PC. Time of flight (TOF) of the sound is required in the cross correlation of the received signal  $s_A(t)$  and signals  $s_A(t)$  or  $s_B(t)$ .

### 3. 実験

#### 3.1 信号と実験環境

Fig. 2 は、実験で使用した音響信号の一例である。4.5 kHz のキャリア 5 波に対して 4 bit デジタルデータ ( $D_0 \sim D_3$ ) に対応して 0、 $\pi$ (rad) の 2 相位相変調を施した 4 個のバースト波を 1 信号としている。各バースト波間隔は 0.5 ms である。Fig. 2 上段には送信及び受信側で相関を施すために用いた  $s_A(t)$ : ( $D_0, D_1, D_2, D_3$ )=(0, 1, 0, 0) を、下段には  $s_A(t)$  と異なる情報を持つ信号で相関を施すために用いた  $s_B(t)$ : ( $D_0, D_1, D_2, D_3$ )=(1, 1, 1, 0) である。

実験は、室温一定 26°C で無風状態の約 120 m<sup>3</sup> の無響室で行った。対向する SP と MIC 間距離 (測定基線長) は 2.77 m である。スピーカ (SD-9D4B / Clarion) とコンデンサマイクロフォンは、250 kHz のサンプリング周波数で動作する 12 bit 分解能の



**Fig. 2** Typical signals created by the PC for digital modulation:  $s_A(t)$  and demodulation:  $s_A(t)$ ,  $s_B(t)$ . Signal  $s_A(t)$  is applied to the SP through the amplifier. Signals  $s_A(t)$  and  $s_B(t)$  are used for the cross correlation to the signal  $s_A(t)$  received by the MIC through the amplifier.

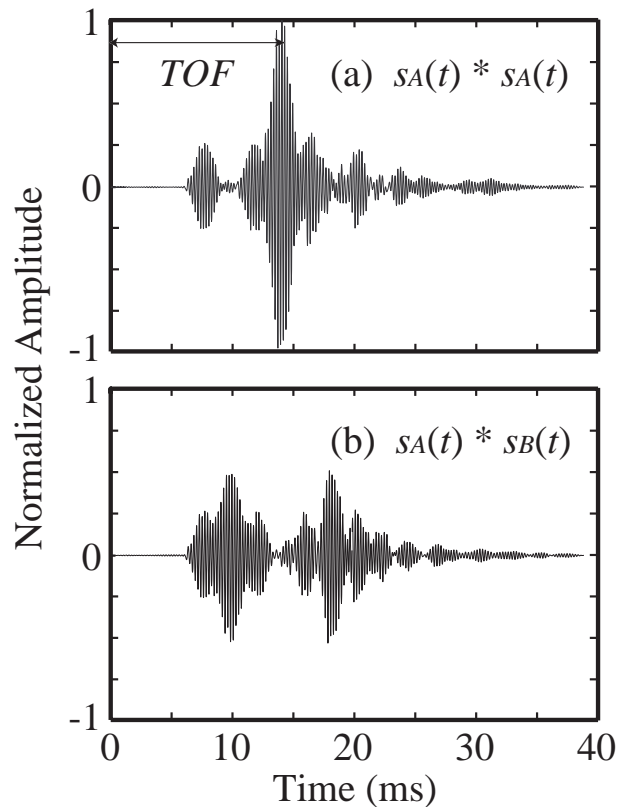
A-D /D-A コンバータ(DAQCard-6062E / National Instrument)を介して PC で制御されている。計測には 10 回の平均化処理を行った。

### 3.2 実験結果

PC で生成した  $s_A(t)$  を D-A コンバータを介して SP から送信し、MIC で受信した信号を A-D コンバータを介して PC に取り込み、送信信号である  $s_A(t)$  との相互相関結果  $s_A(t) * s_A(t)$  を **Fig. 3 (a)** に、 $s_A(t)$  とは符号の異なる  $s_B(t)$  との相互相関結果  $s_A(t) * s_B(t)$  を **Fig. 3 (b)** に示す。音響空間や変換歪みなどの影響により、PC で生成した  $s_A(t)$  と受信された  $s_A(t)$  とは厳密には同じ波形ではない。しかし **Fig. 3 (a)** で示されているように 14 ms 付近に明瞭に TOF が測定できていることが分かる。逆に符号が異なる信号同士の相関結果では、同じ場合の 1/2 の振幅にとどまっており、同時に信号が受信された場合でも、目的の信号のみを識別できることが分かった。ここで用いた信号には 4 bit の情報を用いているので、同じ測定空間において最大で 16 個信号を同時に使用できる可能性が分かった。

### 4. まとめ

複数の音響波プローブを同時使用して 2 次元、3 次元温度測定の高速度化を目的としてプローブに用いる音響信号にデジタル変調を施す基礎実験を行った。実験の結果、4 bit 程度の少ない情報でも実用的には十分な識別機能を付与することができたと考える。今後は、複数の音響信号を同時使用して、目的の信号を識別できるかどうかなど実験を行って確認する予定である。



**Fig. 3** Experimental results of cross correlation between the received signal  $s_A(t)$  and (a):  $s_A(t)$  and (b):  $s_B(t)$ . Figs. (a) and (b) show the matched and mismatched results, respectively.

### 謝 辞

この研究の一部は、日本学術振興会科学研究補助費：基盤研究 (B)(No. 17380149) の補助を受けて行われた。

### 文 献

- 1) 農業における情報・計測・制御調査研究委員会：“植物生産における計測・制御・情報,” 計測自動制御学会(1989).
- 2) “エネルギー使用の合理化に関する法律”, 1999年4月施行(1999).
- 3) K. Itoga, K.Kudo and K. Mizutani : jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3090.
- 4) K. Mizutani, K.Taruishi, Y. Hachisuka, K. kudo and M. ishii : Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3099
- 5) K. Kudo and K. Mizutani : Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3095
- 6) Y. Hachisuka, S. Kawabe, R. Hutamata, K. Mizutani and M. Ishii : Proc. Symp. Ultrason. Electron., (2004)97
- 7) 及川, 和田, 田村, 柳田, 田村: 2003 春季音講論, (2003) 1251.
- 8) H. Ochi, T. Shimura, T. Sawa, Y. Amitani and T. Nakamura : Jpn. J. Appl. Phys. 39 (2000) 3184.

# 偏光フィルタを用いた水中超音波音場の観測

## Measurement of underwater ultrasound fields using a pair of polarizers

秋山 鉄郎, 渡辺 裕二 (拓殖大 工)

Tetsurou Akiyama and Yuji Watnabe (Takushoku University, Faculty of Engineering.)

### 1. はじめに

超音波音場の光学的観測法としてシュリーレン法、光偏向法<sup>1)</sup>、レーザドップラ法<sup>2)</sup>、マッハツェンダ法<sup>3)</sup>などが報告されている。これらの方法では測定機器が大掛かりになり、そしてリアルタイムでの測定は難しい。そこで本研究では偏光フィルタを用いたより簡便な音場の観測法の検討を行った。この方法により測定場所を限定せず、かつリアルタイムでの観測ができると考えられる。場所を限定しない観測を行うためには、測定装置は簡易に移動可能で、測定装置の調整が容易でなければならない。そしてリアルタイムでの観測を行うには解析等をせずにその場で直接確認が可能でなければならない。

### 2. 超音波による光への作用

液体中の超音波は疎密波であるので光学的には屈折率が変動して進行していることになる。音波の進行方向には屈折率の勾配があるので光ビームが音の進行方向に対して垂直に入射すると、光線は円弧状に屈折する。例えば光線と音波が Fig.1 のような位置にあるとき光は左向きに曲げられる。

さらに音圧が大きい場合には、キャビテーションで生じた気泡によって光の散乱が起こる。<sup>4), 5)</sup>

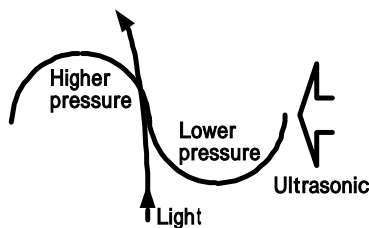


Fig.1 超音波による光の屈折

### 3. 観測原理

偏光とは振動方向が偏っている光のことをいう。人為的に偏光を起こすために偏光板という素子を使用する。偏光板とは、入射光を透過軸と同一方向に振動している光だけを透過することが出来る素子である。そこで Fig.2 の様に偏光フィルタの透過軸を90度だけ直交させた偏光フィルタをもう1枚置くことにより、光は透過しなくなる。これを直交ニコルといい、1枚目の偏光素子を偏光子、2枚目の偏光素

子を検光子という。ここで観測場を直交ニコル状態の偏光子と検光子の間に設置すると、音圧分布による屈折などによって生じた偏波面のゆらぎ成分だけが検光子を透過し、観察できる。<sup>6), 7), 8), 9)</sup>

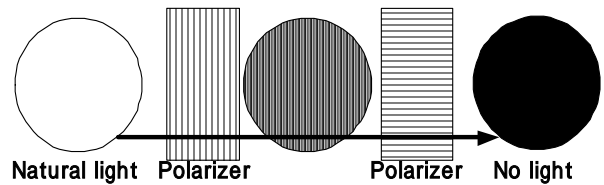


Fig.2 観測原理図 (直交ニコル状態)

### 4. 観測方法

今回用いた装置を Fig.3 に示す。ライトボックスから白色光を照射する。白色光はガラス板を通り偏光子で偏波する。偏波された光は水中を通り、直交ニコルの状態にした検光子でもう一度偏波されてデジタルカメラに入射する。ここで水中に音波を放射すると、カメラに音波放射による変化が撮影される。今回は放射部が直径 20mm の 20kHz の振動子を使用し振動振幅は  $35 \mu m_{p-p}$  とした。撮影範囲は横 190mm × 縦 140mm である。

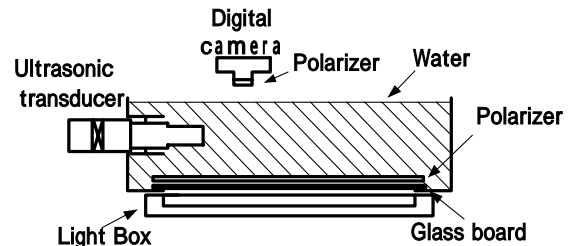


Fig.3 実験装置図

### 5. 観測結果

Fig.4 に音波放射前の観測結果を、Fig.5 に音波放射中の観測結果を示した。Fig.4 を見るとガラス板及び測定装置のゆがみの部分が明るく撮影されている。そして Fig.5 にはキャビテーションの気泡、水流及び音圧とガラス板及び測定装置のゆがみ、さらには水中の浮遊物が映し出されている。

Fig.5 では放射音場中に小さな気泡が確認できる。これはキャビテーションの気泡により光が散乱し、

明るく映し出されたものである。一方、音場には屈折率勾配がある。水流と音圧による屈折率の変化によって偏波面がゆらいだ光が明るく映し出されている。<sup>10)</sup> なお白い粒状に見えるものは、水中の浮遊物による散乱光を示している。これらの浮遊物を除去する方法については現在検討中である。

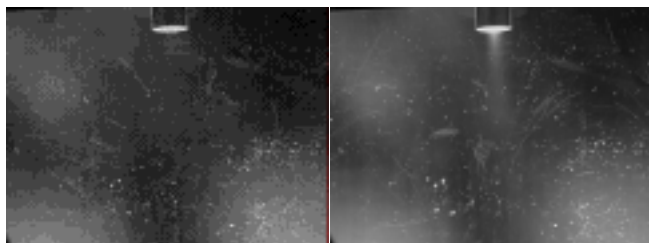


Fig.4 音波放射前(水道水) Fig.5 音波放射中(水道水)

## 6. 画像の分離

ガラス板及び測定装置のゆがみを取り除き、放射音場による変化分のみを取り出すために、Fig.5 から Fig.4 を減算処理した。これにより放射音場のキャビテーションの気泡、水流及び音圧による変化分のみが取り出せたことになる。結果を Fig.6 に示す。この Fig.6 には放射音場が白く霧状に強調されている。ただし水中の浮遊物の散乱光が白い粒のように未だに残されている。



Fig.6 超音波による効果のみを抽出した結果 (Fig.5-Fig.4)

次にキャビテーションの気泡による変化分と水流及び音圧による変化分を分けるために、脱気水を使用して観測を行った。脱気水を用いる事によりキャビテーションは抑えられ、撮影された音場は水流と音圧による変化のみが撮影される事になる。音波放射前の観測結果を Fig.7 に音波放射中の観測結果を Fig.8 に示した。

次に脱気水での放射音場の変化分のみを取り出すために Fig.8 から Fig.7 を減算処理した。Fig.7 は Fig.4 と同様に音波放射前であるが、水の入れ替え

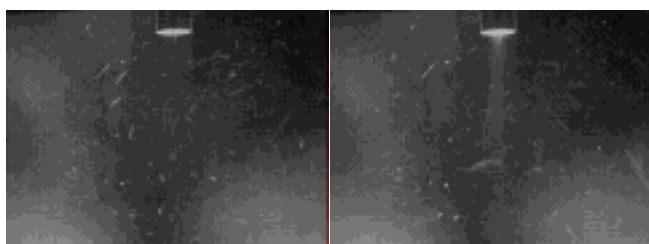


Fig.7 音波放射前(脱気水) Fig.8 音波放射中(脱気水)

による条件変化を除去するために Fig.7 を撮影して、減算処理に用いた。この減算処理により水流及び音圧の変化分のみが取り出せたことになる。結果を Fig.9 に示す。振動子の放射部付近が主に白く映し出されているのがわかる。ここでも水中の浮遊物の散乱光が白い粒のように残されている。

次にキャビテーションによる変化分のみを取り出すために、Fig.6 から Fig.9 を減算処理した。結果を Fig.10 に示す。振動子の放射部付近から軸上に白い霧状のものが映し出されているのがわかる。

以上の結果を比較すると、Fig.6 の放射音場中に映し出されているものは、主にキャビテーションの気泡による散乱光であることがわかる。

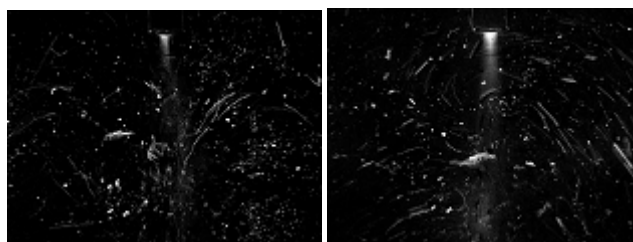


Fig.9 キャビテーションを抑えた場合の結果 (Fig.8-Fig.7) Fig.10 キャビテーションのみを抽出した結果 (Fig.6-Fig.9)

## 7. まとめ

水中超音波音場を観測するため偏光フィルタの利用が有効であることを確認した。撮影された放射音場の画像に減算処理を行う事により、キャビテーションによる気泡の分布の画像、水流と音圧による屈折率変化の分布の画像に分けることができた。

今後の課題はキャビテーション、水流及び音圧のみの変化だけを撮影するための水中浮遊物の除去である。さらに、PC による減算処理を用いたりリアルタイムに近い処理について検討を進める。

## 引用文献

- 1) 山口幸記、催博坤：電子情報通信学会技術研究報告“光偏向法による超音波音場の観測”(2005.7) pp.29-34
- 2) 武井浩司、中村健太郎、上羽貞行：日本音響学会春季公演論文集“光コヒーレンス法による空間位置分解ドップラ粒子速度測定”(2005) pp.697-698
- 3) 根本学、他：超音波エレクトロニクスの基礎と応用に関するシンポジウム講演論文集“マッハツェンダ干渉計を用いる複素音場の測定”(2003) pp.209-210
- 4) 根岸勝雄、高木堅志郎「超音波技術」東京大学出版会(1984) pp.76-104
- 5) 御子柴宣夫、生嶋明「超音波スペクトロスコーピー[応用編]」培風館(1990) pp.81-92
- 6) 辻二郎、西田正、河田幸三「光弾性実験法」日刊工業新聞社(1965) pp.29-50
- 7) 工藤恵栄「分光の基礎と方法」オーム社(1985) pp.275-337
- 8) 流れの可視化学会「流れの可視化ハンドブック」朝倉書店(1992) pp.349-351
- 9) 小田幸康、西田孝「光の科学」朝倉書店(1985) pp.119-131
- 10) 沢新之輔、里村裕、片岡清、下代雅啓「光工学概論」朝倉書店(1995) pp.112-116

## 円錐型音響プローブを導入した 回折限界を超える低周波空中超音波システム

### A low-frequency air-coupled ultrasonic system

### beyond diffraction limit introducing conical acoustic probe

佐々木克浩, 西平守正, 今野和彦 (秋田大・工学資源)

Katsuhiko Sasaki, Morimasa Nishihira and Kazuhiko Imano (Fac. of Eng. Resource Sci., Akita Univ.)

#### 1. はじめに

空中超音波は 40 kHz 程度の低周波を用いた距離計測への応用が一般的であるが, その一方で MHz 帯の空中超音波の送受波や, そのイメージングへの応用が研究されている<sup>1-2)</sup>. しかし, 空気中ではトランスデューサと空気の音響特性インピーダンス不整合から超音波の送受波が非常に困難となり, そのうえ超音波の周波数に依存する伝搬減衰が水中に比べて大きいことから, MHz 帯の空中超音波を実用することは容易ではない.

このような状況を考慮すると, 低周波空中超音波でも高い方位分解能を持つイメージングが可能となれば, この分野の新しい手法として有用であると考えられる. この可能性の一検討として, 筆者らは先に, 従来の集束超音波を利用した場合の理論的回折限界を超える方位分解能を得る一方法を提案している<sup>3)</sup>. 本報告では, 提案方法<sup>3)</sup>を導入した低周波空中超音波システムの性能を評価したので報告する.

#### 2. 円錐型音響プローブ

回折限界を超えるために提案する円錐型音響プローブ(Conical Acoustic Probe, CAP)<sup>3)</sup>を Fig.1 に示す. CAP 尖端のピンホールに向けて平面波を入射すると, ほとんどの超音波は CAP で遮断されるが, ピンホールを透過する超音波は CAP 尖端に音場を形成する. この音場はピンホールから離れるにつれて広がるが, ピンホール近傍ではその直径と同程度のビーム幅を有する. ピンホールの直径を超音波の波長 $\lambda$ より十分小さくし, ピンホール近傍の音場を利用することで, ピンホールと同程度の方位分解能が得られると考えられる.

以上の考察を検証するために, CAP を銅板により試作した. CAP の上面開口の直径  $d$  は 20 mm, 尖端角度  $\theta$  は  $20^\circ$  程度である. CAP の尖端に形成したピンホールの直径  $2a$  は 0.2 mm 程度であり, これは以下の実験で用いる 40 kHz の空中超音波の波長 $\lambda=8.6$  mm より十分小さくなっている.

E-mail: katsu-s22@imano-lab.ee.akita-u.ac.jp

#### 3. CAP を導入したシステムの性能評価

CAP を導入した低周波空中超音波システムを Fig.2 に示す. Fig.2 における透過型(スイッチ a)と反射型(スイッチ b)のシステムは, それぞれ CAP 尖端の音場測定と反射型イメージングシステムの性能を評価するためのものである. CAP の上面開口付近に配置した 40 kHz のトランスデューサに連続波正弦波を印加することで, 空中超音波を送受波する. 受信信号の振幅はベクトルシグナルアナライザにより検出する.

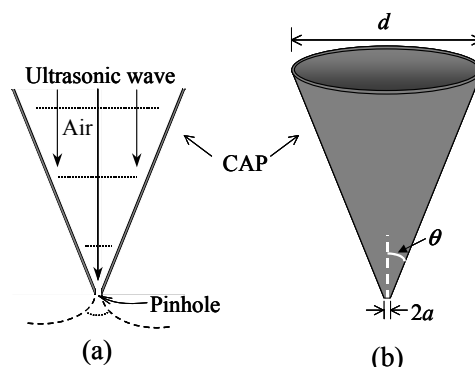


Fig. 1 Conical acoustic probe (CAP)  
(a) Principle, (b) Schematic

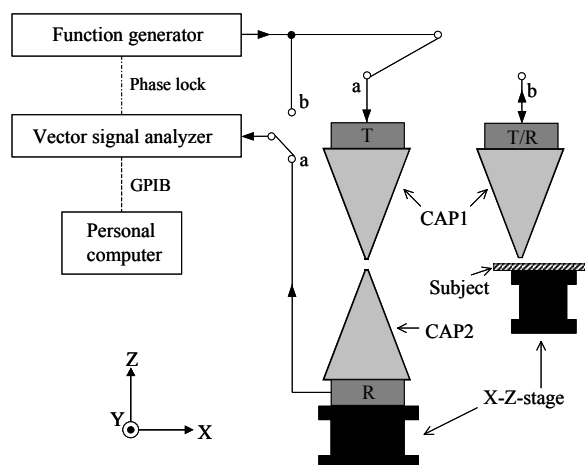


Fig. 2 Schematic / block diagram of the low-frequency air-coupled ultrasonic system introducing the CAP

はじめに、透過型システムを用いて CAP 尖端の音場分布を測定した結果を Fig.3 に示す。ここで CAP1 と 2 はほぼ同特性であり、Fig.3 の結果は両者の特性を含んでいる。Fig.3(a)より、距離  $z$  の増加に伴い振幅が大きく減衰していることがわかる。また Fig.3(b)より、距離  $z$  が短いほど指向性が鋭いことがわかる。特にピンホールの近傍である  $z = a^2/\lambda$  においては、 $-6$  dB の振幅の幅がピンホールの直径とほぼ一致している。

次に、反射型イメージングシステムの方位分解能を評価する。厚さ  $0.1$  mm の銅板を貼り合わせることで  $\lambda/80$  ( $0.1$  mm) 程度の段差を作製し、これを対象物とする。ピンホールと同程度の方位分解能を得るため、Fig.3 の結果を考慮して CAP 尖端と銅板の間の距離  $z$  を  $a^2/\lambda$  付近に設定した。銅板を X 方向に走査し、段差付近における受波信号の振幅を測定した。この振幅値を高さに変換した結果を Fig.4(a)に、この結果の変化の割合を求めた結果を Fig.4(b)に示す。Fig.4(b)では、測定値をガウス関数にフィッティングさせた結果を実線で示している。この結果の半値幅から求められる方位分解能は  $\lambda/30$  ( $0.3$  mm) 程度であった。これはピンホールの直径と同程度の値であることから、本システムの方位分解能はピンホールの直径に依存している可能性を示せた。

最後に本システム的应用として、直径が波長以下の穴の一次元イメージングを行う。対象物は、アルミニウム板に直径  $\lambda/10$  ( $1$  mm) と  $\lambda/20$  ( $0.5$  mm) 程度の穴を開けたものとする。これを X 方向に走査し、受波信号の振幅を測定した結果を Fig.5 に示す。Fig.5(a)および(b)より、穴の直径に対応したイメージング結果が得られていることがわかる。

#### 4. おわりに

回折限界を超えるために CAP を提案し、これを導入した低周波空中超音波システムの性能を評価した。その結果、本システムを用いることで、回折限界を超えて  $\lambda/30$  ( $0.3$  mm) 程度の方位分解能を実現できた。また、本システム的应用例として、直径が  $\lambda/10$  ( $1$  mm) 以下の穴の検出結果を示した。今後は、本システムの特徴を生かした应用について更に検討する予定である。

#### 引用文献

- 1) J. D. Fox, G. S. Kino and B. T. Khuri-Yakub : Appl. Phys. Lett. **47** (1985) 465.
- 2) T. Gudra, Z. Kojiro, M. Schmachtl, C. Lier, M. Schubert and W. Grill : Ultrason. **34** (1996) 711.
- 3) K. Imano, M. Nishihira and K. Sasaki : Elect. Lett. **41** (2005) 620.

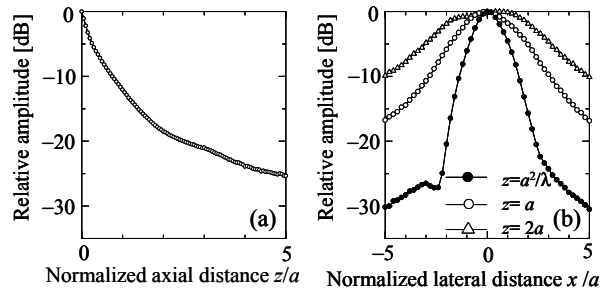


Fig. 3 Sound field characteristic of CAP  
(a) Axial field profile  
(b) Lateral field profile

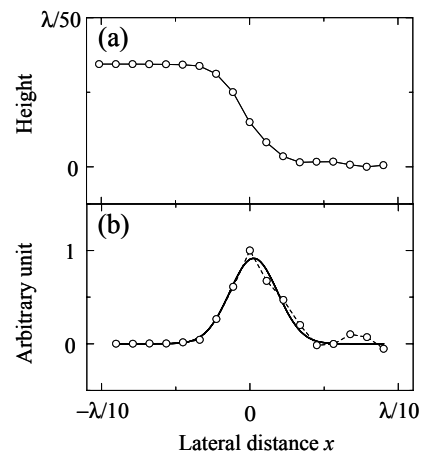


Fig. 4 Examination of lateral resolution  
(a) Reconstructed topographical profile of step of height as a function of lateral distance  $x$   
(b) First-order spatial derivative of (a) together with a fitted Gaussian function

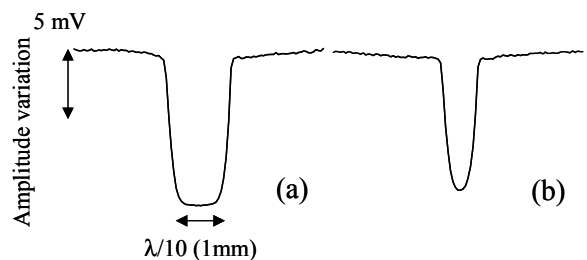


Fig. 5 Experimental results of surface topological profiling of an aluminum plate with drilled holes  
(a) Diameter of  $\lambda/10$  ( $1$ mm)  
(b) Diameter of  $\lambda/20$  ( $0.5$ mm)

## FM チャープパルス圧縮方式に基づく複数散乱体の速度計測法 A Method for Velocity Measurement of Multiple Scatterers Based on FM Chirp Pulse Compression Scheme

荒木 健一, 島谷 浩二, 田川 憲男\*, 守屋 正 (首都大)

Kenichi Araki, Kouji Shimaya, Norio Tagawa, Tadashi Moriya (Tokyo Metropolitan Univ.)

### 1. はじめに

我々は、超音波パルス圧縮方式に基づく高 S/N かつ広レンジの位置・速度同時計測法を検討しており、これまでにリニア FM チャープパルス波を送信波として用いる手法（以下、FM-PW ドブラ法と呼ぶ）を提案した[1]。しかし、文献[1]では単一散乱体を計測対象として議論しており、そのままでは血管壁や血流等には適用できない。そこで本研究では、この手法の複数散乱体への適用に関する検討を行なった。

### 2. FM-PW ドブラ法とその複数散乱体への適用

#### 2.1 原理

対象物の位置と速度を同時に計測する標準的な方法として、特に医用分野ではパルスドブラ法が広く用いられている。しかし、計測には数回のパルス送信が必要であり、また計測可能速度に上限が存在する、といった欠点を有する。FM-PW ドブラ法では、それらの問題が解決される。

FM-PW ドブラ法の原理は、移動散乱体からのリニア FM チャープ反射波を圧縮処理して細パルス化すると、ドブラシフト量に応じて次式で与えられる時間ずれ  $t_d$  (本来の受信位置からのずれ) が生じることにある。

$$t_d = \frac{f_d T}{B} \quad (1)$$

$T$  は送信パルス幅、 $B$  はチャープの帯域幅、 $f_d$  はドブラシフト周波数である。この  $t_d$  は、アップチャープ (Up-C と記す) とダウンチャープ (Down-C と記す) で逆向き (正負が逆) であることから、Up-C と Down-C の対応する細パルス間の時間間隔を計測することで、対象の正しい位置と速度を同時に得ることが可能となる。この計測法は、原理的に Up-C と Down-C のそれぞれ 1 回の送信毎に計測が行え、計測可能速度の上限も存在しない。文献[1]では、Up-C と Down-C を足し合わせた相補チャープ波を送信する手法を構築した。その場合は、反射波の Up-C と Down-C への分離とドブラシフト量の計測を同時に行うことになるものの、基本原理は両圧縮波形の位置ずれの検出にある。ただし、単一散乱体に特化した手法となっている。

\* tagawa@eei.metro-u.ac.jp

#### 2.2 複数散乱体への適用

複数散乱体に対しては、Up-C と Down-C の両圧縮波形中に含まれる同じ散乱体からの信号を対応付ける必要がある。これは、簡単には局所的な波形マッチングで実現できる。それによって得られる速度分解能を確認する目的で、Table I に示すパラメータを用いた数値シミュレーションを行った。問題を簡単にするために、散乱体は 1 個とし、その設定速度を少しずつ変えながら、各速度に対して局所相関処理により速度計測を行った。なお、Up-C と Down-C の反射波はそれぞれ個別に得られていると仮定する。すなわち、今回は相補化送信を考えないこととする。Fig. 1 にドブラ検出結果を示す。横軸は設定した速度  $V_s$ 、縦軸は検出された速度  $V$  である。理論的な速度分解能は、受信系の時間サンプリング 1 刻み分に相当し、今回のパラメータに対しては約 0.01[m/s] となる。しかし、Fig. 1 には中心周波数の 1 周期分に相当する約 0.07[m/s] の階段状の曖昧性、さらに 3 ヶ所でそれよりも大きな段差が生じていることがわかる。

この分解能低下は、次のように理解できる。

- (1) 圧縮処理はドブラシフトがないものとして施されている。ゆえに、反射波にドブラシフトが含まれている場合、圧縮波形に若干の歪が生じる[2]。この歪は Up-C と Down-C で時間軸方向に逆向きとなる。したがって、圧縮された細パルスが完全に重なるような対応付けは不可能である。Fig. 2 に圧縮波形の歪の様子を例示する。
- (2) 受信波のサンプリング時刻は固定されているため、圧縮細パルスのサンプリング位相はドブラシフト、すなわち細パルスの生じる時間軸上の位置に応じて異なる。
- (3) 両圧縮波形の相関関数は、チャープ信号の中心周波数正弦波を振幅変調した波形となり、上記(1)、(2)の理由によって、相関値最大となる点が離散的 (上記正弦波 1 波分を単位) に変化する。すなわち、ある程度速度が変わってはじめて、検出速度の値が不連続に変化する。

### 3. 多段圧縮相関法によるドブラ分解能の向上

#### 3.1 多段圧縮相関法

2.2 での問題を解決するための一方策として、想定している速度レンジ内で  $n$  個の速度を設定し、各速度を仮定し

た圧縮処理を施した後、これらを用いた局所相関処理を施す対応付け（以下、多段圧縮相関法と呼ぶ）を提案する。具体的には、以下の手続きを行う。

1. Up-C、Down-C 双方の反射信号に対して、それぞれ  $n$  個の圧縮波形を計算する。
2. 対応する（圧縮時に仮定した速度の等しい）圧縮波形間で相関処理を行った後、相関値が最大となるペアの番号  $i$  とそのときの位置ずれを検出する。
3. 番号  $i$  が指す速度に対し、位置ずれに相当する速度補正を行い、最終的な速度検出結果とする。

### 3.2 波形歪の影響

まず、2.2 の(1)に記した波形歪への多段圧縮相関法による対処を検討した。そのために、速度レンジ内で 0.0, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0[m/s] の 5 通りの速度を仮定して多段圧縮相関法を適用した。結果を Fig. 3 に示す。Fig. 1 と比較することにより、大きな段差は除去されていることがわかる。しかし、小さな階段状の曖昧性は依然残されている。

### 3.3 サンプリング位相の影響

次に、2.2 の(2)に記したサンプリング位相に対する検討を行なった。3.2 では全速度レンジを均等に分割して仮定速度を設定したのに対し、ここではサンプリング位相が少しずつ異なる圧縮波形による対応付けを行う目的で、全速度レンジはそのままにし、仮定速度を 0.0[m/s] から 0.07[m/s]まで 0.01[m/s]刻みで 7 通り用意して、多段圧縮相関法を適用した。これは、波形歪にはほとんど対処できないことになる。その結果を Fig. 4 に示す。今度は、Fig. 1 の大きな階段状の誤りは残されているものの、小さな誤りは全体にわたってほぼ見られなくなっている。以上より、Fig. 1 に見られる小さな階段状の誤りはサンプリング位相に起因した現象であり、大きな段差は波形歪によるものであることが確認できた。

## 4. まとめと今後の課題

FM-PW ドブラ法の複散乱体への適用を目指し、そこで必要となる Up-C と Down-C の圧縮波形間の相関処理について検討した。そして、ドブラフトに起因する波形歪とサンプリング位相の変化により、重大な速度検出誤差が生じることを確認した。この問題に対処するため、多段圧縮相関法と呼ぶ手法を提案した。多段圧縮相関法によれば、波形歪、サンプリング位相各々の問題には対処可能であるものの、両者の同時解決のための工夫が今後の課題である。

### 参考文献

- [1] K.Iwashita et al.: IEEE Ultrasonics Symp., pp.1219-1222, 2003.
- [2] N.Levanon et al.: Radar Signals, Wiley, 2004.

Table. I: Parameters for simulations

Center frequency	3MHz
Band width	300kHz
Pulse width	200μsec.
Sampling frequency	20MHz

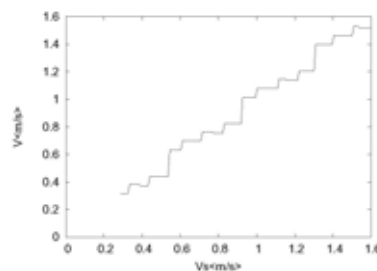


Fig. 1: Simulation results of Doppler measurement with simple local matching

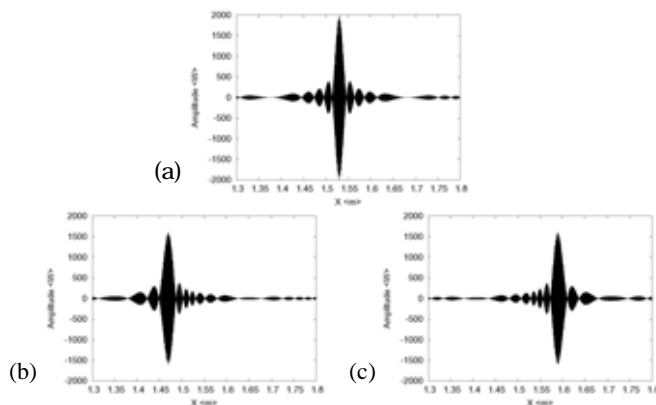


Fig. 2: Examples of compressed waveform: (a) without Doppler shift, (b) Up-C with Doppler shift, and (c) Down-C with Doppler shift

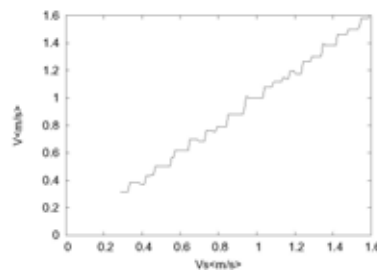


Fig. 3: Reduction of Doppler error caused by waveform distortion

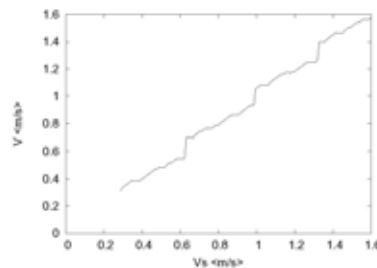


Fig. 4: Reduction of Doppler error caused by variation of sampling phase

## スペックル干渉を利用した圧電デバイス 面内振動変位分布の高速絶対測定

A method based on laser speckle interferometry for measuring absolute in-plane vibrational distribution in piezoelectric resonators

津田輝喜\*, 渡部泰明\*\*, 石井 直+, 関本 仁\*\* (\*都立大院・工,\*\*首都大院・理工,+首都大院・工)  
Teruyoshi Tsuda, Yasuaki Watanabe, Sunao Ishii and Hitoshi Sekimoto (Tokyo Metropolitan Univ.)

### 1. はじめに

本論文では、振動子を模した試験片にミラーを垂直に取り付け、これを外部から加振することで、レーザスペックル測定法[1-3]による面内振動変位測定の絶対測定の可能性について検証する。まず、この試験片の面内振動変位をマイケルソン干渉計により測定し、スペックル画像から振動変位を見積もる方法について述べる。さらに実際の振動子測定に提案手法を適用し、測定および処理結果から提案法の有効性を明らかにする。

### 2. 絶対変位の測定原理

#### 2.1 Michelson 干渉計を用いた変位測定

Fig. 1 は、レーザスペックル法による面内振動変位絶対測定の原理を示したものである。試験片はラフに表面仕上げされた供試水晶振動子およびその主面と直角をなす角に取り付けられた小鏡から成っている。この試験片全体を積層セラミック振動子により外部加振し、その振動変位絶対値をコリメートレーザ、ハーフミラー等を用いてマイケルソン干渉計により測定する。供試水晶振動子表面と小鏡表面は垂直に位置するため、小鏡による面外振動は、水晶振動子の面内振動変位に相当する。水晶振動子表面で観測されるレーザスペックル像は、試験片上部に設置された CCD カメラにより記録され、画素輝度の統計処理によりその相対変位が求められる。

#### 2.2 レーザスペックル法による面内変位測定

Fig. 2 は、ラフに仕上げられた振動子表面のモデルである。面内振動変位を測定するためには、振動子主面と平行に近い角度でレーザ光を入射する必要がある。

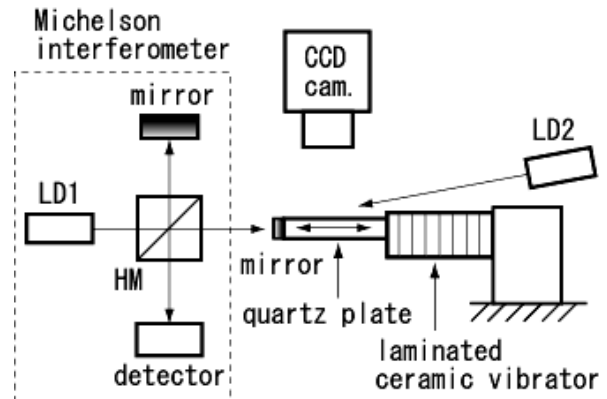


Fig. 1 Measurement system.

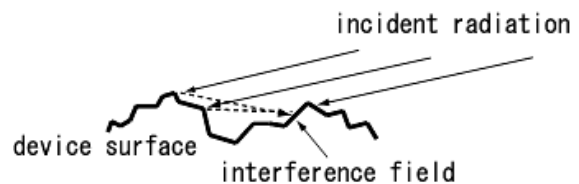


Fig. 2 Optical model of device surface.

一般に振動子表面の加工荒さは、数ミクロン程度であり、これは使用するレーザの波長に比べて十分に長く、かつ可干渉な長さである。したがって振動子表面における干渉点明度を測定することで、面内振動変位を得ることができる。また、高周波用圧電振動子の面内変位量は最大でも可視レーザ波長の 1/3 程度であるので、干渉モデル式[2]から逸脱せずに振動変位の絶対値の校正が可能となる。

### 3. 測定結果

Fig. 3 は、Fig. 1 のシステムを用いた場合の、振動変位に対する画像階調変動値の分散特性を示している。なお、アクチュエータの駆動周波数は 1kHz とし、CCD ノイズ低減のために画像を 5000 回サンプルし平均化を行っている。

縦軸は各階調値に対する度数を示している。同図より、階調分散のピークが振動変位に従って移動することが分かる。しかし測定環境および CCD 自身のノイズにより外部駆動変位を 0 とした場合でも、0.2 階調程度の誤差が生じることが分かる。

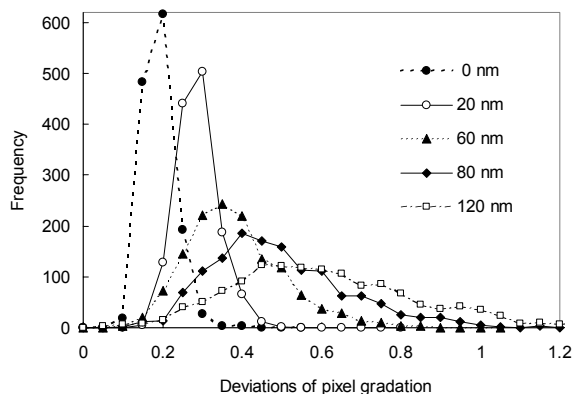


Fig. 3 Frequency distributions of pixel gradation for vibrational displacement.

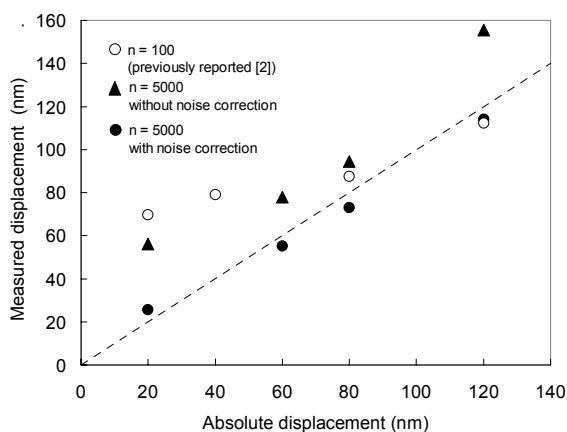


Fig. 4 Comparison between measured and absolute vibrational displacement.

Fig. 4 は、Fig. 3 を計算処理[2]し、駆動振動変位に対する特性を示したものである。但し本報告では、振動変位計算過程において上述のノイズ成分による輝度誤差を補正している。

また測定環境等を原因とする誤差補正は、可視度 $\gamma$ [2]により行っている。

同図において●印は、Fig. 3 と干渉モデル式[1]より導出された振動変位を示している。▲印は輝度ノイズによる影響を無視した場合を示し、○印は平均化回数を 100 回に減じた場合の結果[2]を示している。同図より、平均化回数を増加させノイズ分を補正することで特別な処理を施さなくても、干渉モデル式により振動変位量の絶対測定が可能であることが分かる。

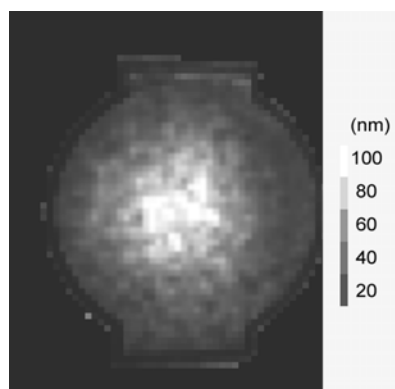


Fig. 5 Experimental results for 10 MHz circular AT-cut quartz resonator. (N=500, Drive level = +3 dBm).

Fig. 5 は、文献[3]で示した AT カット水晶振動子主モードの振動変位分布測定結果を今回示した方法によりスケールを再構成したものである。これよりノイズの影響を考慮することで、振動子中央部分で 100 nm 程度の変位があり周辺部の変位は 20nm 以下となっていることが分かった。

#### 4. まとめ

レーザスペックル法測定による圧電デバイス面内振動変位の絶対測定に関し、マイケルソン干渉計による測定値を基準とする測定システムを構築して検討を行った。実験結果より、干渉モデル式に従い、平均化および輝度ノイズを考慮した計算処理を施せば、レーザスペックル法でも面内振動変位の絶対測定が可能であることが示された。また、その分解能は 5000 回の平均化を行った場合、20nm 以下であることが分かった。さらに面内振動変位の分解能を向上させるためには、低雑音 CCD カメラの導入、または画像平均化回数増による雑音低減が必要と考えられる。

#### 参考文献

1. Y. Watanabe et al., IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, vol. 51, no. 5, 491, 2004.
2. Y. Watanabe et al., Proc 2004 IEEE International Frequency Control Symposium, 591, 2004.
3. Y. Watanabe et al., JJAP, Vol. 44, No. 6B, 2005. (2000) 271.

## 横波超音波を用いた固定されたBeamに蓄積される弾性ひずみエネルギー消滅に関する実験的考察

Experimentally Study of Accumulate Elastic Strain Energy Extinction Phenomenon on the Fixed Metal Beam used a Transverse Wave Ultrasonic

○ 大橋 正明 (芝浦工業大学 工)

Masaaki Ohashi (Shibaura Institute of Technology, Faculty of Engineering)

### 1. 緒言

弾性限界の状態で挙動する矩形のBeamに横軸方向に曲げ応力を懸けると、Beamの全長に渡り弾性変形して曲げひずみが生じる。塑性状態に達するまでにBeamに蓄積される弾性ひずみエネルギーは、モーメントの関数で表わされ、Beamの長さおよびBeamに懸ける荷重より求めることができる。

この研究は超音波非破壊計測法を用いて、曲げひずみを超音波の音速変化に変換し、音速変化分布曲線の面積を求め、Beamの長さおよび荷重の大きさの相似曲線より弾性ひずみエネルギーを計測している。

研究を進めていく過程で、Beamの一端を固定した状態において、弾性ひずみエネルギーが消滅する現象が存在することが見受けられた。この消滅する現

象について報告します。

### 2. 測定装置の内容およびエネルギー消滅の解析

Beam (材質S45Cの矩形のはがね材、厚さ12mm、幅22mm、長さ480 mm) の一短を固定、他端を固定した梁(両端固定梁)に集中応力荷重を懸けた場合、および一端を固定、他端を回転移動支持の軸受の梁に等分布荷重を懸けた場合、Beamの上面および下面に応力に比例したひずみが生じる。PZT 横波超音波振動子を用いて、二深触子法によりBeamの側面からみて上層面および底層面に超音波を伝播させて、応力ひずみに対応した超音波の周期時間をシングアランド周期法により測定している。

この研究に用いた圧電素子は5 [MHz] パルス波に共振する周波数を採用している。ひずみの較正用

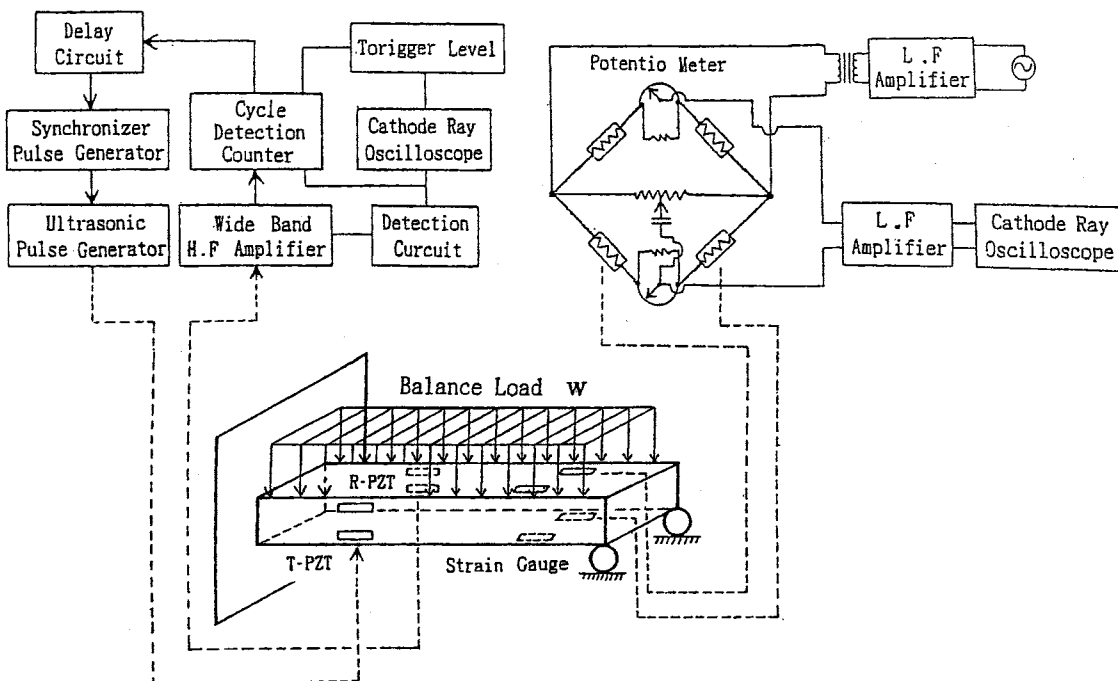


Fig1 System diagram of Balance Lord Beam

として抵抗線ひずみ計を使用した。

Fig1に等分布荷重装置におけるシステム構成図を示す。

Beamの軸受の方式を上記の固定梁の他に、一端回転支持、他端回転移動支持の軸受の梁、(自由支持梁および突出し梁)ならびに片持梁、について研究を進める過程で、理論計算の値と相似曲線より測定した値に相違がみられた。応力ひずみ $\epsilon$ がプラスの値から零点に到達し、マイナスの値を指示する行程で弾性ひずみエネルギーを蓄積せずに通過する領域が存在している。この零の点が弾性ひずみエネルギーの消滅に関与していると推察される。

### 3. 測定結果および考察

Fig2に両端を固定したBeamに集中応力荷重を懸け

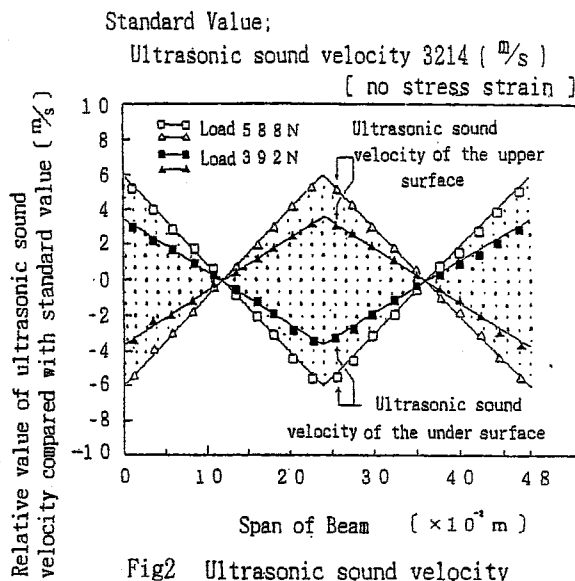


Fig2 Ultrasonic sound velocity distribution of Fixed Beam

た時の超音波音速分布を示す。横軸にBeamの長さ、縦軸に超音波音速変化の増減値を示している。固定端よりみて120 [mm]、および360 [mm]近くにひずみが零の点が存在している。Fig3に一端を固定し、他端を回転移動支持の軸受のBeamに等分布荷重を懸けた時の超音波音速分布を示す。横軸にBeamの長さ、縦軸に超音波音速変化の増減値を示している。固定端よりみて160 [mm]付近にひずみが零の点が存在している。Fig2およびFig3の結果より、固定端より数えてひずみが零の点まで(あるいは零の点から固定端まで)は弾性ひずみエネルギーは蓄積されていない様に推測される。Table 1 に各種の軸受についての測定値を示す。

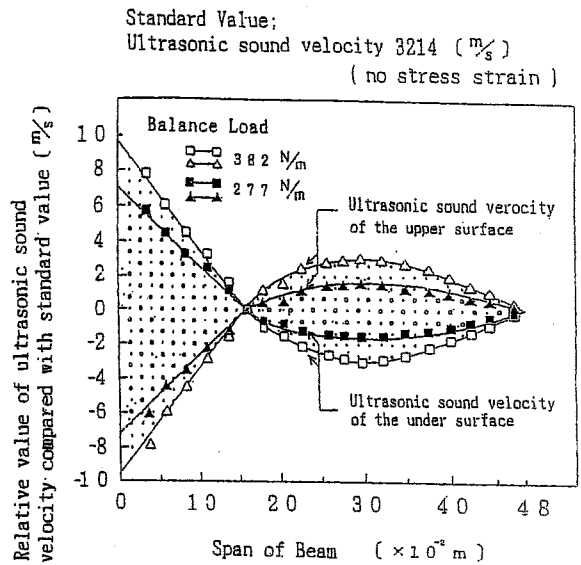


Fig3 Ultrasonic sound velocity distribution of Balance Load Beam

Table.1 Comparative Examination of Accumulate Strain Energy

	Cantilever Beam		Cantilever Beam		Simply Supported Beam	Overhanging Beam	Fixed Beam		One origin Fixed Support, One origin Rotary Moving Support Beam			
	(One Point Load)		(Two Point Load)				Concentrated Load					
	Lord		Lord		Lord		Lord		Balance Lord			
	392 (N)		588 (N)		392 (N)		588 (N)		277 (N/m)			
	196 (N)		294 (N)		196 (N)		294 (N)		382 (N/m)			
Value Calculated from Theory Formula	1.83 (N·m)	4.10 (N·m)	2.22 (N·m)	5.28 (N·m)	2.81 (N·m)	4.86 (N·m)	3.21 (N·m)	5.93 (N·m)	0.10 (N·m)	0.45 (N·m)	0.45 (N·m)	0.67 (N·m)
Value Find from Integral Ultrasonic Waves	2.03 (N·m)	4.07 (N·m)	2.42 (N·m)	5.20 (N·m)	3.11 (N·m)	4.73 (N·m)	3.50 (N·m)	5.85 (N·m)	0.14 (N·m)	0.50 (N·m)	0.40 (N·m)	0.59 (N·m)

# フォトリフラクティブ型干渉計を用いた遮熱コーティングの物性測定

## Measurement of TBC material properties using a photorefractive interferometer

福地 哲生, ポーンテープ チワウィブル, 林 山, 福富 広幸, 緒方 隆志 (電中研)  
Tetsuo Fukuchi, Pornthep Chivavibul, Shan Lin, Hiroyuki Fukutomi, Takashi Ogata (CRIEPI)

### 1. 序 論

火力発電の効率化のためにはガスタービンの燃焼温度の向上が有効であることから、初段動翼には厳しい運転条件が課せられる。現在稼動中のガスタービンの燃焼温度は 1300 程度であり、近い将来に更なる高温化が見込まれる。このような燃焼ガスの高温化に対応するために、金属材料を高温から保護するための遮熱コーティング (Thermal Barrier Coating, TBC) を施工した部品が利用されるようになってきた。しかし、このような部品は非常に高価であり、経済的観点から適切な寿命まで使用するために定量的な余寿命評価技術および非破壊検査技術の確立が求められている。

レーザ超音波法は非接触で非破壊検査を行うことができるため、高温下における TBC の検査などに有効である。TBC は鋼材表面にボンドコート、トップコートを蒸着させて施されるが、レーザ超音波法によってトップコートのヤング率、膜厚などの物性測定を行うことができる。

### 2. 装置構成

ここではフォトリフラクティブ型干渉計を用いてレーザ照射によって励起される TBC 表面上の表面波 (SAW) を捉え、分散曲線を求めることにより TBC の物性測定を行った。フォトリフラクティブ型干渉計は従来型の干渉計に比べて試料表面が粗い場合でも強い干渉信号が得られるため、研磨などの前処理なしで試料の測定が可能となる。

レーザ超音波法による TBC の物性測定に用いた装置構成を Fig. 1 に示す。超音波励起用レーザ (Q スイッチ Nd:YAG レーザ, 波長 532nm, パルスエネルギー 8mJ, 繰り返し 10Hz, パルス幅約 20ns) からの光を円柱レンズにより TBC 試料表面上に直線状 (0.1mm × 7mm) に集光して SAW を励起した。励起された SAW は測定用レーザ (連続発振 Nd: YAG レーザ, 波長 1064nm, 出力 500mW) を光源とするフォトリフラクティブ型干渉計によって検知した。試料表面上における測定用レーザ (干渉計) の出力は >100mW, スポット径は約 2mm であった。測定用レーザは励起用レーザの照射位置に対し任意の離隔距離において照射できる配置となっている。この離隔距離は微動ステージによって調節可能であるため、異なる伝播距離における SAW の波形を測定することができる。干渉計で得られた SAW の時

間波形はデジタルオシロスコープによって 100 ショット分積算して保存した。

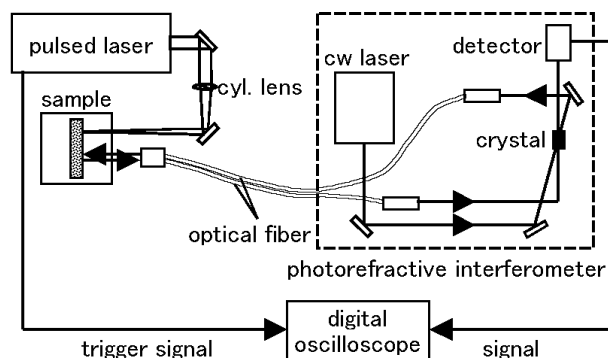


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup

### 3. TBC 試料

ここではステンレス (SUS304) に CoNiCrAlY ボンドコートを真空中でプラズマ蒸着し  $ZrO_2$  に  $Y_2O_3$  を 8% の重量比で混合させたトップコートを空气中でプラズマ蒸着した試料を用いた。ボンドコートの膜厚は約 0.1mm, トップコートの膜厚は約 0.5mm であった。また、トップコートの空孔率が異なる二つの試料 a (標準), b (高空孔率) を用いた。トップコートおよび基盤の密度  $\rho$ , ポアソン比  $\nu$ , ヤング率  $E$  を Table 1 に [1], 研磨された試料断面の写真を Fig. 2 に示す。試料 a, b のポアソン比は同じであると仮定したが、この仮定は後述の解析結果から問題ないことが分かった。

Table 1. Properties of the topcoat [1] and substrate

	$\rho$ [kg/m <sup>3</sup> ]	$\nu$	$E$ [GPa]
sample a (normal)	5200	0.28	30-40
sample b (porous)	3250	0.28	
substrate (SUS304)	7900	0.28	197

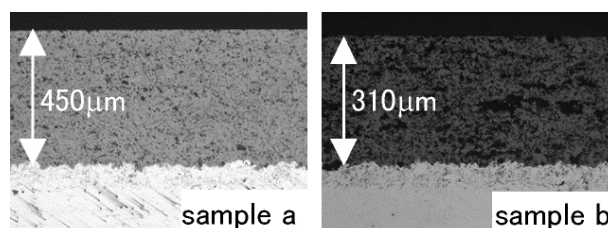


Fig. 2. Photographs of cross sections of samples a and b; thickness of topcoat layer is indicated

試料は 40mm×20mm の大きさに切断し、表面の粗さの影響を取り除くために研磨し、超音波洗浄した後 120 において 24 時間乾燥させた後、実験にて使用した。

#### 4. 測定結果

試料 a を用いて得られた SAW 波形の一例を Fig. 3 に示す。ここでは SAW の発生と検出までの離隔距離  $d$  を 6~10mm において 1mm 刻みで変化させた。SAW の伝播に伴い、分散によって波形が変化していくことが分かる。同様に、高空孔率の試料 b を用いて得られた SAW 波形の一例を Fig. 4 に示す。ここでは SAW の減衰が激しく、波形の変形も大きい。

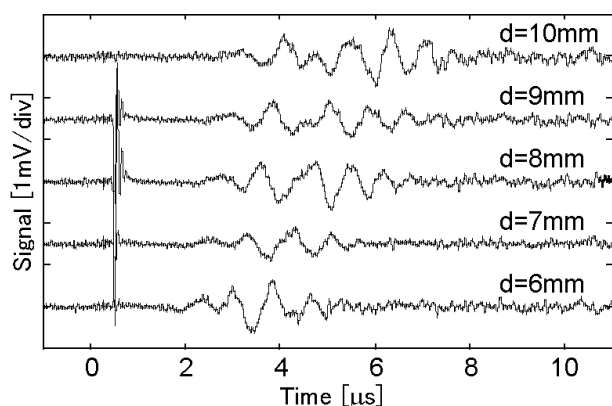


Fig. 3 SAW waveforms obtained for sample a at different propagation distances

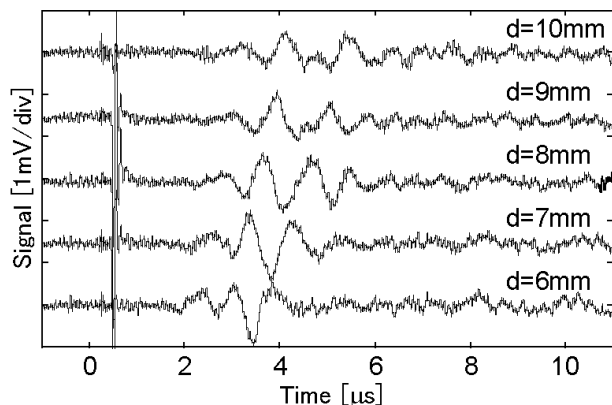


Fig. 4 SAW waveforms obtained for sample b at different propagation distances

上記の SAW 波形から分散曲線を算出し、理論曲線を当てはめることによりヤング率や膜厚などを求めることが出来る[2]。理論曲線の算出においてポアソン比を変化させたところ、分散曲線に変化は認められなかった。よって、異なる空孔率のトップコートのポアソン比と同じとする前述の仮定には問題がないことが分かった。

Fig. 3, Fig. 4 に示した SAW 波形では周波数帯域 1~2.5MHz でのみ分散曲線の算出が可能であった。試料 a, b について、SAW 波形から得られた分散曲線 ( , ) に合うように最適化した理論曲線の計

算結果を Fig. 5 に示す。理論曲線はヤング率  $E$  と膜厚  $t$  をパラメータとして文献[2-4]の手法を用いて計算し、実験結果との差異が最小となる  $E$  と  $t$  の値を求めた。これらの算出結果、および  $E$  の文献値と顕微鏡による  $t$  の測定値を Table 2 にまとめた。 $E$  に関しては、試料 a の測定値は文献値と合致しており、試料 b の場合は空孔によって半分程度まで低下している。また、 $t$  の測定値は実際の値に近い。

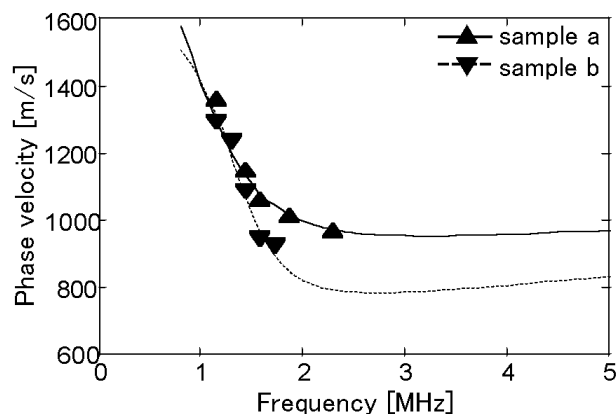


Fig. 5 Dispersion curves of sample a and sample b (triangles: experimental values, lines: theoretical curves optimized to fit experimental values)

Table 2. Measurement results of the Young's modulus and thickness of the topcoat

	$E$ [GPa]		$t$ [ $\mu\text{m}$ ]	
	SAW*	ref.[1]	SAW*	mic.**
sample a	40	30-40	460	450 $\pm$ 15
sample b	20		320	310 $\pm$ 20

\*SAW: obtained from dispersion relation of SAW

\*\*mic: microscope observation

#### 5. 結論

以上の結果から、フォトリラクティブ型干渉計を用いて TBC トップコートの分散曲線を求め、ヤング率や膜厚などの物性測定を行えることを示した。本手法は非接触で測定を行えるため、探触子の適用が困難な高温環境にも適用可能である。

#### 引用文献

- [1] M. Arai and K. Kishimoto, *J. Soc. Mat. Sci. Japan* **52**, 1135-1139 (2003)
- [2] D. Schneider, T. Schwarz, H.-P. Buchkremer and D. Stöver, *Thin Solid Films* **224**, 177-183 (1993)
- [3] D.C. Hurley, V.K. Tewary and A.J. Richards, *Thin Solid Films* **398-399**, 326-330 (2001)
- [4] C. Bescond, R.S. Lima, A. Gilbert, S.E. Kruger, D. Lèvesque and B.R. Marple, Review of Progress in Quantitative Nondestructive Evaluation **23B**, D.O. Thomson and D.E. Chimenti (eds.), AIP Conference Proceedings, New York, 968-975 (2003)

# アレイ導波路格子を用いた ファイバグレーティング超音波センサの信号復調

Demodulation of acoustic signals in fiber grating ultrasonic sensors  
using arrayed waveguide gratings

藤末 卓摩, 中村 健太郎, 上羽 貞行 (東工大 精研)

Takuma Fujisue, Kentaro Nakamura and Sadayuki Ueha  
(Tokyo Institute of Technology)

## 1.はじめに

ファイバ型光フィルタであるファイバブラッググレーティング (FBG) は温度や歪みの変化により、中心波長が変化するという性質から、温度センサ、歪みセンサとしての研究が活発である<sup>[1]</sup>。一方、超音波音圧によって中心波長が変調を受けるので、超音波センサとしても利用できる<sup>[2]</sup>。中心波長が異なった FBG を 1 本の光ファイバ中に多数配置することで、光波長多重 (WDM) によるアレイ化が可能である。しかし、超音波周波数で波長変調された WDM 信号から多数の超音波信号を同時に復調する機構が必要である。そこで、アレイ導波路格子 (AWG) を用いた波長分析法を応用して<sup>[3]</sup>、FBG 超音波センサの信号復調の検討を行った。

## 2.FBG 超音波センサの AWG による信号復調

FBG は、Fig.1 のように光ファイバコアの屈折率を長さ方向に周期的に変調したもので、その変調周期を、平均屈折率を  $n$  とすると、 $=2n$  の波長で反射を起こし、それ以外は透過する。今回は Fig.2 のような帯域幅約 0.8 nm の反射特性を示す 1550 nm 帯 FBG を利用した。温度変化による中心波長シフト量は 10.8 pm/°C である。

提案する AWG を用いた FBG 超音波センサの全システムを Fig.3 に示す。広帯域光源であるスーパールミネッセントダイオード (SLD) を光源として、1 本のファイバ中に多数直列配置された中心波長の互いに異なる FBG 群からの反射光を AWG に導く。AWG は多重化された

光信号を波長ごとに異なる出力ポートに取り出すことができるデバイスで、多数のバンドパスフィルタ列と考えられる。例えば、Fig.4 のように、AWG の隣り合う 2 つの通過域 CH1、CH2 の中間に FBG の中心波長が存在する場合、FBG 中心波長の変化によって CH1 と CH2 の光量は互いに逆に変化する。従って、FBG 中心波長が超音波により変調を受ければ、CH1 と CH2 には超音波音圧に応じて強度変調された光信号が互いに逆位相で得られる。これをフォトダイオード (PD) で電気信号に変換するが、CH1 と CH2 の差動をとることで同相ノイズの除去などの効果が得られると考えられる。

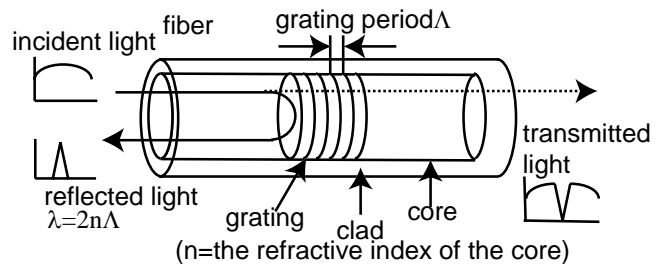


Fig.1 Fiber Bragg grating (FBG).

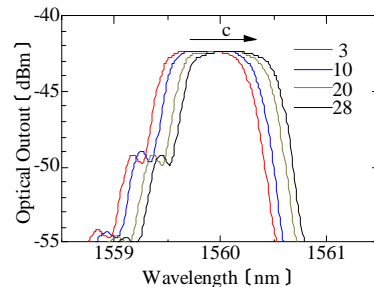


Fig.2 Reflection characteristics of the FBG for various temperature.

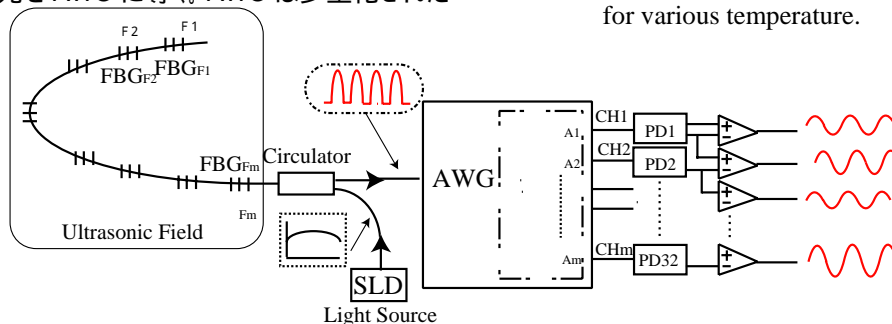


Fig.3 FBG-based ultrasonic sensor system using AWG.

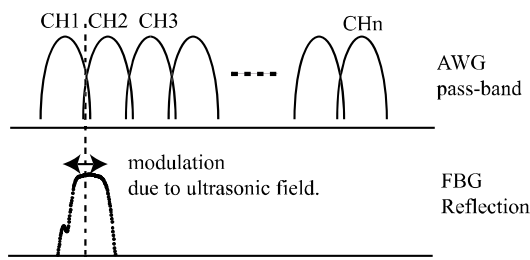


Fig.4 Principle of the signal detection.

### 3.静的動作の検証

まず、FBG 中心波長を温度変化によりゆっくり変化させて原理の確認を行った。NTT エレクトロニクス製の 100 GHz、(0.8 nm)間隔、32ch の AWG モジュールを用いた。Fig.5 に AWG の CH31 と CH32 と今回使用した FBG の波長特性を示す。FBG 中心波長と CH31、CH32 の出力の関係を図.6 に示す。横軸は FBG の温度特性から求めた。AWG は 27 付近で温度制御は行っていない。FBG の波長変化につれ、CH31、CH32 はそれぞれ減少、増加している。この温度範囲では、FBG の反射ピークが CH32 の通過域に寄っているため、CH31 に比べて CH32 の変化率が小さい。AWG の温度制御を行えば、2 つの傾きを同一にできると考えられる。

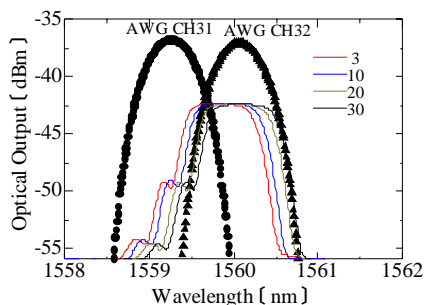


Fig.5 AWG pass-band and FBG reflection.

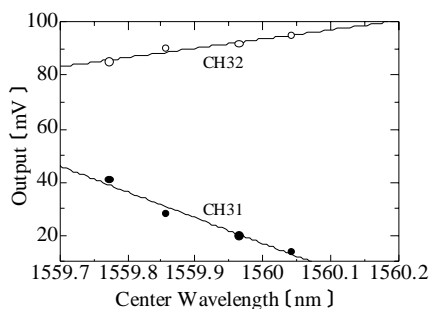


Fig.6 Relationships between the PD outputs and the center wavelength of FBG.

### 4.超音波信号の復調

次に、FBG を 26.8 kHz の超音波洗浄器中に入れ、超音波信号復調を行った。AWG の隣り合う 2 つのチャンネル CH31、CH32 の出力光強度波形とその差動を取った波形を Fig.7 に示す。これらから原理どおり位相が互いに反転した信号が得られていることが分かる。また、

差動信号は SN 比が向上していることも見て取れる。

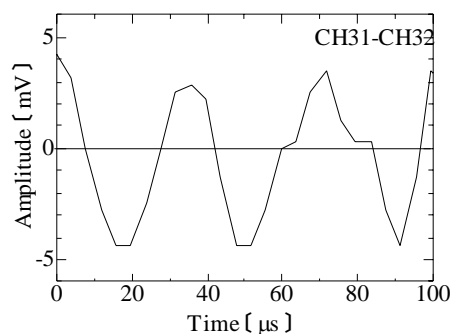
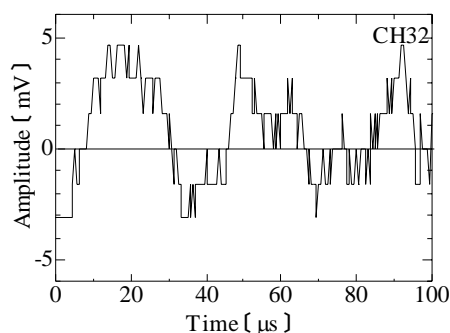
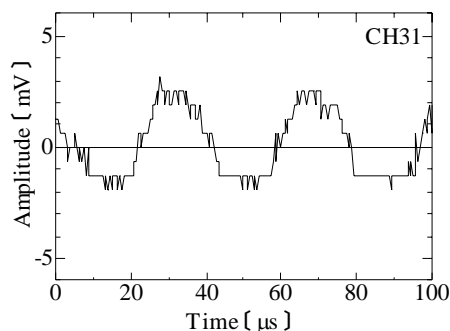


Fig.7 Results of the demodulation.

### 5.まとめ

AWG を用いて FBG 超音波センサの出力を電気信号に変換する方法について検討した。今回は 1 素子のみでの動作検証だったが、今後、多素子の場合について検討する。また、AWG の温度制御を行って動作点を最適化する必要がある。

### 参考文献

- [1] 石川真二, 応用物理, Vol.69, No.6, (2000), pp.648-654.
- [2] Nobuaki Takahashi, Akihiro Hirose and Sumio Takahashi, Optical Review, Vol.4, No.6, (1997), pp.691-694.
- [3] Yasukazu Sano and Toshihiko Yoshino, Journal of Lightwave Technology, Vol.21, No.1, (2003), pp.132-139.

## 無線・無電極水晶免疫センサの開発

## Wireless and electrodeless Quartz crystal biosensor

松本崇志、荻博次、水垣共雄、平尾雅彦（大阪大学大学院 基礎工学研究科）

Takashi Matsumoto, Hirotsugu Ogi, Tomoo Mizugaki, and Masahiko Hirao (Osaka Univ., Grad. Sch. Eng. Sci.)

## 1. 緒言

1959年に Sauerbrey は水晶振動子表面への物質の吸着を共振周波数の低下により検出できることを示した<sup>(1)</sup>。水晶振動子は高い Q 値を持ち、共振周波数の温度依存性が小さいという特徴があるため、共振周波数の変化から吸着物質の質量を高感度に測定することができる。そのため、微小の質量変化の検出を必要とする膜厚計、ガスセンサなどに利用されてきた<sup>(2)</sup>。また、最近ではバイオケミカル反応の分析への応用も行われ、水中での共振計測技術が広く研究されるようになってきた<sup>(3-5)</sup>。

一般の水晶振動子センサにおいては振動子表面に電極の成膜を行い、振動子に電場を与えることにより振動を励起・検出する。しかし、この手法では、配線が必要であり、測定可能な環境が限られてくる（例えば、高温での測定は困難となる）。また、金属電極において振動のエネルギーを損失してしまうため、高周波数域において Q 値が低下し、特に振動ロスの大い水中においては 10 MHz 以上の周波数域における安定した測定は困難な場合が多い。周波数変化率は共振周波数に比例するため、センサの高感度化には高周波数域における測定が望まれる。そこで、本研究では平面コイルを用いて準静的な振動電場を発生し、非接触に水晶振動子の振動を励起する振動電場法を提案する。これにより、無線・無電極で遠隔的に計測を行うことができた。また、水中で 70 MHz 以上の高周波数域において安定した計測を行うことができた。

この手法の適用例として、水中での測定が必要である免疫センサを開発し、その有用性を検討する。

## 2. 振動電場法

振動電場法はコイルを用いて振動電場を発生させ、圧電効果を利用して圧電体を振動させる方法である。このため、非接触に超音波振動を励起・検出することができ、従来問題となっていた接触に関わるエネルギーロスを軽減することができ、高周波数域における共振周波数を精度よく測定することができる。Fig.1 に示すように 2 本の導線を平

行に巻いて平面コイルを作成した。一方はバースト波信号を入力し、もう一方は振動振幅を受信する。電場の準静的な成分(非回転成分)は面内方向に発生する。Fig.2 と Fig.3 は板厚 0.3 mm の AT カット水晶板に対して測定した空気中及び水中における共振スペクトルを示す。水中においては面外変位成分を有する準縦波 ( $ql$ ) 及び準横波 ( $qs$ ) は振動エネルギーが水に漏洩するためにこれらの定在波が発生せず、純粋なせん断モード ( $s$ ) のみが観測された。70 MHz 程度の高周波数域においても共振ピークが得られている。

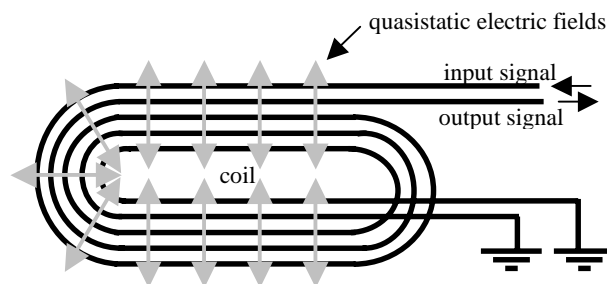


Fig.1 Schematic of an elongated spiral coil.

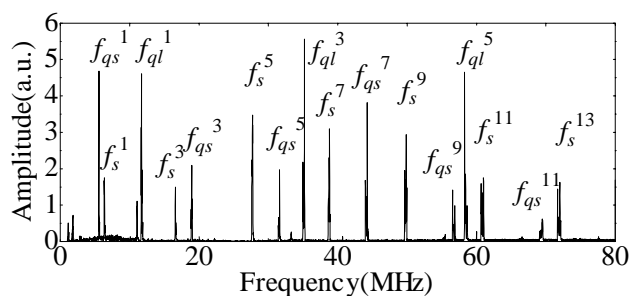
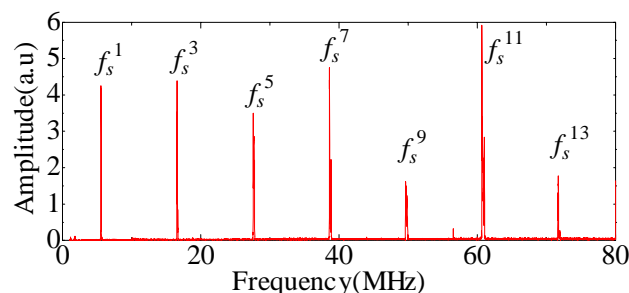
Fig.2 Resonant spectrum of AT-cut quartz plate of 0.3 mm thick measured in air.  $f_{ql}^n$ ,  $f_{qs}^n$  and  $f_s^n$  denote  $n$ th quasi-longitudinal-wave, quasi-shear-wave, and pure-shear-wave resonant frequencies, respectively.

Fig.3 Resonant spectrum of AT-cut quartz plate of 0.3 mm thick measured under water.

### 3. 免疫センサの作成とヒト IgG の検出

免疫センサは免疫の持つ特異的相互作用を利用して、選択的に目的とする免疫物質をセンサに取り込み、その濃度や活性を分析する装置である。免疫疾患の確定診断、鑑別診断に利用されるため、数多くの手法が考案されている。水晶振動子免疫センサは目的とする免疫抗体と特異的相互作用を持つ物質を振動子に固定化し、免疫抗体を選択的に付着させる。そして、共振周波数の変化より免疫抗体の濃度を測定する。標識を使用しないため連続的な測定を行うことができる。これにより、免疫の特異的相互作用の動的・熱的力学特性を知ることができる。これは細胞粘着やウイルス感染における分子レベルの理解を深める上で重要であり、究極的には対抗薬を合理的に作成する上での補助的役割をもつ可能性も持つことが示唆されている<sup>(5)</sup>。

本研究では目的とする抗体を体内に最も多く存在する免疫グロブリン G(IgG)とする。そこで、IgG と特異的に結合するプロテイン A を振動子に固定化し、これを介して IgG を吸着する。固定化方法は Muramatsu らの手法を用いた<sup>(3)</sup>。IgG とプロテイン A を解離させる解離剤としてグリシン - 塩酸緩衝液を用いる。吸着から解離までの連続的な測定を行うため、Fig.4 に示すフローインジェクション分析システムを開発した。

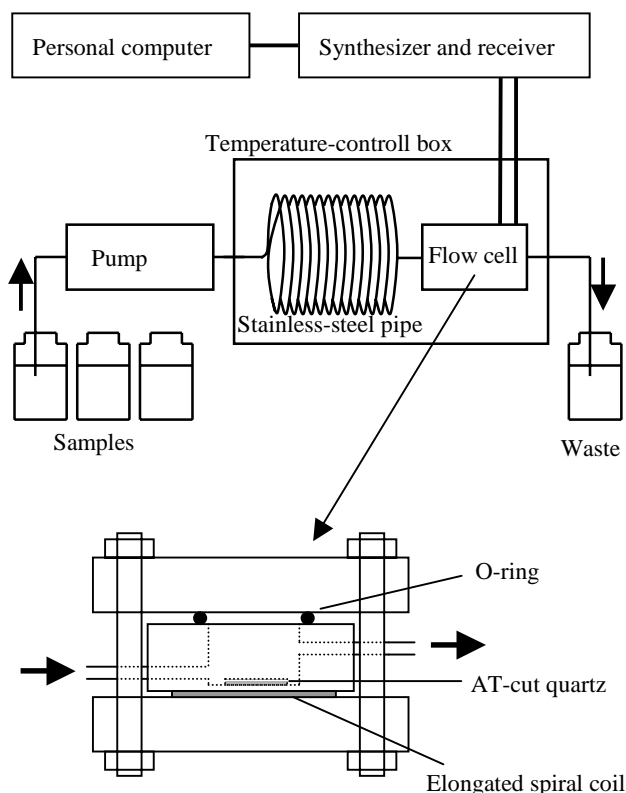


Fig.4 Schematic of FIA-Quartz crystal biosensor.

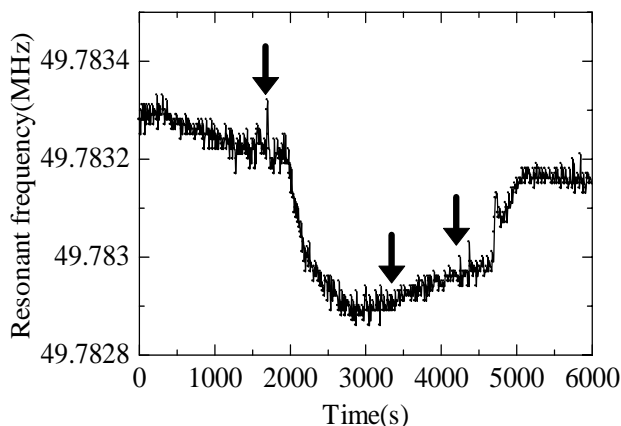


Fig.5 Frequency shift of IgG binding and dissociation.

キャリア流体としてリン酸緩衝液を用いる（流速 1 ml/min）。システム全体を 30℃ に保ち、共振周波数が  $10^{-7}$  以下の相対変化で安定した後、次の順序で溶液を注入した。

IgG 溶液（1mg/100ml）を注入する。リン酸緩衝液を注入する。グリシン - 塩酸緩衝液を注入する。結果の一例を Fig.5 に示す。IgG 溶液注入後、共振周波数は 400 Hz 程度低下した。リン酸緩衝液注入後は 300 Hz 程度の変化となっている。リン酸緩衝液により強固に吸着していない IgG が解離したためであると思われる。グリシン - 塩酸緩衝液流入後は元の共振周波数に戻り、IgG が完全に解離していることがわかる。

### 4. 結論

本研究において以下の結論を得ることができた。

- ( ) 振動電場法により、無線・無電極で水晶振動子の振動を励起・検出することができた。電極によるエネルギーロス無くすることができたために、漏洩ロスの大きい水中においても約 70 MHz 程度の共振信号を得ることができた。
- ( ) FIA - 水晶振動子免疫センサに振動電場法を応用することにより約 50 MHz の高周波数域での免疫センサを開発することが可能であることがわかった。

### 参考文献

- (1) G. Sauerbrey:Z.physik.155 (1959) 206.
- (2) J. Hlavay and G. Guilbault:Anal. Chem. 49 (1977) 1890.
- (3) H. Muramatsu *et al.*:Anal. Chem. 59 (1987) 2760.
- (4) N. Pan *et al.*:Sensors & Actuators B 98 (2004) 180.
- (5) O'Shannessy *et al.* :Anal. Biochem. 212 (1993) 457.

# RUS/レーザー法とピコ秒レーザー超音波法 による銅薄膜の弾性異方性の研究

## Study on Elastic Anisotropy of Cu Thin Films by RUS/Laser method and Picosecond Laser Ultrasound Method

中村暢伴<sup>a)</sup>、荻博次、多根井寛志、藤井誠、安井武史、平尾雅彦（阪大院 基礎工）

Nobutomo Nakamura, Hirotsugu Ogi, Hiroshi Tanei, Makoto Fujii, Takeshi Yasui  
and Masahiko Hirao (Osaka Univ., Grad. Sch. Eng. Sci.)

### 1. はじめに

薄膜の弾性的性質は残留応力や集合組織、微小欠陥などに影響され、バルク材のそれとは異なる。また多結晶体の場合でも集合組織や方位が規則的に存在するマイクロクラックの影響で面内方向と面直方向では弾性的性質が異なる（弾性異方性を示す）ことが明らかとなってきた<sup>1)</sup>。この弾性異方性を定量的に評価することは薄膜を用いたデバイスを設計する上で重要な命題であるが、異方性を考慮して薄膜の弾性定数を測定することは非常に困難である。そこで本研究では RUS/レーザー法（resonant-ultrasound spectroscopy coupled with laser-Doppler interferometry）とピコ秒レーザー超音波法を組み合わせることで薄膜の異方性弾性定数を測定する手法を提案する。

面内方向と面直方向で弾性的性質が異なり、面内方向では等方的であるとき、薄膜は面内等方性の弾性異方性を示し、独立な弾性定数は5つ存在する。膜厚方向に  $x_3$  軸を、面内方向に  $x_1$  と  $x_2$  軸を定義すると、独立な弾性定数は  $C_{11}$ ,  $C_{33}$ ,  $C_{12}$ ,  $C_{13}$ ,  $C_{44}$  と表記される。

RUS/レーザー法は  $C_{11}$ ,  $C_{12}$ ,  $C_{13}$  を精度良く測定することができ、ピコ秒レーザー超音波法では  $C_{33}$  を精度良く測定することができることから、両者を組み合わせることにより薄膜の弾性異方性について議論することができる。

本研究では上述の手法を用いて銅薄膜の異方性弾性定数を測定し、内部組織と弾性的性質の関係を見出すことを目的としている。銅はアルミニウムに比べて電気伝導率が高く、エレクトロマイグレーションに強いことから、集積回路の配線材料として使われるようになっている。しかし、弾性異方性が強く、マクロな機械的性質は集合組織に大きく影響される。また信頼性の高いデバイスを製造するためには結晶粒間の不完全結合や微小な欠陥の含有量を定量的

に評価する必要がある。一般にこのように不完全結合やゼロ体積欠陥は電子顕微鏡を用いても観察することが困難であるが、弾性定数は微小欠陥によって変化するため、弾性定数を精度良く測定することで微小欠陥の形状や体積分率を定量的に評価することが可能になる。

### 2. RUS/レーザー法

薄膜と基板からなる層状材料の自由振動の共鳴周波数は薄膜と基板の寸法と密度、弾性定数によって決まる。従って、共鳴周波数と基板の寸法と密度、弾性定数、薄膜の膜厚と密度を測定することで薄膜の弾性定数を決定することができる<sup>2)</sup>。しかし薄膜の弾性定数の共鳴周波数に対する寄与は小さいため、この原理にしたがって薄膜部の弾性定数を決定するためには共鳴周波数を精度よく測定する必要がある。本研究では著者らが開発した3点支持型の針状圧電トランスデューサーを用いて共鳴周波数の測定を行った。真空雰囲気中で温度を一定に保って測定することで、完全に独立な測定間においても  $10^{-4}$  以下の相対誤差で共鳴周波数を測定することができる。これに対して、薄膜の弾性定数の共鳴周波数に対する寄与（0.2 mm のシリコン基板に  $1 \mu\text{m}$  の銅薄膜を成膜した時の  $C_{11}$  の寄与は 1% 程度）は十分に大きく、薄膜の弾性定数を決定することが可能である。共鳴周波

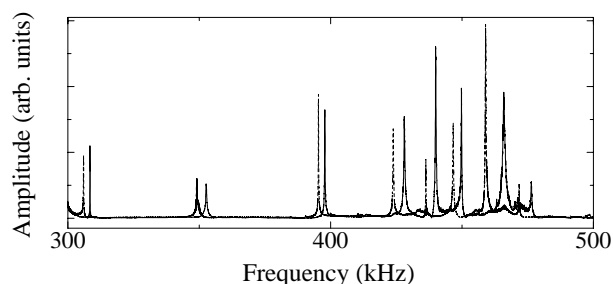


Fig.1 Resonance spectra of silicon substrate alone (solid line) and 1.4- $\mu\text{m}$  Cu/0.2-mm Si specimen (dashed line).

a) nobutomo@me.es.osaka-u.ac.jp

数に対する弾性定数の寄与は弾性定数によって異なり、寄与の大きい  $C_{11}$ ,  $C_{12}$ ,  $C_{13}$  はこの手法によって決定することができる。RUS/レーザー法の詳細については文献 3 を参照されたし。

Fig.1 にシリコン基板上に銅薄膜を成膜する前後のシリコン基板の共鳴周波数スペクトルを示す。実線が成膜前、破線が成膜後の共鳴スペクトルである。銅薄膜を成膜することで共鳴周波数は 1-1.5% 低下した。

### 3. ピコ秒レーザー超音波法

ピコ秒レーザー超音波法では、薄膜内を膜厚方向に伝ばする縦波パルス波の音速から  $C_{33}$  を決定する。パルス波の励起と検出にはフェムト秒パルスレーザーを使用する。

Fig.2 に著者らが開発したピコ秒レーザー超音波法の光学系を示す。フェムト秒パルスレーザー（パルス幅 100 fs、波長 800 nm）を偏光ビームスプリッタにおいて垂直偏光成分と水平偏光成分に分離する。前者を超音波の発生源（ポンプ光）に、後者を超音波の検出（プローブ光）に用いる。ポンプ光とプローブ光の干渉を防ぐために、ポンプ光を第二高調波結晶（ $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>）に通して波長を 800 nm から 400 nm に変換した。その後、音響光学変調器を用いて変調し、対物レンズを介して薄膜表面に照射する。ポンプ光が照射された試料表面では、光弾性効果によって超音波が発生する。試料表面で生じた超音波パルスは薄膜内部を膜厚方向に伝ばし、薄膜表面と基板表面の間で反射を繰り返す。超音波パルスが表面に到達したとき、

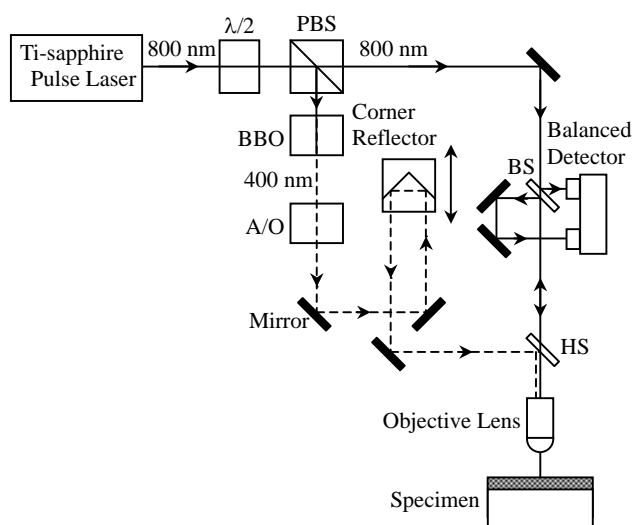


Fig.2 Optical system of picosecond laser ultrasound measurement.

表面近傍の形状の変化および弾性ひずみに起因する反射率・吸収率の変化が生じる。検出光の遅延時間を変化させながら検出光の振幅と位相を測定することで、超音波の多重反射エコーを捕らえることができる。パルスエコーの時間間隔を測定することにより縦波音速を決定した。

この手法によって弾性定数を決定するためには、膜厚を正確に測定しなければならない。本研究では、X線反射率法を用いて膜厚を決定した。薄膜表面と基板表面から反射したX線の干渉ピークが低角側に多く観測され、そのピーク位置から膜厚が決定される<sup>3)</sup>。

### 4. 測定結果

本研究では測定した試料はスパッタリング法を用いてシリコン基板上に成膜した。X線回折より膜厚方向に結晶の(111)方向が有意に配向していることが分かった。Fig.3 に測定した弾性定数と Hill 近似を用いて計算した(111)集合組織と等方体の銅の弾性定数を示す。銅薄膜の  $C_{33}$  は(111)集合組織のそれとほぼ同じであるのに対して、 $C_{11}$  は測定値の方が小さい。この結果は(111)集合組織だけでは説明することができないが、銅薄膜が膜厚方向に伸びた柱状組織で構成されていて、その柱状組織に沿うように結晶粒間の不完全結合部が存在すると考えることで説明することができる。

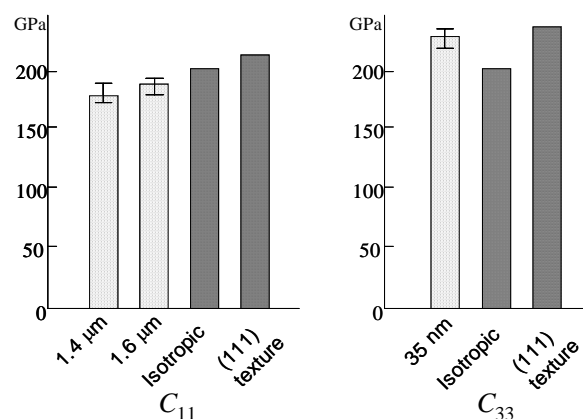


Fig.3 Elastic constants of Cu thin films.

### 参考文献

1. H. Ogi, G. Shimoike, M. Hirao, K. Takashima, and Y. Higo : J. Appl. Phys. **91** (2002) 4857.
2. N. Nakamura, H. Ogi and M. Hirao : Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 3115.
3. H. Kiessig : Annalen der Physik **10** (1931) 769.

# LFB 超音波材料解析システムによる $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ 超低膨張ガラスの線膨張係数評価のための正確な検量線

## Accurate calibration line for super-precise CTE evaluation technology of $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ ultra-low-expansion glasses by the LFB ultrasonic material characterization system

◎荒川元孝, 櫛引淳一, 大橋雄二, 鈴木光二 (東北大院・工)

Mototaka Arakawa, Jun-ichi Kushibiki, Yuji Ohashi, and Kouji Suzuki (Grad. Sch. Eng., Tohoku Univ.)

### 1. はじめに

極端紫外線露光(Extreme Ultra-Violet Lithography: EUVL)装置は次世代の半導体製造装置として開発が進められている。この装置におけるフォトマスクや光学ミラー用の基体材料として超低膨張ガラスが用いられる。我々は、その線膨張係数(Coefficient of Thermal Expansion: CTE)の新しい測定技術として、直線集束ビーム超音波材料解析(Line-Focus-Beam Ultrasonic Material Characterization: LFB-UMC)システム[1]を用いた方法を開発し、その有用性を実証した[2, 3]。 $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ 超低膨張ガラスは、 $\text{TiO}_2$ 濃度によりそのCTEを調整できる。LFB-UMCシステムは、水を負荷した試料表面を伝搬する漏洩弾性表面波(LSAW)の位相速度を測定することにより、 $\text{TiO}_2$ 濃度を高精度に分析できる。このため、本評価法においては、 $\text{TiO}_2$ 濃度とLSAW速度の間関係が重要であり、それを $-0.058 \text{ wt\%/ (m/s)}$ と求めた[2, 3]。しかし、この値は、このガラスの作製プロセスに起因する脈理による不確かさを含む測定値から求めたものである。このため、本システムを用いて EUVL グレードの超低膨張ガラスのCTEの評価を行なうためには、より正確なその関係が必要である。本報では、それを得るための手順を検討した。

### 2. 試料

$\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ ガラス(C-7972, Corning社製)インゴット(1500 mm<sup>φ</sup> × 150 mm<sup>l</sup>)は、その作製プロセスにおいて、Fig. 1(a)に示すように約0.16 mm周期の脈理が形成される[4]。Fig. 1(b)のように試料面が脈理面と垂直な基板を切り出した[5]。4種類の異なるインゴットから7枚の試料(インゴットAから1枚(A1)、インゴットBから2枚(B1, B2)、インゴットCから1枚(C1)、インゴットDから3枚(D1, D2, D3))を用意した。すべての試料は、その大きさが50 mm × 50 mm × 4.8 mm<sup>l</sup>であり、両面平行光学研磨されている。

### 3. 実験

#### 3-1 LSAW 速度

LFB-UMCシステム[1]を用いて、超音波周波数を225 MHzとして、各試料の中心付近の24 mm × 24 mmの領域をy, z方向とも2 mmおきにLSAW速度の測定を行なった。この領域は、蛍光X線(X-ray fluorescence: XRF)分析法による化学組成比の測定

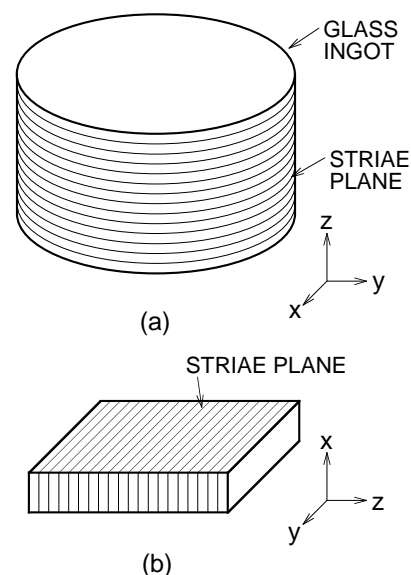


Fig. 1. Specimen preparation. (a) Glass ingot with periodic striae. (b) Specimen with the substrate surface prepared perpendicular to the striae plane.

領域に対応する。LSAWをy方向(Fig. 1(b))に伝搬させ、測定領域(今回の測定条件では、集束方向は最大で280 μm、非集束方向は約900 μm)における平均的なLSAW速度を測定した[5]。測定値は $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ ガラス標準試料[5]を用いて絶対校正した[6, 7]。試料間のLSAW速度の平均値の最大差は4.07 m/sとなった。

#### 3-2 化学組成比

次に、XRF分析法により試料の化学組成分析を行なった。測定治具の制限により、試料を50 mm<sup>φ</sup>の円板に成形し、各試料の中心付近の25 mm<sup>φ</sup>の領域に対して測定を行なった。その結果、主成

分は  $\text{SiO}_2$  と  $\text{TiO}_2$  であり、その他に  $\text{V}_2\text{O}_5$  と  $\text{P}_2\text{O}_5$  がわずかに検出された。XRF 分析法による分析値の絶対値を得るため、成形した試料の残りの部分を用いて、高周波誘導結合プラズマ発光分析法 (Inductively Coupled Plasma - Optical Emission Spectrometry: ICP-OES) により  $\text{TiO}_2$  濃度の分析を行なった。Ti 濃度が既知の標準溶液をいくつか用意し、検量線を作成した。ICP-OES による  $\text{TiO}_2$  濃度は、XRF 分析法によるものよりも 0.23-0.38 wt% 大きくなった。

#### 4. 検討

##### 4-1 LSAW 速度と $\text{TiO}_2$ 濃度との関係

$\text{TiO}_2$  濃度と LSAW 速度との間の関係を Fig. 2 に示す。最小二乗法により直線近似を行った結果、XRF 法による  $\text{TiO}_2$  濃度  $C(\text{XRF})$  に対しては、傾きは  $-17.04$  (m/s)/wt%、標準偏差( $\sigma$ )は  $0.010$  wt% となり、ICP-OES によるそれ  $C(\text{ICP})$  に対しては、傾きは  $-12.15$  (m/s)/wt%、 $\sigma$  は  $0.043$  wt% となった。XRF 法は、ICP-OES よりも相対精度が高いと考えられるが、絶対値に関しては ICP-OES のほうが正確である。原点を通過する直線に近似すると、 $C(\text{ICP}) = 1.047 \times C(\text{XRF})$  という関係が得られる。

##### 4-2 検量線

校正した  $\text{TiO}_2$  濃度  $C_{\text{CAL}}(\text{XRF})$  と LSAW 速度  $V_{\text{LSAW}}$  との関係は、傾きが  $-16.27$  (m/s)/wt% となり、 $\sigma$  は  $0.010$  wt% となった。 $\text{SiO}_2$  が 100% である合成石英ガラス (C-7980, Corning 社製) 標準試料の LSAW 速度は  $3426.18$  m/s である [7]。C-7972 試料にこのデータを加えた場合、Fig. 3 のように表される。直線近似により、 $V_{\text{LSAW}} = -16.65 \times C_{\text{CAL}}(\text{XRF}) + 3426.18$  という関係が得られた。この式を変形することにより、 $C(V_{\text{LSAW}}) = -0.06006 \times (V_{\text{LSAW}} - 3426.18)$  となり、 $V_{\text{LSAW}}$  から  $\text{TiO}_2$  濃度  $C(V_{\text{LSAW}})$  が求められる。LSAW 速度の  $\text{TiO}_2$  濃度に対する感度は  $-0.06006$  wt%/(m/s) と求められた。試料間の LSAW 速度の平均値の最大差  $4.07$  m/s は  $0.244$  wt% の  $\text{TiO}_2$  濃度の差に相当する。また、225 MHz における LSAW 速度の再現性は  $\pm 0.14$  m/s ( $\pm 2\sigma$ ) [5] であり、その  $\text{TiO}_2$  濃度に対する感度は  $\pm 0.0084$  wt% ( $\pm 2\sigma$ ) と見積もられる。

#### 5. まとめ

本報では、EUVL システム用  $\text{TiO}_2$ - $\text{SiO}_2$  超低膨張ガラスの CTE を正確に評価するための LFB-UMC システムによる超音波法を確立するために、LSAW 速度と  $\text{TiO}_2$  濃度との間の正確な関係を求めた。

#### 謝辞

ICP-OES による化学分析に御協力頂いた丸山貴久氏、および東北大学金属材料研究所の石黒三岐雄氏に感謝致します。本研究の一部は、文部科学省による 21 世紀 COE (Center of Excellence) プログラムの研究助成金の補助による。

#### 参考文献

[1] J. Kushibiki et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) L1455.

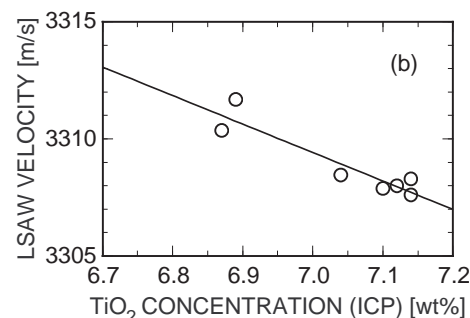
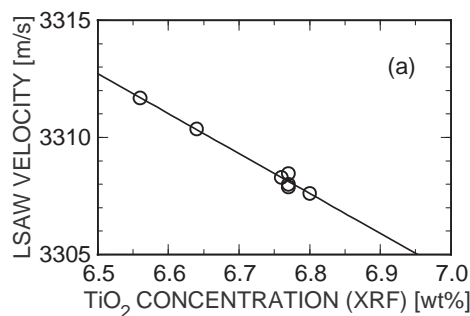


Fig. 2. Relationships between LSAW velocities and  $\text{TiO}_2$  concentrations analyzed by XRF (a) and ICP-OES (b).

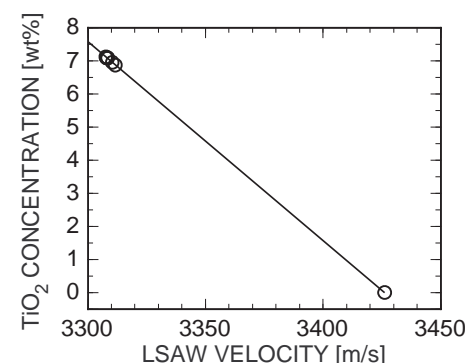


Fig. 3. Relationships between LSAW velocities and calibrated  $\text{TiO}_2$  concentrations.

- [2] J. Kushibiki et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 4374.  
 [3] J. Kushibiki et al.: IEEE Trans. UFFC **49** (2002) 99.  
 [4] K. E. Hrdina et al.: Proc. SPIE, **4688** (2002) 454.  
 [5] 櫛引他: 信学技報, **US2005-4** (2005.4) 19.  
 [6] J. Kushibiki and M. Arakawa: IEEE Trans. UFFC **45** (1998) 421.  
 [7] J. Kushibiki et al.: IEEE Trans. UFFC **49** (2002) 827.

## 位相共役光干渉計を用いた表面き裂の画像化に関する研究 A study on cracks imaging using an adaptive laser ultrasound system with a photorefractive quantum-wells.

松田洋一、菊池恒男、佐藤宗純、中野英俊（産総研）  
MATSUDA Youichi, KIKUCHI Tsuneo, SATO Sojun, NAKANO Hidetoshi (AIST)

### 1. はじめに

供用中の大型構造物の超音波探傷では、広範囲を迅速に検査すること及び接合部等の複雑形状部を検査すること、配管部などの狭隘部を検査することが求められる。レーザ超音波法<sup>1)</sup>は、完全に非接触の検査法であり遠隔からの計測性及び走査性に優れている。しかし従来のマイケルソンやヘテロダイン光干渉計<sup>2)</sup>では、粗対象物及び機械振動や空気の揺らぎ等の外乱環境下での超音波信号検出は困難であった。筆者らは、外乱環境下でのレーザ超音波計測を可能とするために、量子井戸型位相共役素子を用いた二光波混合によるレーザ超音波システムを開発し、その外乱に対するロバスト性及び周波数帯域、音速測定精度を評価すると共に、表面波の到達時間差を用いた表面開口き裂の位置及び深さ計測を行ってきた<sup>3)</sup>。

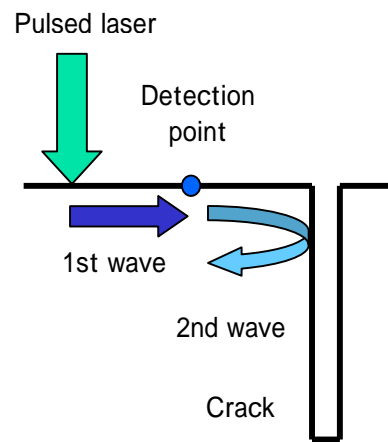
今回、本システムを使用してパルスレーザにより発生させた表面波を観測し、矩形貫通穴（大きさ  $5 \times 1\text{mm}$ ）及び深さが連続的に変化する擬似表面開口き裂（幅  $0.2\text{mm}$ 、深さ  $2.5\text{-}4.8\text{mm}$ ）の画像化を行い、これらの位置及び大きさ、深さを定量的に評価できることを示した。

### 2. 実験原理及び装置

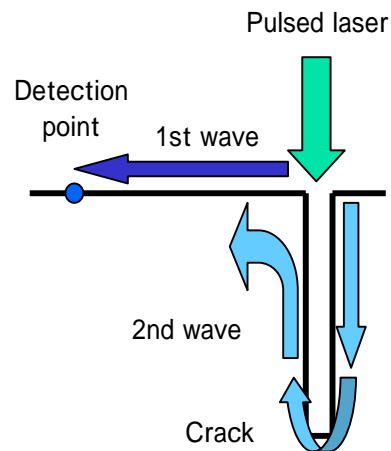
Fig. 1 に表面波によるき裂の位置及び深さ計測方法を示す。位置計測では、励起した表面波を音源とは異なる点で検出する。き裂がある場合には、音源からの直接波の他にき裂からの反射波が検出される。検出点からき裂までの距離は、直接波と反射波の到達時間差と表面波音速との積の  $1/2$  で求められる。深さ計測では、パルスレーザをき裂の真上に照射し、き裂の両エッジで表面波を発生させる。検出点に近いエ

ッジで発生した表面波が直接検出点に向かうのに対して、遠いエッジで発生した表面波はき裂面を往復した後に検出点に向かう。き裂の深さは、二つの表面波の到達時間差と表面波音速との積の  $1/2$  となる。

二光波混合を行う素子には、(株)クボタ製の AlGaAs / GaAs を積層した多重量子井戸型素子を使用した。本素子の応答速度は、mW オーダーの入射光に対しても  $10\mu\text{s}$  以下と高速である。回折効率も 10%程度と高速な素子としては高い



(a) Position measurement



(b) Depth measurement

Fig.1 Crack evaluation using laser generated surface wave.

.....  
matsuda-youichi@aist.go.jp

値を示している。検出用光源には、出力が 150mW のチタンサファイアレーザを使用した。表面波の励起には、パルス幅 4ns・出力 5mJ/パルスの YAG レーザを線状 (10mm×0.5mm) に集光した。照射面でのパルス YAG レーザの強度は熱弾性領域にあり、試料表面を損傷させることなく計測を行うことができる。超音波信号の検出においては、S/N 比を向上させるために 200 回の同期加算を行っている。実環境での測定を想定して、光干渉計に送風機による空気の揺らぎ及び kHz 帯域の機械的振動 (振幅 2-3 $\mu$ m) を加えた。画像化を行うために、試験片は 2 次元自動ステージ上に設置されており、その位置は GPIB を介してパソコンで制御されている。

### 3. 矩形貫通穴の画像化 (位置及び大きさ計測)

試験片には、直径 65mm 厚さ 15mm の鉄系合金を使用し、その中央に矩形貫通穴 (5×1mm) 加工を施した。測定では、試験片を矩形貫通穴の長辺と平行に 0.5mm ピッチで走査し、検出点からき裂の距離を 5mm に設定した。Fig. 2 に各検出点における表面波波形を示す。直接波及び 3.3 $\mu$ s 遅れたき裂からの反射波が明瞭に観測されている。表面波音速 3000m/s と到達時間差 3.3 $\mu$ s から求まるき裂までの距離 (4.9mm) は、設定値 (5mm) と良く一致している。反射波を見ると、到来がわずかに遅れた回折波も観測されていることが分かる。そこで穴の大きさ (長辺の幅) 評価では、穴からの反射の有無を -6dB レベルで判定した。穴の大きさ (長辺の幅) の測定値は 5.5mm であり、実際の大きさ (5mm) よりも大きめではあるが良好一致を示した。

### 4. 表面開口き裂の画像化 (深さ計測)

試験片には、直径 65mm 厚さ 15mm の鉄系合金を使用し、直径に沿って深さが連続的に変化するスリット (幅 0.2mm) 加工を施した。スリットの深さは直径に沿って 0mm から 6.5mm (試験片直径の 1/10) まで変化させているため、スリットに沿って測定点を移動させるとスリットの深さは移動量の 1/10 だけ変化する。本実験では、試験片をスリットと平行に 2.5mm ピッチで走査し、10 地点 (深さ 2.5-4.8mm) で測定を行った。検出点からき裂の距離は 5mm に設定した。Fig. 3 に各検出点における表面波波形を示す。測定開始点での波形 (最も下の波形) では、直接波及び迂回波が 1.5 $\mu$ s 及び 3.2 $\mu$ s に観測されている。直接波と迂回波との到達時間差 (1.7 $\mu$ s) から求められた深さの測定値 (2.6mm) は、

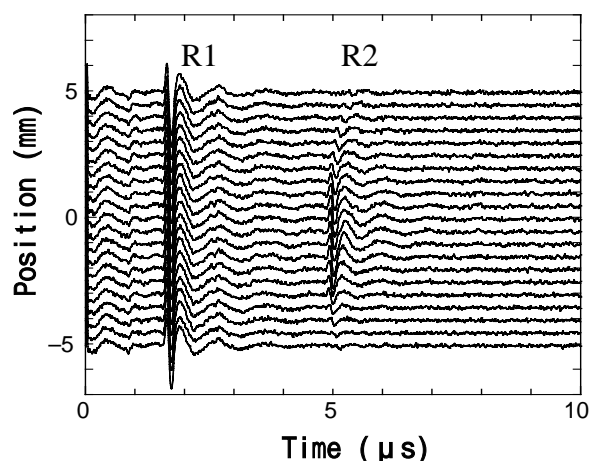


Fig. 2 Waveform scans for a steel disc with a rectangular (5×1mm) through-hole.

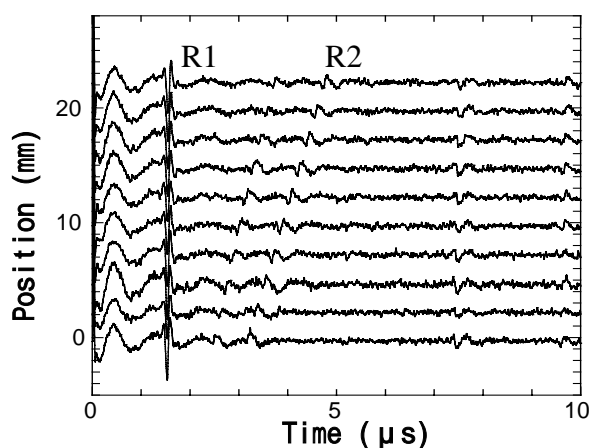


Fig. 3 Waveform scans for a steel disc with a surface-breaking slot (Depth 2.5-4.5mm).

設定値と良く一致している。き裂深さの増加に伴う迂回波到達の遅れも定量的に一致した。

ここで直接波と迂回波以外に 3 つの波が観測されている。2.5 $\mu$ s に到来する波は、き裂先端からの横波と考えられる。7.5 $\mu$ s 及び 9.5 $\mu$ s に到来する波は、き裂先端から放射された横波の底面エコーとも考えられるが検討中である。

### 謝辞

本研究は、原子力委員会の評価に基づき文部科学省原子力試験研究費により実施されたものであり、感謝の意を表します。試料走査プログラムは西山輝氏 (アルプス電気 (株)) に御作成頂いたものであり、感謝の意を表します。

### 引用文献

1. C. B. Scurby and L. E. Drain: *Laser Ultrasonics - Techniques and applications*, (Adam Hilger, Bristol, 1990)
2. Q. Shan and R. J. Dewhurst: *Appl. Phys. Lett.* **62** (1993) 2649.
3. 松田洋一: エネルギー, **36** (2003) 80.

# 前方及び後方散乱波を同時に 用いた超音波逆散乱CT法

Ultrasound Inverse Scattering Computed Tomography  
by Incorporating both Forward and Backward Scattering Wave Information

三ツ谷建志、山田晃 (東京農工大 BASE)  
Kenji Mitsuya and Akira Yamada (Tokyo Univ. of A&T, BASE)

## 1. はじめに

超音波逆散乱CT法は、物体周囲の多方向から音波を照射した際の、周囲多地点で観測される散乱波を元に、物体の音速分布を非侵襲的に再現する。これまで、物体周囲にリングアレイを配置した構成の試作装置が報告されているが<sup>[1]</sup>、システムが大規模で高価になる欠点がある。この問題に対処するために、我々は物体の正方形周囲の4辺にリニアアレイプローブを配置した逆散乱CT装置を提案した<sup>[2]</sup>。そこでは前方散乱波の多周波成分を利用する周波数拡散方式の導入により、リニアアレイを用いるために生じる照射角の制限を大幅に回避できることに成功した。本研究では、観測条件がこれまで以上に制限されても再現できるようにするために、今までの前方散乱波に加えて後方散乱波を利用する方法を提案する。シミュレーション評価試験により、照射角が直交4方向のみで、しかも利用可能な周波数帯域幅がこれまで以上に狭くなっても、音速分布が精度よく再現できる結果が示される。

## 2. 逆散乱CTの問題設定

Fig.1 に示すように物体の正方形周囲上の4辺に送受信兼用のリニアアレイを配置する。一つのリニアアレイを送信に用いて、物体に向けてパルス平面波を照射する。その際の物体からの前方および後方散乱波 $\Phi_s$ を、前方側(送信器に対向するアレイ)と後方側(送信器と同一のアレイ)の各々のアレイで受波する。送信を他のアレイに選んで、四方向の各々について以上の測定を繰り返す。パルス受信波をフーリエ変換することによって、基本周波数ならびにその低域側の多周波の周波数成分を取り出す。前方散乱と後方散乱の各々について、照射方向ならびに周波数成分の異なる散乱波の取得データをもとに、物体音速を再現するための逆散乱CT問題を考える。

## 3. 回折フーリエ切断面定理(観測データと物体音速の関係)

### 3.1 1照射、1周波数の観測

求めるべき物体 $o(x,y)$ の空間 $(x,y)$ に関する2次元フーリエ変換を $O(K_x, K_y)$ とする。一方、 $-y$ 方向から周波数 $f$ の平面波を照射した際に、原点からの距離 $y = \pm d$ に位置する、前方もしくは後方の $x$ 軸に平行なアレイ上の各点で受信される散乱波を $\Phi_s(x; y = \pm d, f)$ とする。さらに、 $\Phi_s(x; y = \pm d, f)$ を $x$ に関してフーリエ変換することにより $\Phi_s(K_x, y = \pm d, f)$ を得る。回折フーリエ切断面定理によ

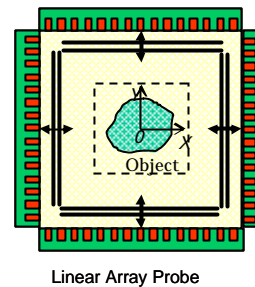


Fig.1 Data observation geometry using four linear array along square circumferences of the object

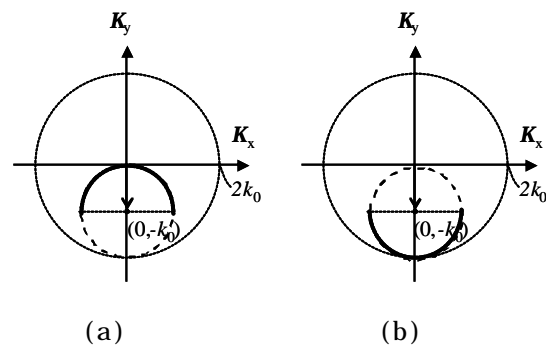


Fig.2 Contour of the data on the Fourier plane, (a)forward scattering wave, (b)backward scattering wave

れば、 $\Phi_s$ は $O(K_x, K_y)$ に対して次の関係で結ばれる。

$$\Phi_s(K_x, y = \pm d, f) e^{-jd\sqrt{k^2 - K_x^2}} \quad (1)$$

$$= \frac{j}{2} k^2 \frac{O(K_x, K_y = \pm \sqrt{k^2 - K_x^2} - k)}{\sqrt{k^2 - K_x^2}}$$

ここで、複号は前方と後方の各々に対応している。式(1)の結果は、前方、後方の各々は、Fig.2に示すように、 $(K_x, K_y)$ フーリエ平面上の中心位置 $(0, k_0)$ 、半径 $k = 2\pi f / c_0$ の上半円と下半円の各々の軌跡上の物体 $O(K_x, K_y)$ に対応していることを示している。正方形周囲の4方向に照射角を変えた観測を行えば、 $0, 90, 180, 270^\circ$ の各々の角度で回転した4つの半円軌跡データを得る。さらに、パルス照射による散乱波から、周波数 $f$ の異なる観測データを抽出することにより、半径 $k = 2\pi f / c_0$ の異なる複数の半円データが取得できる。

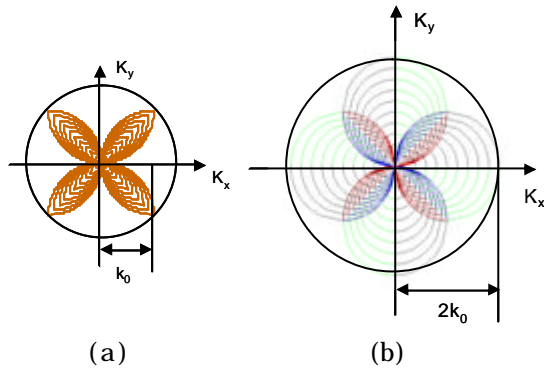


Fig.3 Contour of the data under the frequency diversity observation, (a)using only forward scattering wave, (b)incorporating both forward and backward scattering wave

### 3.2 前方、後方の観測によって取得可能なデータ

初めに、前方散乱波のみを直交四方向で観測する場合を考える。基本周波数  $f_0$  の低域側の  $f_i=0.1i f_0$  ( $i=1-10$ ) の 10 周波数を利用した場合に取得されるデータ軌跡を Fig3(a)に示す。対角 4 方向のリーフ状領域のデータが求まるが、それ以外の領域ではデータが欠落してしまうことが分かる。次に、上記の前方散乱波に加えて、後方散乱波も同時に利用する場合を考える。その際に、取得可能なデータ軌跡を Fig3(b)に示す。後方散乱データによって、前方散乱データの欠落領域がちょうどまぐ補われており、フーリエ平面上の半径  $2k_0$  の円内の全領域で物体データが取得できることがわかる。

## 4. シミュレーション評価試験

### 4.1 フーリエ平面上の理想データを用いた場合

一辺の長さが  $64\text{mm}$  の周囲音速  $c_0$  の正方形領域に音速  $c=1.01c_0$ 、半径  $13\text{mm}$  の円形物体  $o(x,y)$  を設置する。 $o(x,y)$  の二次元フーリエ変換  $O(K_x,K_y)$  に対して、Fig.3(a),(b)のフーリエ平面上の観測軌跡上のデータだけを残し、それ以外をゼロとする理想的な観測データ  $\hat{O}(K_x,K_y)$  を作成する。最後に、 $\hat{O}(K_x,K_y)$  を二次元逆フーリエ変換することにより、 $o(x,y)$  が再現される。これにより、理想データを用いた場合のシミュレーション評価試験を行うことができる。Fig4(a),(b)に、前方散乱のみを用いた場合(半円軌跡)と前方、後方散乱を併用した場合(全円軌跡)に再構成された音速画像を示す。ただし、 $f=150\text{kHz} \sim 750\text{kHz}$  の帯域内を  $37.25\text{kHz}$  刻みで 17 周波数を利用した。前方、後方を併用した Fig4(b)の結果は、前方のみを利用した(a)の結果に比べて音速分布の再現精度が良くなっていることがわかる。

### 4.2 散乱波のシミュレーションデータを用いた場合

級数展開法による厳密なシミュレーション計算によって、円筒物体からの散乱波を求める。4.1 と同一の観測条件のもとに計算された散乱波データを用いて音速 CT 画像を再現した。Fig5(a),(b)に前方散乱のみを利用した時と前方、後方散乱波を併用した場合に再現された

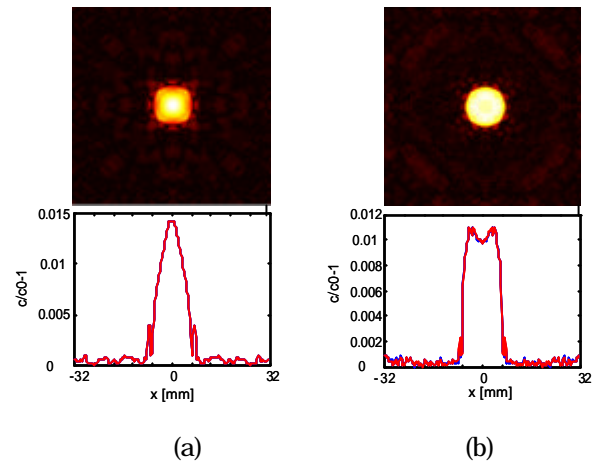


Fig.4 Reconstructed sound velocity image using ideal data on the Fourier plane,(a)using only scattering wave,(b)incorporating both forward and backward and scattering wave

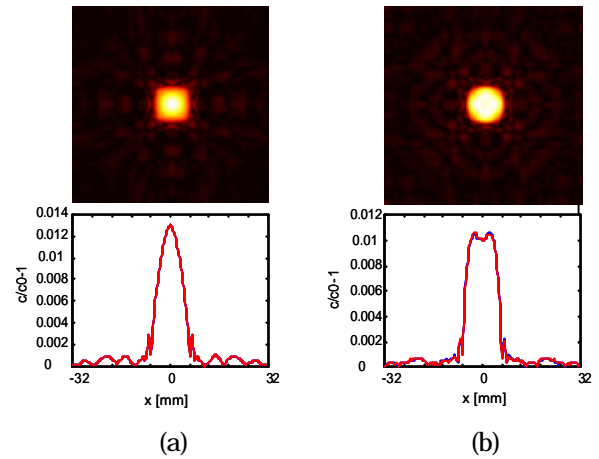


Fig.5 Reconstructed sound velocity image using the rigorous numerical simulation data, (a)using only scattering wave,(b)incorporating both forward and backward and scattering wave

音速画像を示す。4.1 とほぼ同様の結果が得られており、後方散乱を併用することにより、音速の再現精度が向上しており、本提案手法の有効性が確認できる。

## 5. まとめ

前方散乱波と後方散乱波を併用することにより、正方形周囲に配置したリニアアレイプローブの 4 方向のみの照射データから、精度のよい音速画像が再現できる結果を示すことができた。

## 文献

- [1] M.P.Andre, H.S.Janee, P.J.Martin et.al., "High-speed data acquisition in a diffraction tomography system employing large-scale toroidal arrays", Int. J. Imag. Syst. Tech., 8, pp.137-147(1997).
- [2] A. Yamada and S. Yano, "Ultrasound Inverse Scattering CT Under the Angular Illumination Limitation", Jpn.J.Appl.Phys., 43,8A,pp.5582-5588 (2004).

## 音波 CT 法による樹木断面音速分布の映像化

Imaging of Sound Speed Sectional Profile of Wood  
Using Acoustic Tomographic Method

鹿島 彩子 山田 晃 (東京農工大 BASE)

Tamiko Kashima, Akira Yamada (Tokyo Univ. of A&amp;T, BASE)

## 1. まえがき

樹木断面の非破壊映像法として、X線や音波を用いた CT 法が研究されている。X線は装置が大型で、人体への被爆の危険があることから、小型でかつ安全な音波による CT 映像法の実現が期待される。従来から樹木内部の腐食領域の寸法形状や断面音速分布を再現するための検討が行われているが<sup>[1],[2],[3]</sup>、樹木周囲の CT 測定においては設置する送受信器数や測定可能な経路数は少なからざるを得ない。そのため、簡単な音線モデルを前提とした CT 法を使用することになるが、その場合、音線伝搬モデルの誤差と、経路データ数の不足、の2つの原因による再現性能の劣化に対処する必要がある。本研究では、樹木内部の腐食の度合いを判断する手がかりとなる音速の再現性能に重点を置いて、上記の問題解決に向けた検討を行った。その具体的対策として、少ない経路データから、音速 CT 像を精度良く再現できる経路平滑化 ART 法<sup>[4]</sup>を導入した。さらに、有限差分法による樹木周囲で送受信される音波の送受信シミュレーションデータをもとに、腐食領域を想定して再現された樹木断面 CT 像の音速再現精度を評価検証した。

## 2. 樹木の伝搬時間 CT 映像法

## 2.1 伝搬時間 CT 法の概要

Fig.1 のように音速分布が  $c(x,y)$  の樹木を囲む円周上に、 $N$  個の送受兼用の送受信器を等角度間隔で配置する。送受信器を組み合わせた  $M$  経路の各々について、音波の伝搬時間  $T_m (m=1 \sim M)$  を収集する。一方、一様音速  $c_0$  の背景媒質に対する伝搬時間  $T_{m0} (m=1 \sim M)$  を別途測定し、両者の伝搬時間差を  $T_m (=T_m - T_{m0})$  とする。直線音線モデルの前提のもとに、伝搬時間差  $T_m$  は、樹木断面内の逆音速  $1/c(x,y)$  と次式の関係で結ばれる。

$$\Delta T_m = \int_{l_m} \left( \frac{1}{c(x,y)} - \frac{1}{c_0} \right) dl \quad \text{for } m=1 \sim M \quad (1)$$

ここで、 $l_m$  は  $m$  番目の送受信経路を表す。

本研究では、少ない経路で取得される測定データ  $\Delta T_m$  から、経路平滑化 ART 法<sup>[4]</sup>による CT 計算アルゴリズムを適用することにより、式(1)の解としての樹木断面内の音速分布  $c(x,y)$  を求める。

## 2.2 伝搬時間差の測定方法

本問題の場合、物体寸法が照射音波の波長と同程度であるため、音源から照射された音波は回折現象を伴うことになり、伝搬とともに波形が大きく変化してしまう。そのため、時間信号をフーリエ変換して、その中心周波数における位相差  $\Delta\phi$  ( $0 < \Delta\phi < 2\pi$ ) を測定する。フーリエ変換が位相に関して  $2\pi$  の周期関数であり、真の位相は  $\Delta\phi + 2n\pi$  ( $n$  は整数) であることに注意して、次式の関係から伝搬時間  $T$  が求まる。

$$\Delta T = (\Delta\phi + 2n\pi) / 2\pi f \quad (2)$$

ここで、整数  $n$  は、時間信号の包絡線が閾値を越える時間を大まかな到着時間として測定することにより、決定することにする。ところで、音速の遅い腐食領域が存在する場合、直線経路の直達波に、物体周囲を回り込む回折波が重畳してしまい、伝搬時間を誤って測定する可能性があることに注意する。ここでは、両者の波が分離して観測され、しかも直達波の振幅が大きい場合が多いことを利用して、閾値レベルを最適な値に調整することで、この問題に対処することにする。

## 3. 評価試験

## 3.1 シミュレーション方法

有限差分法による音場シミュレーションソフト WAVE2000 Pro を用いて、樹木断面を模擬した固体媒質中を透過伝搬する弾性波をシミュレーション計算する。樹木断面内に、縦波音速分布  $c(x,y)$  と密度  $\rho$  を設定する。ただし、ポアソン比は  $\nu=0.3$  で一定とした。一辺の寸法 600mm の正方形の計算領域内に、背景音速  $c_0=1575\text{m/s}$  及び密度  $\rho_0=1400\text{kg/m}^3$ 、直径 400mm の円筒形状の樹木を想定する。さらに、樹木中央部に直径 200mm、音速  $c_1$ 、密度  $\rho_1=900\text{kg/m}^3$  の腐食領域を設定する。樹木円周上に、 $N=16$  個の送受信器を配置し、Fig.2 の  $M=56$  経路の音波伝搬経路で音波の送受信を行う。送受信器は直径 30mm の開口の円形平面板とし、送信音波は中心周波数 50kHz、2 周期のガウシアンパルスとした。

## 3.2 伝搬時間の評価試験結果

例として、腐食領域の音速を  $c_1=1338.8[\text{m/s}]$  と  $630[\text{m/s}]$  ( $\rho_1/\rho_0 = -0.15, -0.6$ ) の場合について、上記 3.1 の方法に従ってシミュレーション受信データを合成した。このデータをもとに、各々の経路の伝搬時間  $T_m^{(\text{Meas})}$  を求めた結果を Fig.3(a),(b) に示す。比較のために、式(1)

の直線音線モデル計算によって求めた伝搬時間の理想値  $T_m^{(Ideal)}$  を同時に示してある。腐食領域の音速差が小さい場合は、測定値は理想値と比較的よく一致しているが、音速差が大きい場合は回折波の影響が強くなり、腐食領域の境界付近における伝搬時間に誤差を生じている様子がわかる。

### 3.3 音速断面像の再現結果

腐食領域の音速が  $c_1=1338.8[m/s]$  ( $\Delta c/c_0 = -0.15$ ) および  $630[m/s]$  ( $\Delta c/c_0 = -0.6$ ) の場合に対する、音速画像の再現結果を Fig.4(a),(b)に示す。(a)の場合は、回折の影響が少ないため、腐食領域の寸法ならびに音速値ともに比較的良好的な画像が再現されている様子がわかる。一方、(b)の場合は伝搬時間の測定誤差のため、腐食領域の境界付近に正の側に大きな音速誤差を発生してしまっているが、腐食領域中央部の音速は設定値に近い値が再現されている。最後に、腐食領域の音速  $c_1$  の設定値と、再現された腐食領域の音速ピーク値を比較した結果を Fig.5に示す。広い音速範囲に渡って、腐食領域の音速が比較的精度よく推定できる結果が示されている。

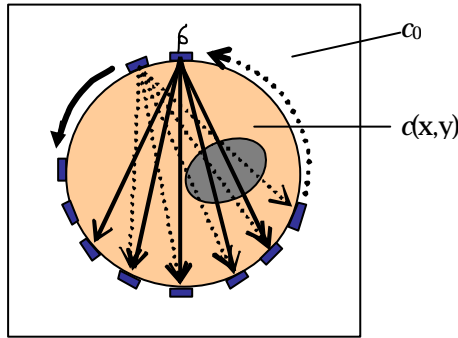


Fig.1 Data observation geometry for wood sound speed tomographic imaging.

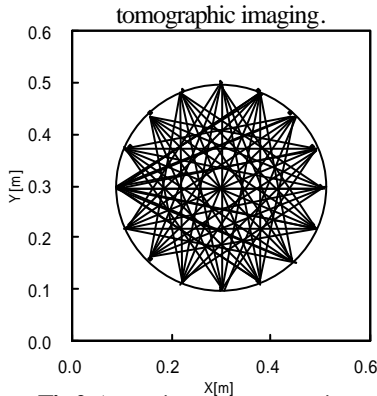


Fig.2 Acoustic wave propagation path.

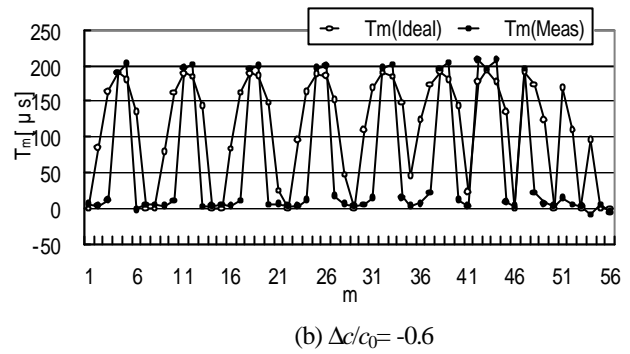
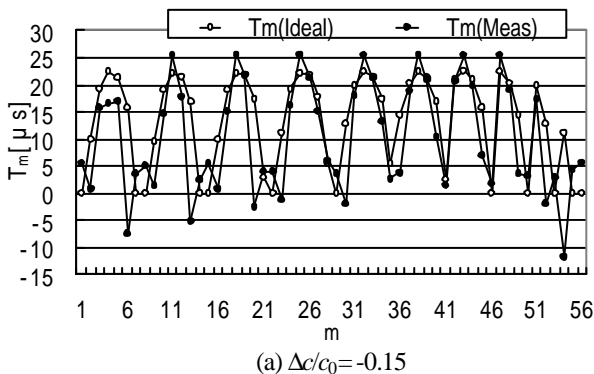


Fig.3 Travel time characteristics for each sound propagation paths, (a)  $\Delta c/c_0 = -0.15$ , (b)  $\Delta c/c_0 = -0.6$

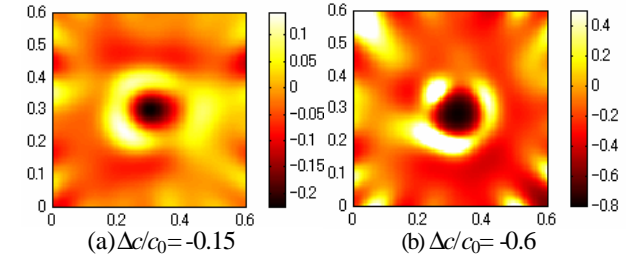


Fig.4 Reconstructed sound velocity image

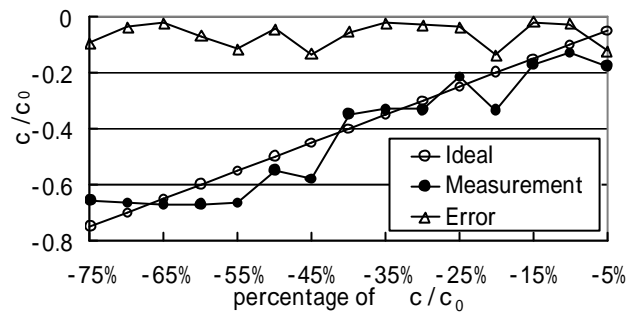


Fig.5 Reconstructed sound velocity as a function of predetermined value.

## 4. むすび

数値差分法による弾性波伝搬のシミュレーション合成データに基づいて、樹木断面音速分布の再現性能を評価した。今後は、実際の樹木を対象に実験的な検討を行っていきたい。また、曲線伝搬を考慮したCT法に拡張し、音速分布の再現精度の向上を図っていく必要があると考えている。

## 文献

- [1]Y.Tomikawa, Y.Iware, K.Arita and H.Yamada: IEEE trans.UFFC 33, pp.354 (1986).
- [2]S.Kanda, KShioya, Y.Yanagiya, Y.Tamura and K Adachi, "Ultrasonic TOF-CT System for Wooden Pillars", IEEE Ultrason. Symp., pp.743(1998)
- [3]R.Martinis, L.V.Socco, L.Sambuelli, G.Nicolotti, O.Schmitt, V.Bucur, "Tomographie ultrasonore pour les arbres sur pied", Ann.For.Sci.61,pp.157-162(2004)
- [4]山田晃, 野上啓介, "透過ビームモデルに基づいた組織音速CT", 信学技報, US2004-61,pp.15-19(2004年10月).

## 光弾性効果を用いた弾性表面波イメージング

Real time imaging of surface acoustic waves  
by means of the photoelastic effect

川田健司、立崎武弘、松田理、Oliver B. Wright (北大院工)

Kenji Kawada, Takehiro Tachizaki, Osamu Matsuda, and Oliver B. Wright  
(Grad. Sch. Eng., Hokkaido Univ.)

## 1 序論

弾性波のなかでも固体の表面近傍に局在して伝播する弾性表面波は、移動通信機器の表面波フィルタに用いられている他、物質表面近傍の弾性的性質や薄膜の評価へも応用されている。このようなデバイス応用や物性評価において、弾性表面波を容易かつ精密に観測することが必要となってくる。これまでに様々な弾性表面波の観測方法が開発されてきた [1-6]。この中で、測定にレーザー光と光干渉計を用いる方法は、非破壊・非接触で高感度の測定が可能である [4-6]。しかし、この干渉計を使った測定には、測定系の部品点数が多い、長時間の安定性に欠けるなどの欠点もある。そこで本研究では、表面波の検出に光干渉計を用いない、より簡便な方法を用いた [7]。この方法は、光弾性効果による試料の反射率変化を測定することで弾性表面波のイメージを得る。光干渉計を用いないことで系全体がコンパクトでより安定したものとなる。また、この測定法では検出光の偏光を様々に変えることで異なる歪みテンソル成分を分離して得られると期待される。今回の研究では、弾性的異方性物質での弾性表面波の実時間イメージングを行った。

## 2 実験

試料は単結晶  $\text{TeO}_2$  (001) 面基板に Nb 多結晶薄膜を RF スパッタで蒸着したものをを用いた。基板の厚さは 1 mm、膜厚は 100 nm 程度である。

測定は、光源にモードロック Ti-サファイアレーザーを用いたポンプ・プローブ分光法に

よって行った。実験に用いた光学系を Fig.1 に示す。励起光、検出光の中心波長はそれぞれ 405 nm、810 nm で、パルス幅は数百 fs、繰り返し周波数は 76 MHz (13.2 ns 周期) である。時間幅がサブピコ秒の励起 (ポンプ) 光パルスを対物レンズで直径数  $\mu\text{m}$  に集光し、試料に垂直に照射する。このとき、試料表面で光吸収、および温度上昇が引き起こされ、熱弾性的に弾性表面波がパルス励起される。励起されるパルスの周波数スペクトルは数百 MHz 程度にまで広がっている。弾性表面波は光弾性効果によって試料の誘電率を変調し、反射率変化を引き起こす。遅延光路を通すことで励起光と時間差がつけられたサブピコ秒の検出 (プローブ) 光パルスを試料に照射して、試料の反射率変化を測定する。さらに、自動ステージで検出側の対物レンズを二次元走査することによって励起光と検出光のスポットの相対位置を変えることで弾性表面波のイメージを得た。測定される反射率変化は微小なので、励起光パルス列を AOM を用いて 1 MHz に変調し、検出にロックインアンプを用いて変調周波数成分のみを検出した。

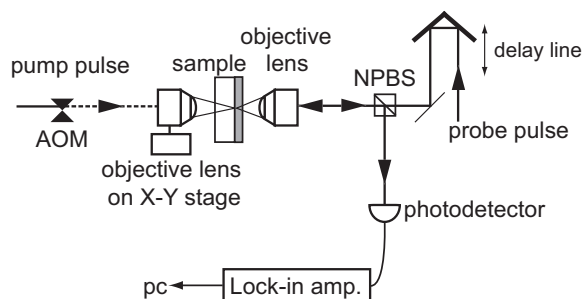


Fig. 1: Experimental setup for surface acoustic wave imaging. AOM: acousto-optic modulator, NPBS: non-polarizing beam splitter, pc: personal computer.

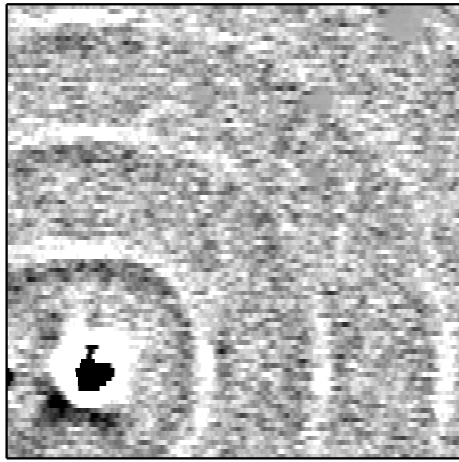


Fig. 2: Surface acoustic wave image on  $\text{TeO}_2$  (001) coated with 100 nm Nb film. The scan region is  $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ .

### 3 結果と考察

Fig.2は実験によって得られたイメージである。励起光パルスを照射してから 0.8 ns 後のものである。測定範囲は  $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$  で、図左下に励起点がある。図中に同心状の波束を三つ確認することができる。これは、点波源から 13.2 ns おきに弾性表面波が励起されているためである。それぞれの波束は、基板の弾性的異方性に起因した異方的なパターンとなっている。波束の間隔から音速を求めた結果、約  $2000 \text{ ms}^{-1}$  であった。この音速と波束の二次元パターンからこの波束は擬似表面波であると考えられる。波束幅はおよそ  $7 \mu\text{m}$ 、中心周波数は 300 MHz 程度である。 $\text{TeO}_2$  (001) 面では Rayleigh-like の弾性表面波や縦波のバルク波も励起・伝播しているはずであるが [6]、このイメージには見られない。現在この原因を調べている。

### 4 まとめ

光弾性効果による試料の反射率変化を利用したイメージング法を用いて弾性的異方性物質の実時間イメージングを行った。得られたイメージは、擬似表面波は十分な強度で見られるが、Rayleigh-like の弾性表面波や縦波のバルク波が観測できなかった。今後、この原因を調べる

とともに、他の弾性的異方体でのイメージングや検出光の偏光を変えてイメージングを行っていく。

### 参考文献

- [1] M. Clark, S. Sharples, and M. Somekh: Meas. Sci. Technol. **11** (2000) 1792.
- [2] D. Shilo and E. Zolotoyabko: Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 115506.
- [3] C. Trillo, D. Cernadas, Á. F. Doval, C. López, B. V. Dorrió and J. L. Fernández: Appl. Opt. **42** (2003) 1228.
- [4] A. Neubrand and P. Hess: J. Appl. Phys. **71** (1992) 227.
- [5] J. V. Knuuttila, P. T. Tikka and M. M. Salomaa: Opt. Lett. **25** (2000) 613.
- [6] O. B. Wright, O. Matsuda and Y. Sugawara: Jpn. J. Appl. Phys. **44**, No. 6B (2005) 4292.
- [7] H. Yamazaki, O. Matsuda, J. J. Baumberg and O. B. Wright: *The 18th International Congress on Acoustics, Kyoto, Japan, 2004*, CD ROM: Th4.I.4 or Vol. IV, p. 2851.

# 光熱法による積層セラミックチップコンデンサの 非破壊評価

## Non-destructive evaluation of surface mount multi-layer ceramic capacitor by photothermal method

岡本恵嗣、矢来篤史、中西卓二（大阪産大・工）

Yoshitsugu Okamoto, Atsushi Yarai and Takuji Nakanishi (Osaka Sangyo Univ., Eng.)

### 1. はじめに

近年、携帯電話など電子機器に使用される電子部品にはより一層の小型・薄型化が要求されてきている。それに鑑み、コンデンサについては専ら小型・薄型に優れている積層セラミックチップコンデンサ(Multi-layer ceramic capacitor; 以下 MCC)が様々な電子機器に使用されている。しかし、現在 MCC の出荷時における良/不良の判断は、目視による表面観察により行われており、その判断の不安定性が問題となっている。本来、それは個々の静電容量の値によってなされるべきであるが、実際に製造ライン上においてそれを個別に測定することは極めて煩雑であり、このことからより簡便、より高精度な良/不良の判別方法が求められている。そこで本研究では、その新たな判別手段として光熱赤外放射検出法による MCC の非破壊評価について報告する。

### 2. 積層セラミックチップコンデンサ

Fig.1 に表面目視観察により良、および不良と判断された MCC の典型的な外観写真例を示す。なお、MCC の形状は縦 0.5mm、横 1.0mm、高さ 0.5mm と極めて小さい。



Fig.1 Surface view of multi-layer ceramic capacitors: a) non-defective specimen  
b) defective specimen.

同写真に示すように、良品の表面が黒っぽいのに対し、不良品の表面はやや白く変色しており、

現在、良/不良の判断はこの色によって行なっている。この不良品表面の白っぽくなる原因はセラミック素体と内部電極間に生じる微小なギャップが原因と推測されている。

この目視判別方法は極めて不安定であるほか、これまで外観上の不良品であっても規定静電容量を満たしているものも多くあることが指摘されており、それが歩留まり低下の原因になっている。

### 3. 光熱赤外放射測定

以上に鑑み、本研究では光熱検出法のうち、簡便で測定感度に優れた光熱赤外放射検出法<sup>[1][2]</sup>を用い MCC の良/不良の判別を試みた。

#### 3.1 赤外放射振幅信号の各測定面依存性

MCC は金属電極とセラミックとが交互に重なった積層構造をしているため、赤外放射検出法による MCC の良/不良判別測定を行う前に、まず各測定面の検出信号への影響の有無を調べた。実際には Fig.2 に示すように右端にマーキング(黒印)した面を正面とし、各測定 4 面 (正面、上面、下面、背面) にそれぞれ 1~4 のナンバーを割り当てた。サンプルには目視検査により判断された良品および不良品を各 1 個用いた。

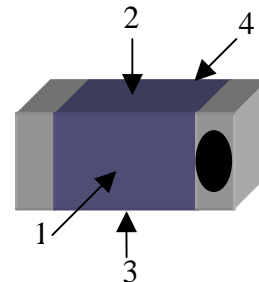


Fig.2 Number of four surfaces measured:  
1) front, 2) top, 3) bottom, 4) rear.

Fig.3 に測定の結果得られた赤外放射振幅信号と各測定面との関係を示す。

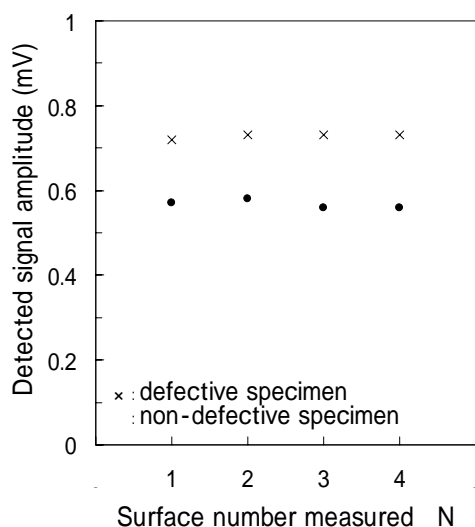


Fig.3 Relationship between detected signal amplitude and surface number measured.

同図から、良/不良品の静電容量値は異なるが、共に各測定面によって検出信号は殆ど変化せず、ほぼ一定値を示すのが確認できる。この結果により、赤外放射検出法による MCC の良/不良判別を行う際に、測定する面は考慮に入れなくてもよいことがわかる。

### 3.2 赤外放射振幅信号と静電容量の関係

Fig.4 に測定の結果得られた赤外放射振幅信号と静電容量の関係を示す。サンプルは目視検査により良品および不良品と判断されたものをそれぞれ5個、および9個用いた。なお測定面は正面(N=1)とした。

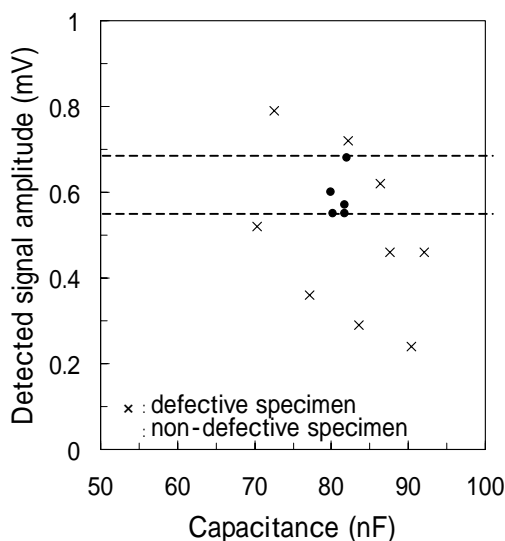


Fig.4 Relationship between detected signal amplitude and capacitance.

同図から、良品の場合、赤外放射振幅信号、静電容量ともばらつきが極めて小さく、1個の例外を除いて良品は全て一定の範囲(点線)の赤外放射振幅信号内に収まっている。一方、不良品の場合、いずれもそのばらつきが極めて大きい。これは不良品の場合、前述のセラミック素体と内部電極間の微小ギャップが熱的に影響を及ぼし、かつ、その微小ギャップの大きさが不規則であるためであると考えられる。以上の結果から、光熱赤外放射検出法により MCC の良/不良品を判別することがほぼ可能であることを明らかにした。ここで、1個の不良品が赤外放射振幅信号としては良品値を示しており、これは前述とは別の要因によって生じたものであるものと考えられるが、原因は不明である。

## 4. 結論

積層セラミックチップコンデンサの良/不良品の判別法について、従来の判別法である目視検査の不安定性を排除出来る新規な非破壊評価法として、光熱赤外放射検出法を試みた。その結果、同法を用いることによって積層セラミックチップコンデンサの良/不良がほぼ判別可能であることを立証した。

## 参考文献

- [1] A. Yarai, Y. Okamoto and T. Nakanishi: Rev. Sci. Instrum. 74 (2003) 652.
- [2] Y. Okamoto, A. Yarai and T. Nakanishi: Jpn. J. Appl. Phys. 44 6B (2005) 4394.

## 謝辞

試料を提供して頂いたカネボウビジョンシステム(株) 技術企画課、小川文弘氏に厚く御礼申し上げます。

# 超磁歪振動子を用いた地中配管検知に関する研究

## Study on Detecting Underground Piping using Giant-Magnetostriction Vibrator

川村洋平 (筑波大・シス情) 河宜成、野呂浩介 (筑波大・工シス)  
水谷孝一、青島伸治 (筑波大・シス情)  
Youhei Kawamura(Univ. Tsukuba), Takanari Ko, Kosuke Noro(Univ. Tsukuba),  
Koichi Mizutani, Nobuharu Aoshima(Univ. Tsukuba)

### 1. はじめに

地中配管埋設工事を施工する際、予め図面や標識を基に地中に障害物が無いかが判断した上で施工する。しかしながら、既設管の位置が図面や標識と食い違っている、または不明な管が存在する等により、配管埋設工事を妨げる事例が少なくない。このような事態を回避するために、事前に地中内部の様子を調査する必要がある。現在用いられている主な地中内部探査方法として地中レーダや電磁波探査法があるが、両者とも欠点がある。地中レーダは地中内部の誘電率や含水率、粒径、種類によって探査精度が大きく変化する。特に多雨地域では探査は困難なものになる。また、電磁波探査法では電磁誘導を用いて金属製の物体の検出には適しているが、水管は塩化ビニル製のものが多く、この場合も探査が困難である。そこで本研究では両者の欠点を克服するために弾性波探査法を用いて地中配管を探査することにした。弾性波発生装置として『超磁歪振動子』を用いた。超磁歪振動子とは磁場印可によって歪みを発生する『超磁歪体』を利用した振動子である。圧電素子と比べ応答速度が速く、数 10 倍の大変位(1500ppm<sup>-1</sup>)、大出力を発生可能であり、その上小型で携帯しやすい<sup>1)</sup>。弾性波探査には好都合な振動子である。これを用いて任意波形の弾性波を発生させる。本研究では P 波と SH 波の 2 種類の波を用いて地中配管検知実験を行った。その結果、P 波、SH 波を用いて深度 120cm 程度までの地中配管を検知することが可能であった。

### 2. 実験装置と実験方法

本実験では検知対象物として直径 16.5cm、奥行き 25cm の塩化ビニル製管 3 管を用い、それぞれ地中に埋設した。Fig.1 に配管の埋設状況を示す。管の埋設深度は一般住宅に供給される水管、ガス管の深度、60cm ~ 120cm を参考に決定した。解説を簡便にするため、管にそれぞれ A、B、C と名前を付けた。弾性波発生装置として超磁歪振動子を用いた。超磁歪振動子に鉄製支持具を取り付け P 波、SH 波の弾性波を発生させた。それぞれ Fig.2(a)(b) に示す。

ko@gsl.iit.tsukuba.ac.jp

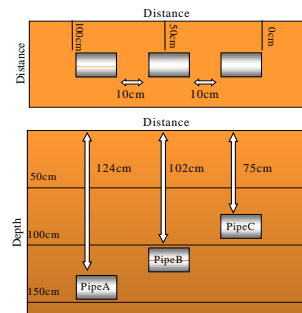
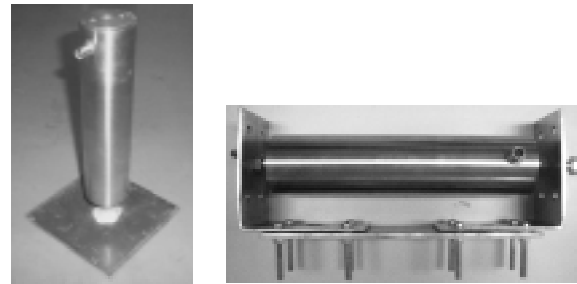


Fig.1 Schematic of underground piping



(a) (b)

Fig.2 Picture of Giant-Magnetostriction Vibrator

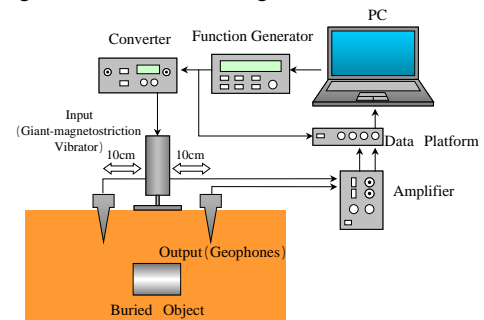


Fig.3 Schematic of experimental set up

実験装置の概略図を Fig.3 に示す。対象物の中心軸上に振動子を配置し、そこから管の長手方向 ±10cm 離れた位置に弾性波受振器としてジオフォンを 1 つずつ設置した。

実験では最初に電圧波形を PC で作成し、その波形をファンクションジェネレータに記憶させ、電圧波形を電流波形に変換する変換器を介して、超磁歪振動子に入力、起振させた。地中を伝播する振動をジオフォンで受振し、それらの受振波形を増幅器で増幅した。その際フィルタリングも行い、余計な周波数をカットした後、データロガに取り込み、PC 上で波形解

析を行った。

また地中 20cm 程度で、P 波、SH 波を同様の手順で発生させ、その伝播速度を測定しておく。これと管からの反射波発生時間と比較し、その測定精度を検討する。

### 3. 実験結果

Fig.4 に入力電圧波形である 300-100Hz ダウンチャープ信号を示す。この波形を管 A の上部で P 波として入力し、ジオフォンで受振波形を受け取る。ノイズの影響の軽減や受振波形の整合性の向上させるために平均応答法を採用した。同一波形を 5 回入力し、その 5 回分の出力波形を平均化した。その結果を Fig.5 に示す。このグラフを見る限りでは直接波と反射波が混在しており、反射波到達時間が不明瞭である。そこで、入射波形との相互相関を行った。それを Fig.6 に示す。

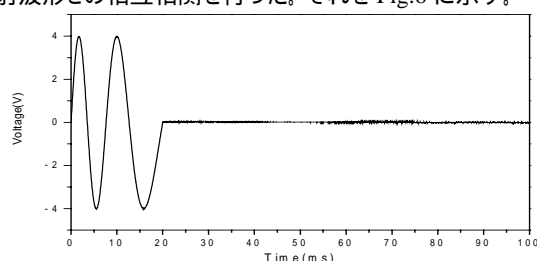


Fig.4 Input voltage waveform

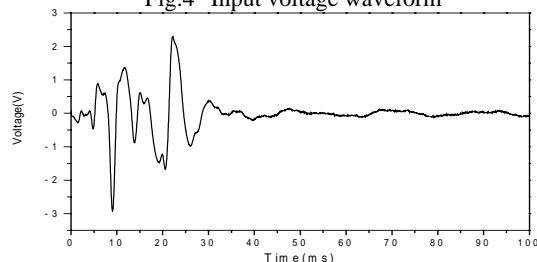


Fig.5 Output voltage waveform

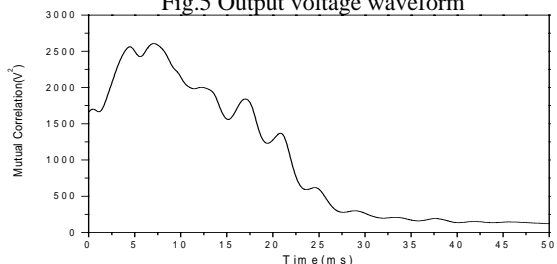


Fig.6 Result of Mutual correlation analysis

相互相関波形より反射波到達時間を特定するには、直接波によるピーク以降に存在するピークを探す。そのピーク発生時間が反射波到達時間となる。しかし、Fig.6 を見る限りではピークが多数存在しているためピークの特定ができない。どのピークが反射波を現しているのかを明瞭にするため、5種類の周波数帯の異なるダウンチャープ信号を入力波形として、同様の操作を行ったものと積をとった。この操作を行うことにより、他の出力波形にも共通して現れるピークを強調することができる。この操作を行い 10~20ms 付近を拡大したものを Fig.7 に示す。同様に SH 波を用いて得られた波形にもこの操作を施し、14~24ms 付近を拡大したものを Fig.8 に示す。ここで、どちらの波形からも反射波であろうピークが 3 点存在しているのがわ

かる。管 B、管 C で行った同様の実験結果を参照することによってこれらのピークはそれぞれ管 C、管 B、管 A からの反射波によるものであることがわかった。また予め測定した伝播速度を参照すると、P 波伝播速度が SH 波伝播速度より速いことから、ピーク発生時間が妥当であると考えられる。そして、2 つのジオフォンからの平均受振時間をピーク発生時間とした。

反射波受振時間と予め計測しておいた P 波伝播速度 143.7m/s、SH 波伝播速度 111.4m/s により、管 A,B,C の埋設深度は P 波では 119.3cm、106.5cm、72.3cm、SH 波では 122.2cm、101.5cm、78.4cm と推定でき、平均測定誤差は P 波では 3.97%、SH 波では 2.17%となった。これより P 波、SH 波のどちらを用いても良好な結果が得られることが確認できた。

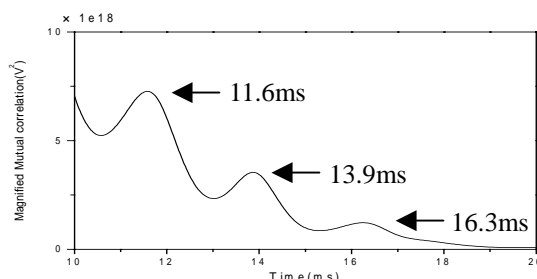


Fig.7 Magnified Mutual correlation waveform

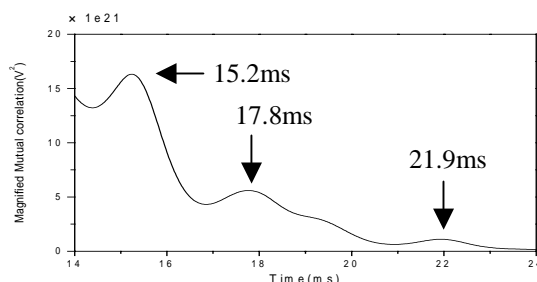


Fig.8 Magnified Mutual correlation waveform

### 4. 考察とまとめ

本研究の結果、超磁歪振動子を用いて弾性波を発生させ、地中約 120cm までは探査可能であることが明らかになった。この際、P 波、SH 波による精度の差は小さい。また、今回の実験は雨の降り続いた日の翌日に行った。地中レーダや電磁波探査法では精度に問題が生じる状態での実験であったが、弾性波探査法はこのような状態でも探査可能であった。

ただ一つ問題がある。今回の実験では反射波の干渉は起こらなかったが、実際の施工現場では干渉が生じる可能性があり、探査が困難になる。しかしながら、受振器を増やし地中内部状況の映像化を行うことでこの問題は解決可能であると<sup>2)</sup>考えられる。

### 参考文献

1. A.E.クラーク, 江田: 超磁歪材料, 日刊工業新聞社, pp.83-122, 1995
2. 杉本恒美: 埋蔵文化財探査用地中ソーナ, 日本音響学会誌, Vol.58, No.9, pp.605-610, 2002

## 超音波転石根入れ深さ探查における 複素ケプストラム解析の精度向上

### Accuracy improvement of complex cepstrum analysis for detecting penetration boulders using ultrasonic

鶴島守 (筑波大院・理工)、川村洋平、伊藤優、水谷孝一 (筑波大・シス情)、氏平増之 (北大・工)、  
倉岡千郎 (株 日本工営)、青島伸治 (筑波大・シス情工)  
Mamoru Tsurushima, Youhei Kawamura, Yu Ito and Koichi Mizutani (Univ. Tsukuba), Masuyuki Ujihira  
(Hokkaido Univ.), Senro Kuraoka (NIPPON KOEI CO.,LTD), Nobuharu Aoshima (Univ. Tsukuba)

#### 1. はじめに

著者等はこれまで、長さ 900mm のコンクリートブロックを用いて、超音波を用いた転石の根入れ深さ探查に関する基礎研究を行ってきた。これまでの研究で、圧電セラミックを用いて任意のダウンチャープ信号を入力し、直接波と反射波を分離して検出する手法を確立した。さらに、得られた出力波形が、直接波と反射波が混在した場合でもケプストラム解析を用いることで反射波が検出できることを確認した。このことから、今後寸法推定の対象が、寸法が既知ではないものになった場合でもケプストラム解析を用いることで寸法推定ができるめどが立った。しかしながら、ケプストラム解析はノイズの影響を受けやすく、明瞭に反射波を検出することはできなかった。本発表では、街灯基礎を対象とした実規模実験でノイズの影響を小さくするために平均応答法を用いて実験を行った結果を示す。実験では超音波の送受波ともに AE トランスデューサを用いた。実験の結果、平均応答法を用いることで反射波の検出が明瞭になることを確認した。

#### 2. 実験装置および実験方法

本実験で使用した送波用、受波用 AE トランスデューサはともに共振周波数が約 140kHz のものである。また AE トランスデューサの寸法は直径 10mm、高さ 40mm である。寸法探查の対象となった街灯基礎は縦、横 600mm、奥行き 1300mm である。本実験では奥行きに対して寸法推定実験を行った。Fig.1 に本実験の概念図を示す。探查対象となった街灯基礎は端部が土中に埋められており、これまでのコンクリートブロックを使用した基礎実験と比べ音響インピーダンスの差が小さくなり、入力された超音波の一部が透過し反射波が検出されない可能性もある。実験はまず AE トランスデューサを Pattern1 のように設置し供試体内部を伝播する超音波速度を計測した。供試体内部を伝播する超音波速度は約 3921.57m/s であ

った。次に Pattern2 のように AE トランスデューサを取り付けて反射波検出実験を行った。入力する信号には 150 ~ 140kHz のダウンチャープ信号を用いた。なお AE トランスデューサの取り付けにはエレクトロノックスを用いた。

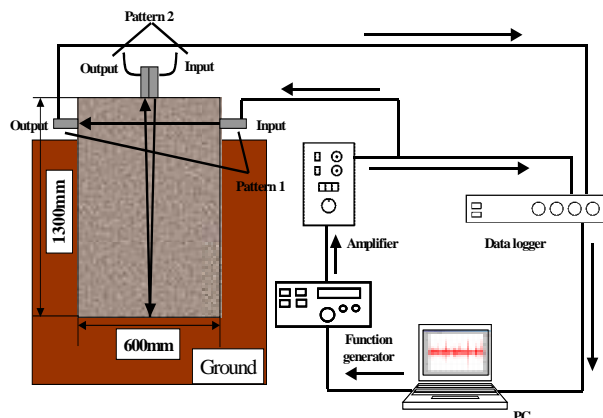


Fig.1 Schematic of experimental setup

#### 3. 実験結果

Fig.2 に送波用 AE トランスデューサに印加した電圧波形を、Fig.3 に受波用 AE トランスデューサから出力された電圧波形をそれぞれ示す。Fig.3 では直接波と反射波が混在していることが確認された。

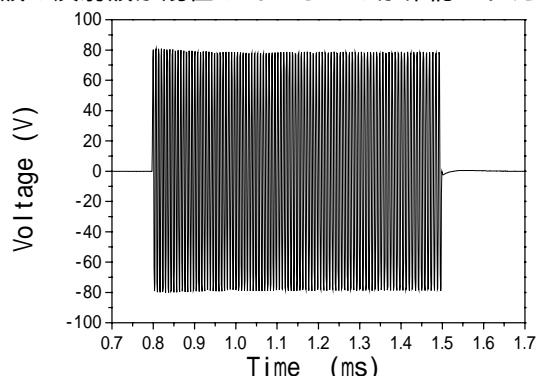


Fig.2 Input voltage waveform

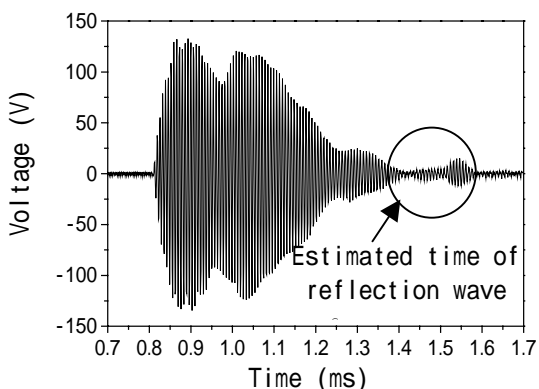


Fig.3 Output voltage waveform

#### 4. 解析結果

Fig.4 はケプストラム解析の流れを示したものである。Fig.5 に実験で得られた出力波形の1つをケプストラム解析した結果を示す。ケプストラム解析結果の横軸の時間は受波用 AE トランスデューサが直接波を受信した時間を 0ms としている。本実験ではパワーケプストラムを用いた。Fig.5 は反射波到達予定時間付近でピークが現れていることが確認できる。しかしながら、Fig.4 でも示したようにケプストラム解析は計算の途中で対数をとることから、ノイズの影響を受けやすい。本実験のように寸法が既知の場合は反射波の到達時間が予測できるのだが、今後は寸法が不明の転石などが寸法推定の対象となることを考慮すると、ピークが複数ある Fig.5 から寸法を推定すると探査精度が低下してしまう。

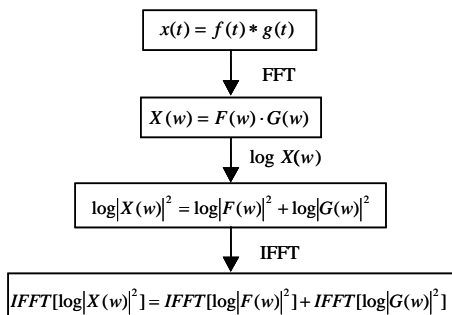


Fig.4 Flow diagram of cepstrum analysis

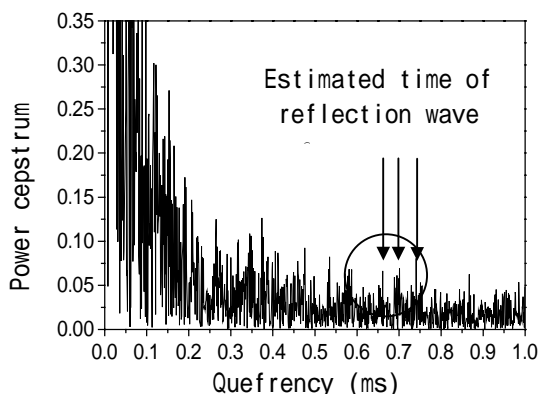


Fig.5 Result of power cepstrum analysis (General output waveform)

そこで、ノイズの影響を小さくするため平均応答法を用いて精度の向上を図った。

Fig.6 は実験で得られた 10 個の出力波形を平均化したものを示している。Fig.7 は平均応答法を用いた後にケプストラム解析を行った結果を示している。Fig.7 ではピークとノイズの差が大きく、Fig.5 に比べピークが明瞭になっていることが確認できた。またピークは 0.695ms であった。そこで街灯基礎内部を伝播する超音波速度と、ケプストラム解析の結果から得た反射波到達時間から街灯基礎の長さを推定すると、推定寸法は 1362.75mm となった。推定結果は妥当な結果であると思われる。

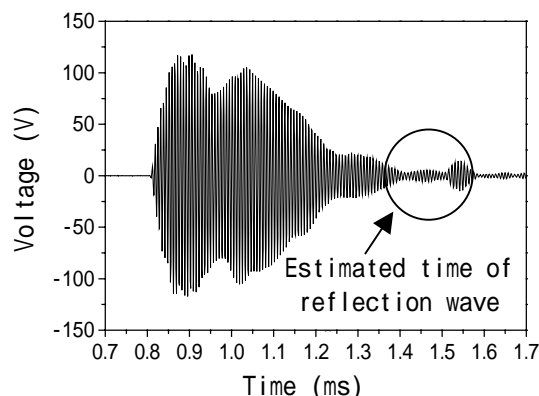


Fig.6 Equalized output waveform

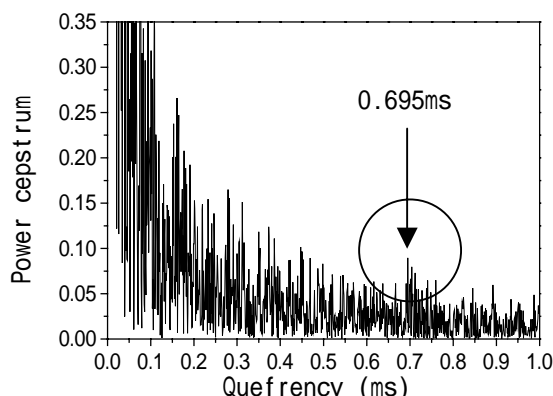


Fig.7 Result of power cepstrum analysis (Equalized output waveform)

#### 5. まとめ

本研究では、長さ 1300mm の街灯基礎で反射波の検出実験を行い、得られた波形にケプストラム解析を用いて寸法を推定した。実験で得られた出力波形の1つにケプストラム解析を用いた場合、ピークとノイズの区別がつきにくく、また、ピークが複数表れてしまう場合もあったが、平均応答法を用いることでノイズの影響を小さくし、ピークが明瞭になったことを確認した。

## MHz 帯空中超音波変換器を用いた 金属板中の Lamb 波の検出

Detection of Lamb waves in metal plate using air-coupled ultrasonic transducers in MHz range

渡邊雅也, 西平守正, 今野和彦 (秋田大 工学資源)

Masaya Watanabe, Morimasa Nishihira and Kazuhiko Imano  
(Fac. of Eng. and Resource Sci., Akita Univ.)

### 1. はじめに

薄板中を伝搬する板波の一種である Lamb 波は、減衰が少なく、板面に沿って長距離を伝搬するという特徴を持つため、金属や樹脂など薄板状に加工された材料の広面積の検査に積極的に応用されている。Lamb 波を用いた非破壊検査は、超音波変換器と材料との間にくさびを介する方法や水浸法が一般的であり、非接触、すなわち空気中ではほとんど行われていない。空気中では高インピーダンス不整合による送受波感度の低下や超音波の高減衰性などが問題となる<sup>1)</sup>ためであるが、近年、近距離計測用の MHz 帯空中超音波変換器が開発され、空気中においても高周波数の超音波を用いた種々の研究が行われはじめている<sup>1), 2), 3)</sup>。

本報告では、MHz 帯空中超音波変換器を用いて、金属板中への Lamb 波の励起とその検出を非接触で行った結果について報告する。

### 2. アルミニウムにおける分散曲線

Lamb 波は薄板の材質やその厚さ、超音波の周波数に依存して伝搬特性が大きく変化する。薄板の縦波および横波の音速が既知であれば、Rayleigh-Lamb 周波数方程式から位相速度の理論値が算出できる<sup>4)</sup>。

本報告では縦波と横波の音速(それぞれ  $c_L, c_T$ )が既知の材料として、アルミニウム( $c_L=6410$  m/s,  $c_T=3040$  m/s)を用いる<sup>4)</sup>。アルミニウムの場合、周波数  $f \times$  板厚  $d$  に対する位相速度  $c$  の分散曲線は Fig. 1(a)のようになる。また、スネル法則を変形した(1)式を用いて、Lamb 波を効率よく励起・検出するための臨界角  $\theta$  の分散曲線を、空気( $c_W=340$  m/s)に対して求めると同図(b)のようになる<sup>1)</sup>。

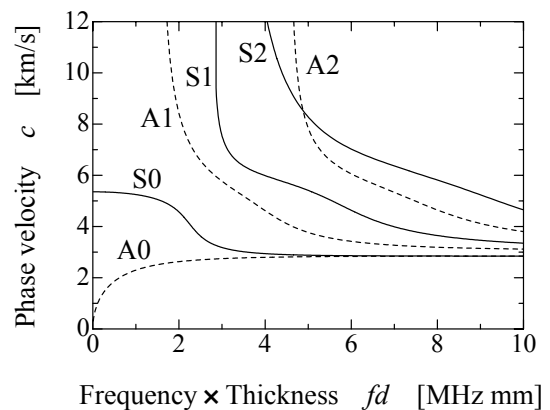
$$\theta = \sin^{-1}\left(\frac{c_W}{c}\right) \quad (1)$$

本報告では、薄板材料として一般的に用いられる厚さを考慮して、アルミニウムの厚さを 2 mm とし、Lamb 波の基本振動モードである S0 モードおよび A0 モードの励起・検出を試みる。そのた

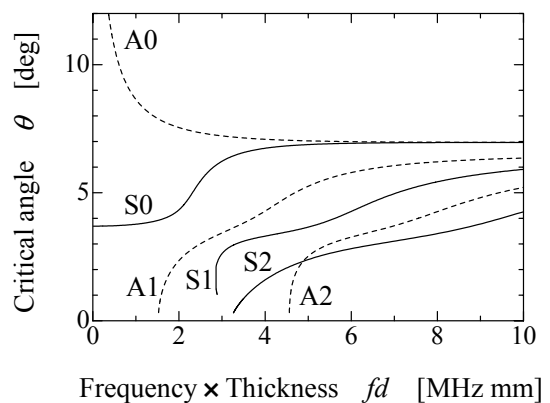
めの S0 モードおよび A0 モードの臨界角はそれぞれ  $5^\circ, 7^\circ$  となることが Fig. 1(b)から求められる。

### 3. Lamb 波の振動モード判別法

Lamb 波の振動モードを判別するための一手法として、2 次元フーリエ変換<sup>3)</sup>を用いる。超音波を薄板中に入射させ、その伝搬方向へ一定間隔の距離毎に時間波形を得た後に、これらの時間波形を空間(距離)軸と時間軸からなる平面に配置し、2 次元フーリエ変換することで波数  $k$  と周波数  $f$  の分布が得られる。この  $k-f$  分布に分散曲線を重ね合わせ、Lamb 波の振動モード判別に用いる。



(a) Phase Velocity



(b) Critical angle

Fig. 1 Dispersion curves for Aluminum

#### 4. 測定システム

測定システムを Fig. 2 に示す．発振器(Agilent 33250A)で周波数 1.2 MHz のバーストサイン 1 波を発振させ，高周波増幅器で 1.5 W に増幅，整合器を介して空中超音波変換器(Second Wave Systems NCT-510)に印加する．臨界角 $\theta$ (S0 5°, A0 7°)で送波された超音波はアルミニウム板中(厚さ 2 mm)に入射し，板中を伝搬した後，送波側と同特性の空中超音波変換器により臨界角 $\theta$ で受波される．受波された時間波形に増幅を行いオシロスコープ(Agilent 54845A)で数値化し，PC へ転送する．なお時間波形の測定は，伝搬距離 100-200 mm の間を 0.5 mm 間隔で 200 点行った．

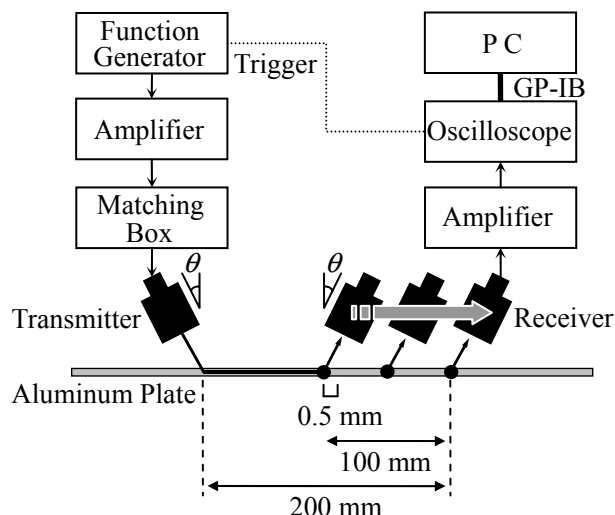


Fig. 2 Measurement system

#### 5. 結果と考察

測定した時間波形から算出した  $k-f$  分布の上に，波数  $k$  に対する周波数  $f$  に変換した Fig. 1(a) の分散曲線を重ね合わせた結果を Fig. 3 に示す．

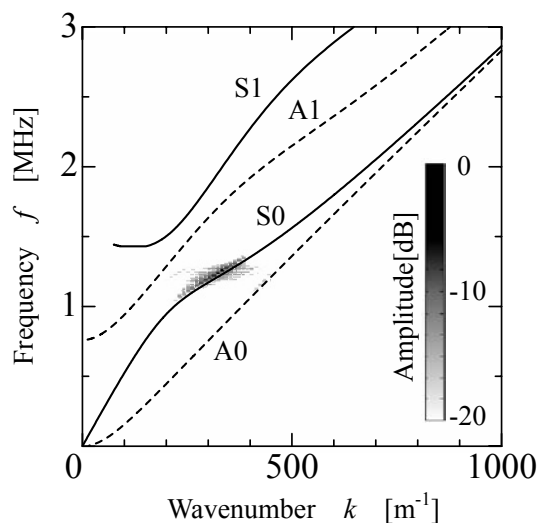
本報告では， $fd \approx 2.4$  となる領域において S0 モード，A0 モードの励起と検出を行った．両振動モードとも  $k-f$  分布中の強度の強い部分と分散曲線はほぼ一致した．しかし，Fig. 3(a), (b) の両分布では確認しにくい，S0 と A0 の各振動モードの重複が認められた．これは両振動モードの臨界角 $\theta$ が近接していることが原因と考えられる．振動モードの重複は， $k-f$  分布や分散曲線の傾きから区別することが可能であるが，重複した振動モードが所望振動モードに対して無視することのできない強度を持つ場合は，各振動モードを分離する方法を検討する必要がある．本報告では，設定した振動モードの強度に対して重複した他の振動モードの強度は約 -18 dB と小さな値となっており，非接触で単一モードの Lamb 波を励起，検出することができた．縦波および横波の音速を予め知ることができる材料であれば，アルミニウムと同様に単一モードの Lamb 波の励起と検出ができる可能性があると考えられる．

#### 6. まとめ

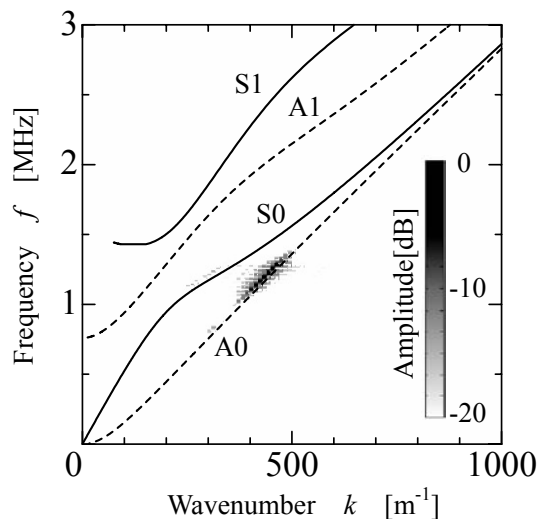
MHz 帯空中超音波変換器を用いてアルミニウム板中において S0 モードと A0 モードの Lamb 波の励起とその検出を行った．今後は，アルミニウム以外の材料についての Lamb 波の励起と検出の検討や，本報告を基礎として，Lamb 波を用いた応用についても検討する予定である．

#### 引用文献

- 1) 林 高弘 他：非破壊検査, 50 (2001)108.
- 2) K.Sasaki *et al* : Jpn.J.Appl.Phys. 44(2005)4411.
- 3) Stephen D.Holland *et al* : Ultrasonics, 42(2004)957.
- 4) 超音波便覧編集委員会：超音波便覧，丸善,(1999)63-65,724.



(a) S0 mode



(b) A0 mode

Fig. 3  $k-f$  image

# 超音波反射率スペクトロスコピーによる Bi/Ag コーティングの膜厚評価の検討

## Thickness Evaluation of Bi/Ag Coatings by Ultrasonic Reflection Spectroscopy

©松山貴佳、井原郁夫（長岡技術科学大学工学部）

Takayoshi Matsuyama and Ikuo Ihara (Nagaoka University of Technology)

### 1. 緒言

コーティング材料は工業、工学の幅広い分野で利用されている。その高機能化にともない多層コーティングも多用されている。コーティング膜の膜厚はその機能、強度に強く関連するため、成膜プロセスにおいてその正確な把握が要求される。非破壊的に膜厚を計測する手法としては蛍光X線や超音波を用いた方法がある。超音波を用いてミクロンオーダーのコーティング膜を評価するには、比較的高い周波数を用いた高精度な計測が要求される。弾性表面波の分散特性を利用した多層膜厚同定手法も提案されているが<sup>(1)</sup>、実用的見地からはさらに簡便な手法が望まれる。表面膜構造を有する材料の膜厚を比較的簡便に測定する手法として、超音波反射率スペクトルの利用が提案されている<sup>(2)</sup>。著者らはこの超音波反射率スペクトル法をCu合金上に成膜された2層コーティングBi(上層)/Ag(下層)に適用し、Bi膜厚評価の可能性について検討した<sup>(3)</sup>。本研究ではBi膜厚の異なる数種類のコーティング材に対して反射率スペクトル法を適用し、その実用性について検討した。本手法はメッキのような液層プロセスにおける膜厚モニタリングへの効果的な適用が期待される。

### 2. 膜厚同定原理

コーティング材の超音波反射率は入射角および周波数によって変化する。反射率の強度はある条件下で局所的な低下を示し、その極小位置はコーティング薄膜の膜厚に強く依存する<sup>(2)</sup>。このような反射率強度の挙動は多層コーティング材においても現れる。したがって、ある入射角における強度の極小位置(極小周波数)  $f_D$  を指標とすることで多層コーティング材の膜厚を評価することができると考えられる<sup>(3)</sup>。

Fig.1 は2層コーティング材 (Bi(上層)/Ag(下層)/Cu合金(基板)) を対象として、入射角 $\theta=30^\circ$  における  $f_D$  とBi膜厚  $d_{Bi}$  の関係を調べ、これをAg膜厚  $d_{Ag}$  で規格化した結果である。ここで、各材料のバルク材に対する物性値を計算に用いた。一般に極小周波数とBi膜厚の関係はAg膜厚の値によって変化するが、Fig.1のように縦座標と横座標をAg膜厚で無次元化する

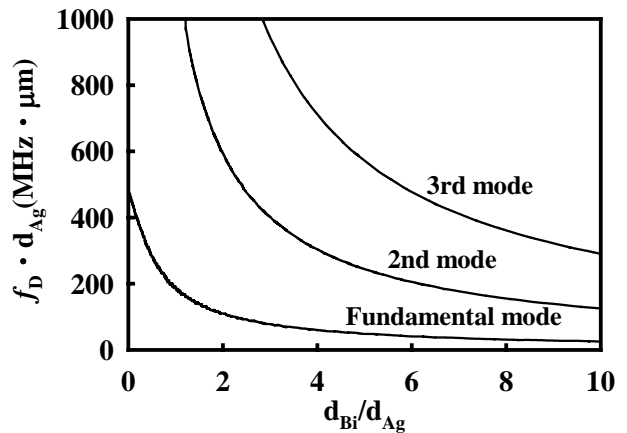


Fig.1 Normalized relationship between the dip frequency  $f_D$  and the Bi layer thickness for Bi/Ag coating on Cu alloy ( $\theta=30^\circ$ deg).

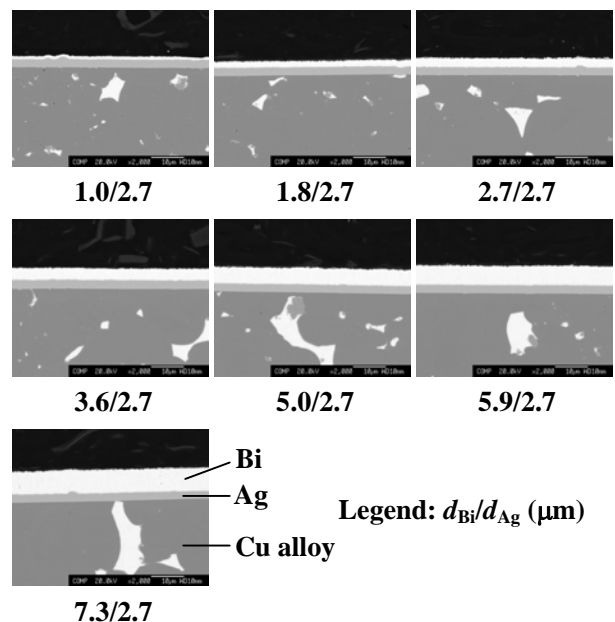


Fig.2 Two layered coatings used (Bi/Ag on Cu alloy).

ことで、モード毎の曲線で表すことができる。Ag膜厚が既知の場合、これらの曲線を利用することで、測定した  $f_D$  からBi膜厚を推定することができる。

ihara@mech.nagaokaut.ac.jp

### 3. 実験

Fig.2は実験に用いた7種類の2層コーティング試験片の断面写真を示す。銅合金基板上にBi膜(上層)およびAg膜(下層)がメッキされており、Bi膜厚は約1~7 $\mu\text{m}$ の範囲で異なるものを用意した。Ag膜厚は全て2.7 $\mu\text{m}$ である。

反射率の測定には Fig.3 に示す超音波スペクトラム顕微鏡を用いた。反射率は超音波発信用の平面レンズと受信用の球面レンズから成る一対のレンズ系を用いて、試料面上にパルス波を照射することにより測定される。このレンズ構成によりパルス波の送受信における高い空間分解能と角度分解能が得られる。

測定結果の一例としてBi(5.9 $\mu\text{m}$ )/Ag(2.7 $\mu\text{m}$ )の試験片からの反射率強度をFig.4に示す。周波数20MHzから40MHzの領域で強度の低下が現れており、 $f_b$ が明瞭に観察される。この周波数帯域ではFundamental modeが観察されている。この結果より入射角 $30^\circ$ において $f_b$ の値は31.3MHzであった。ここでは特別な根拠はないが、便宜上、入射角を $30^\circ$ と固定し、他の試験片についても同様の反射率の測定を行い、それぞれの $f_b$ を求めた。そのようにして得られた $f_b$ をFig.1に適用することでBi膜厚を同定した。その結果をFig.5に示す。この図は $f_b$ による同定結果とSEM観察による値とを比較したものである。両者はほぼ比例関係にあるものの同定値は全体的にSEM測定値よりも大きくなっている。この原因は、(1)参照図となるFig.1の計算に用いた材料物性値が必ずしも実験に用いた材料の物性値を反映していない、(2)測定装置のアラインメント誤差、(3)Ag膜厚の不確かさ、などが考えられる。今後はそれらを改善するとともに、高次モードを利用することで同定精度の向上をはかりたい。

### 4. 結言

2層コーティング材 (Bi/Ag/Cu alloy) に超音波反射率スペクトロスコーピー法を適用し、Bi膜厚の同定を試みた。Bi膜厚の異なる7種類の試験片 (Bi=1~7mm) を用いて実験を行った結果、Fundamental modeの $f_b$ を用いて、最大誤差1.6 $\mu\text{m}$ 程度で膜厚を同定することができた。

### 謝辞

本研究に協力いただいた大同メタル工業(株)の川地利明氏に感謝する。

### 参考文献

- 井原郁夫、他：非破壊検査、**46-3**(1997) 281.
- Y. Tsukahara, N. Nakaso, J. Kushibiki and N. Chubachi : IEEE Transactions on ultrasonics, ferroelectrics and frequency control, **36-3**(1989) 326.
- 松山貴佳、井原郁夫：第12回超音波による非破壊評価シンポジウム講演論文集 (2004) 65.

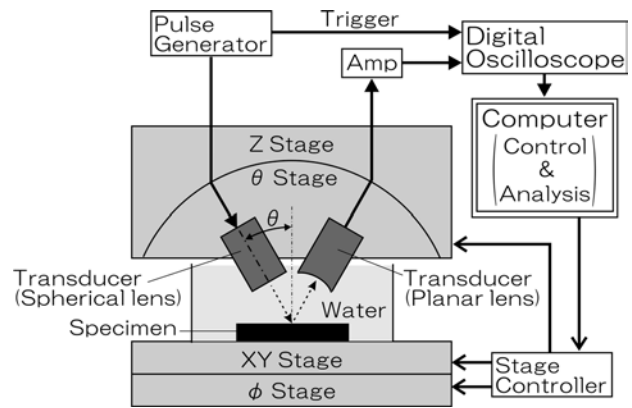


Fig.3 Schematic diagram of an ultrasonic spectrometer used.

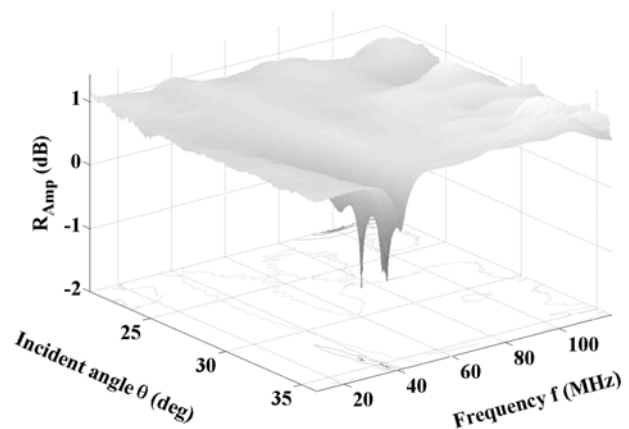


Fig.4 Frequency dependence of the amplitude of the reflection coefficient measured at the interface of water-Bi(5.9 $\mu\text{m}$ )/Ag(2.7 $\mu\text{m}$ )/Cu alloy, as a function of the incident angle.

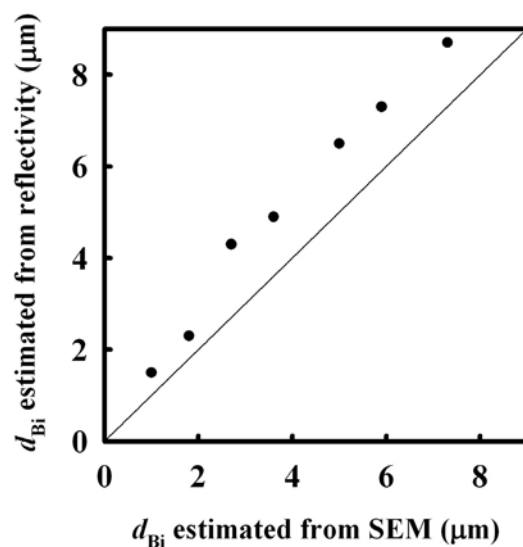


Fig.5 Relationship between the Bi thicknesses estimated by ultrasonic reflectivity measurement and observed using SEM.

# Lamb 波を用いたコンビナートにおける 超音波鋼管検査に関する基礎研究

## Fundamental Study on Ultrasonic Inspection of Steel Pipe in Complex using Lamb Wave

川村洋平 (筑波大・シス情) 野呂浩介、河宜成 (筑波大・工シス)  
水谷孝一、青島伸治 (筑波大・シス情)

Youhei Kawamura(Univ. of Tsukuba), Kosuke Noro, Takanari Ko(Univ. of Tsukuba),  
Koichi Mizutani, Nobuharu Aoshima(Univ. of Tsukuba)

### 1. はじめに

石油コンビナートにおける原油などの流体輸送では、鋼管が重要な役割を担っている。それら鋼管が損傷を起こすと、石油精製のシステムとして機能しなくなるばかりではなく、原油や石油により外部環境に重大な影響を及ぼしてしまう。そのため鋼管の損傷・劣化状態を知ることが重要であり、それにより補修や交換などの適切な対策を行うことができる。石油コンビナートという巨大な施設においては、鋼管を効率よく、かつ精度の高い探傷を行う必要がある。

本稿では、コンビナートで用いられ、断熱材が巻かれている鋼管を研究対象とし、それらの探傷を行うことを目的とする。断熱材が巻かれている鋼管においては、探傷を行うさいの超音波の入力において、制約条件となってしまう。そのため、その制約条件を解決するため、本研究では断熱材を貫通させたガイドにより、輸送管に超音波を点入力することを考える (Fig.1 参照)。また測定原理として、鋼管を伝播する超音波を、薄板を伝播する超音波として考えることで探傷を行うこととする (Fig.2 参照)。

本稿では、基礎研究としてとして、鋼管を伝播する超音波と薄板を伝播する Lamb 波の関係について考察した。そのために、鋼管に超音波を入力したときの速度分散曲線を示し、Lamb 波の速度分散曲線と比較する。それにより、鋼管を伝播する超音波を、薄板を伝播する Lamb 波と等価として考えることができるかを示す。

### 2. 測定原理と目的

本研究の対象とする断熱材が巻かれている鋼管と、著者等が想定する探傷測定装置概念を Fig.1 に示す。鋼管は内側に輸送管があり、次に断熱材が巻かれ、外側に断熱材を保護するためのジャケット管がある。探傷測定装置概念では、まず、ジャケット管と断熱材を貫通させた細いガイドを用いて送信用 AE トランスデューサから超音波を点入力し、伝播してきた超音波をガイドを用いて受信用 AE トランスデューサにより受信する。

次に、測定原理を Fig.2 に示す。Fig.2 では鋼管を破線で切り開いて平板として考えている。送信用 AE トランスデューサから点入力した超音波が、図のように円周方向に回り込み受信用 AE トランスデューサへ伝播する。回り込みを考えることで、管を無限平板として見立て、超音波の伝播経路での探傷を行う。

この方法によって、先に述べた断熱材による制約条件を解決し、石油コンビナートに用いられている鋼管の探傷を行うことを目的とする。

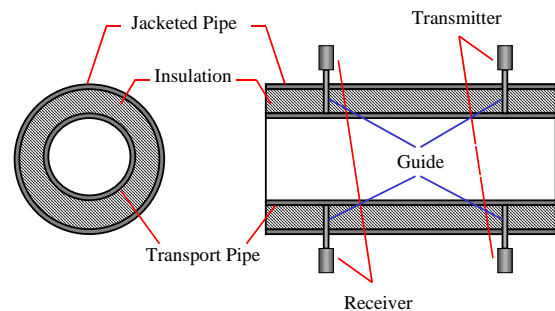


Fig.1 Object steel pipe and inspection device concept

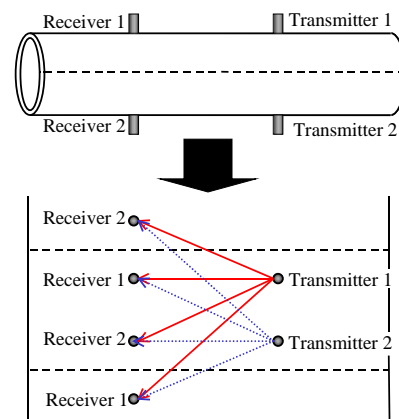


Fig.2 Inspection principle

### 3. 実験方法

本実験は外径 49.1mm、厚さ 3.1mm、長さ 1.9m の繫目溶接を持つ鋼管を用いた。Fig.3 に実験装置の概念を示す。端部での反射波による影響を避けるため、中央付近で送信用と受信用 AE トランスデューサを 200mm と 300mm 離して管軸に対称に 2 個ずつ計 4 個取り付け付けた。ファンクションジェネレータで作成した電圧波形をアンプにより増幅させ、送信用 AE トランスデューサにより、管軸に対して変位が非対称な F(1,1) モードを発生させた。周波数は 2kHz から 250kHz まで変化させた。また、データロガにより、受信用 AE トランスデューサで受信した超音波を取り込み、PC で解析を行った。PC では、入力波形と受信波形との相互相関分析を用いて、超音波の波群の立ち上がり時間を調べ、速度を求めた。

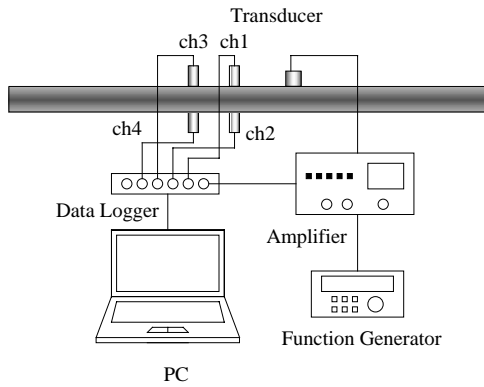


Fig.3 Experiment device concept

#### 4. 解析結果

Fig.4 に ch1 における 100kHz の相互相関結果を示す。相互相関分析では、伝播してきたと思われるピークを最初から3つ目まで読み取った。Fig.5、Fig.6、Fig.7、Fig.8 にそれぞれ Ch3 での相互相関分析での1つ目のピーク、2つ目のピーク、Ch4 での1つ目のピーク、2つ目のピークによる伝播速度を求めたものを示す。横軸は、周波数  $f$  (MHz) と鋼管の厚さ  $d$  (mm) の積、縦軸は速度 (m/s) である。

は、同様の機器を用いて測定した板厚 3.1mm の Lamb 波  $A_0$  モードの実験値である。

Fig.5、Fig.7 見ると、Ch3、Ch4 における最短距離で伝播してきた超音波の伝播速度は、概ね Lamb 波の伝播速度と一致している。fd が小さい領域では、分散性が大きく、fd が大きい領域では分散性が小さい。

また Fig.7、Fig.8 における円周方向をさらに一周した伝播速度は、Lamb 波実験値より全領域において、伝播速度が遅い値が得られた。fd が小さい領域での速度分散性が大きい部分においても、なだらかに変化している。しかしながら、fd が大きい領域では、Fig.4、Fig.6 同様に周波数による速度分散性がなくなり、伝播速度が一定になっている。3 回目のピークにより求めた伝播速度も Fig.5、Fig.7 同様に Lamb 波実験値より遅い値が得られた。これらは、鋼管に繋目溶接があるためであると考えられる。よって、実際の鋼管における超音波の伝播経路において、探傷を行えると思われる。

#### 5. まとめ

本稿では、鋼管を伝播する超音波について薄板での Lamb 波との関係を比較した。その結果、鋼管での F(1,1) モードと Lamb 波  $A_0$  モードに類似性があり、鋼管を伝播する超音波を、薄板を伝播する Lamb 波と等価として考えることができるという結果が得られた。また伝播経路の回り込みを考えることで、鋼管全体における探傷を行える可能性を示した。

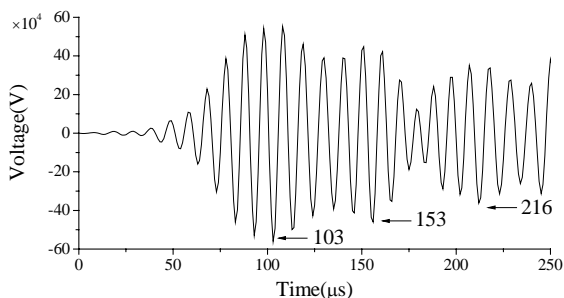


Fig.4 Ch1 100kHz cross-correlation

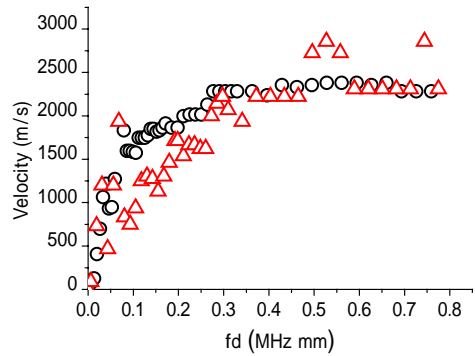


Fig.5 Ch3 first peak phase velocity

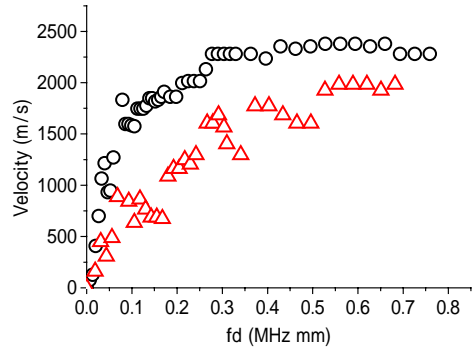


Fig.6 Ch3 second peak phase velocity

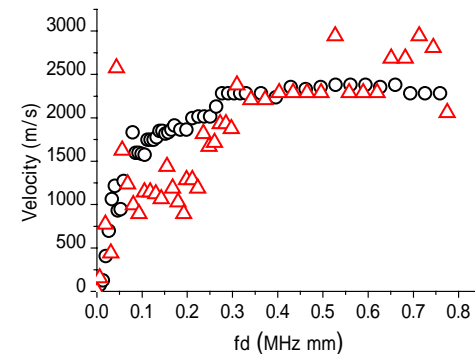


Fig.7 Ch4 first peak phase velocity

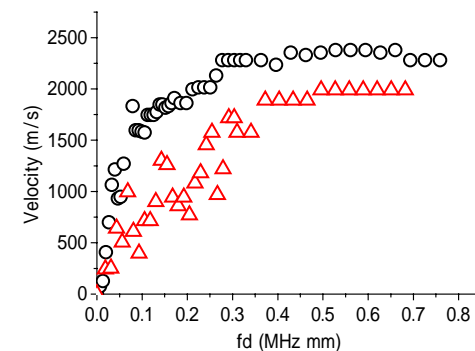


Fig.8 Ch4 second peak phase velocity

#### 参考文献

1. 佐藤泰夫：弾性波動論，岩波書店，1978
2. Hideo NISHINO, Sunao TAKASHIMA, Fukutoshi UCHIDA, Mikio TAKEMOTO and Kanji ONO: Jpn. J. Appl. Phys. 40, pp364-370, 2001

## ガイド波を用いた長大配管内の損傷画像化 Defect imaging for a large pipe using guided waves

◎林 高弘、長尾将弘、村瀬守正 (名古屋工業大学)  
Takahiro Hayashi, Masahiro Nagao and Morimasa Murase (Nagoya Inst. Tech.)

### 1. はじめに

ガイド波は、平板や配管、鉄道レールのような棒状材料中を長手方向に伝播する超音波モードである。近年、このガイド波は適切に用いると材料中を長距離伝播するため、配管のスクリーニング技術として用いられるようになってきた。

配管中を伝播するガイド波には様々な変位分布を持つモードが存在するが、中でも配管中心軸に対して対称な変位分布を持つモードは分散性が小さく、励起、受信が容易である。このことから、主に対称モードのエコー波形を用いて、配管内にある損傷や溶接線などの反射源の長手方向位置を同定してきた。しかし、軸対称モードは円周方向一様な変位分布で、反射源の円周方向分布などが変化しても、軸対称モードの波形は変化しない。つまり、軸対称モードを用いて円周方向の情報を得ることはできないのである。そこで近年では、非軸対称モードも補足的に利用することによって、損傷評価を行っている。たとえば、溶接線は軸対称に分布しているので、そこからの反射エコーは軸対称モードが大きい。また損傷は、局在しているので、損傷からのエコーには非軸対称モードが多く含まれる。しかし、この手法において非軸対称モードが多く含まれるかどうかという判断は検査装置内のソフトウェアに依存し、検査者が自分で判断するのは非常に難しい。

著者らは、軸対称モードおよび非軸対称モードを適切に処理することによって、反射源の画像を得るという手法を開発している。本研究ではそのガイド波を用いた損傷画像化手法を簡単に説明し、限られた距離の配管中を多重反射する波形から得た画像を用いて、長距離検査の可能性を検討する。

### 2. ガイド波を用いた損傷画像化技術

開発した損傷画像化技術は、分散性のない軸対称ねじりモード (T(0,1)モード) を評価領域に入射し、損傷などからのエコーを円周方向に等間隔で並べた多数のセンサーによって受信し、その複数のエコー波形を処理することによって反射源の画像を得るものである。

多数のセンサーによって得られた波形は文献1の手法に従ってモードごとに分離される。それぞれのモードは異なる音速を持ち、それは分散曲線として理論的に得ることができる<sup>2,3</sup>。それゆえ、モードごとに分離された波形から、理論分散曲線データを用いて任意時刻、任意位置におけるそれぞれのモードの振幅を求めることができる。それら各モードの波形を重ね合わせることによって、各時刻におけるガイド波の空間波形を推測することができる<sup>?)</sup>。入射波が、損傷などの反射源に達した時刻における推測波形は、反射源において非常に大きな振幅強度を示すので、この時刻における空間波形が損傷画像となる。実際には、ある時刻に入射波が到達している空間は、入射波速度から分かっており、その位置における反射波強度を追跡することによって、損傷画像が得られる<sup>4</sup>。

### 3. 実験結果

図1に本研究で用いた配管と損傷やセンサー位置を示す。直径110mm、長さ4mのアルミニウムパイプの一端から0.5mの位置に直径10mmのドリル穴を開けた試験片を用いた。T(0,1)モードの入射には磁わい型センサーを用い、2列並べて片側に時間遅れを与えることによって図1の右方向へ波形が増幅するように入射した。磁わい型センサーはニッケル薄板を配管に接着し、ニッケル薄板の磁わい現象を利用することにより振動を入射・受信するものである。発信は円周方向で同位相の振動(80kHz)を全体に負荷する必要があるため、ニッケル薄板の回りにコイルを巻いたものを用いた。受信

は、局所的な振動を取得する必要があるので、ニッケル薄板を配管に巻きつけ、その上にEMATタイプのコイルを置くことにより円周方向の8点で受信した。

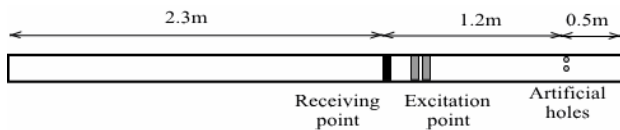


Fig. 1 Test pipe and location of sensors and defects..

図2には8点で受信された波形を示す。図中の記号 $H_1$ ,  $RW_1$ などは図3で示した位置からの反射波を表している。図3は(a)入射波が右へ進行して、人工穴およびパイプ右端面からエコーが返ってくる場合、(b)入射波が左へ進行してパイプ左端面からエコーが返ってくる場合、(c)入射波が右へ進行して損傷および右端面で反射したエコーが左端面まで達してから返ってくる場合、それぞれのセンサー位置と反射源の関係を示す。 $H$ は穴からの反射波、 $RW$ は右端面からの反射波、 $LW$ は左端面からの反射波で、下付添え字1は直接反射であり、2は壁面で反射が1回あることを示す。また図3中の数字は受信位置からの距離を示す。人工穴からのエコーは、配管端面によるエコーに比べて非常に小さく、直接反射波 $H_1$ しか反射波として認められない(図2では非常に小さいが、拡大すると確認できる)。

そこで、 $H_1$ の部分の波形にゲートをかけて画像化したところ図4(a)のような結果を得た。図4では受信点から1.2mの距離の $0^\circ$ と $90^\circ$ の位置に反射源があることを示し、これは人工穴の位置に非常によく一致している。次にゲートを $LW_1$ にかけ、図3(b)の配置を考慮して画像化した場合が(b)である。ちょうど受信センサーから距離2.3mの位置に端面を示す帯上の像が得られた。この像は2本あるように見えるが、これは入射波の増幅が右向きに進行するよう設定されているのに対し、このエコーは左に進行した入射波により得られたものであるためである。(c)は $H_2$ と $RW_2$ にゲートをかけ、図3(c)の配置を考慮した場合の像である。一回反射した後の人工穴からの反射波 $H_2$ はほとんど得られず、それに伴う損傷画像も図4(c)では見られない。これは長距離伝播に伴う画像の劣化である。一方、端面からのエコーは大きく得られるので、設定条件に合う距離6.3mの位置に帯状の反射源を示す像が得られた。

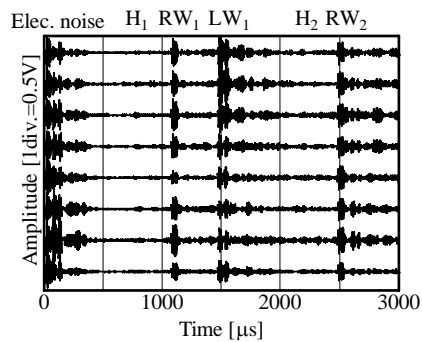


Fig.2 Waveforms detected at eight circumferential positions.

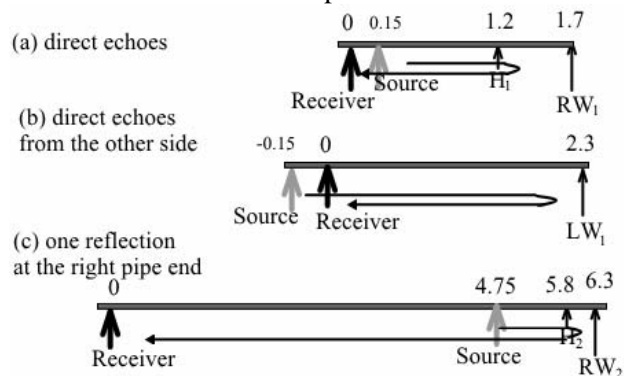


Fig.3 Distances from the receiving point

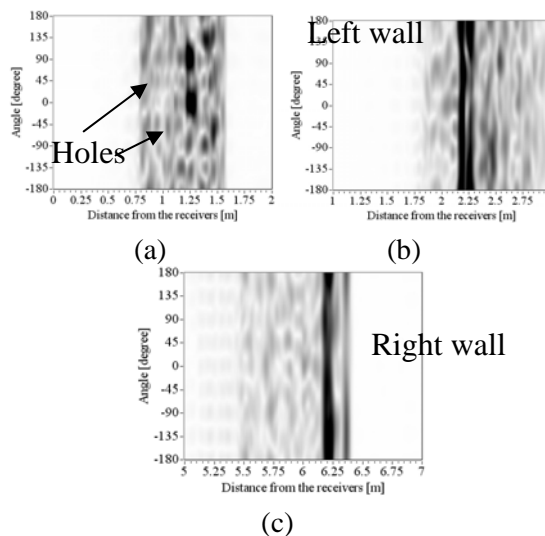


Fig.4 Images of reflective objects.

### 謝辞

本研究は平成15年度産業技術研究助成事業により行われた。

### 引用文献

1. 林他：非破壊検査, 53 (4), (2004) 223
2. D.C. Gazis, J. Acoust. Soc. Am. 31 (5), (1959) 568
3. 玉山他, 非破壊検査協会平成16年秋季大会講演概要集 (2004) 155
4. T. Hayashi et.al., J. Acoust. Soc. Am. 117 (4) (2005) 2134.

# 改良型パルス圧縮処理によるガイド波信号の高分解能化

Improving resolution of guided wave signals with modified pulse-compressing process

間山清和(広島県西部工技セ)、林 高弘、神谷庄司(名工大)

Kiyokazu Toiyama(Hiroshima Pref. Inst. Tech) , Takahiro Hayashi and Shoji Kamiya (Nagoya Inst. Tech.)

## 1. 緒言

プラントの高経年化を背景にガイド波を用いた配管の高速検査技術が広く注目されている<sup>(1)</sup>。筆者らは、分散性のないT(0,1)モードを用いたガイド波技術にリニア FM 波パルス圧縮手法の適用を試み、分解能を維持しながら SN 比の向上を図ることでより広範囲の配管検査の実現を目指してきた。ところが従前のパルス圧縮手法には、アンプ・センサ等装置の影響を受け出力波形の分解能が悪化するという問題があり、装置の非線形性が、パルス圧縮波形に左右非対称なサイドローブを発生させることを報告した<sup>(2)</sup>。本研究では装置の伝達関数に着目し、伝達関数の影響を考慮した改良型パルス圧縮処理手法を考案し、より分解能の高い出力信号を得る事ができたので報告する。

## 2. 従来のパルス圧縮と伝達関数の影響

従来のパルス圧縮手法では、リニアFM波を送信し、その受信信号と参照信号との相互相関処理によりパルス圧縮信号を得る。参照波形には送信信号を用いることが多く、受信信号と送信信号が相似と仮定すると、パルス圧縮波形は送信信号の自己相関関数となる。しかし実際はアンプやセンサ等の装置伝達関数の効果が受信信号中に畳み込まれるため、パルス圧縮波形  $c(t)$  もその影響を受けて変形する。

$$c(t) = F^{-1}[C(\omega)] = F^{-1}[R(\omega) \cdot Ref(\omega)^*] \\ = F^{-1}[F(\omega)T(\omega) \cdot F(\omega)^*]$$

記号\* は複素共役、 $F^{-1}[\ ]$ はフーリエ逆変換を示している。 $F(\omega)$ 、 $R(\omega)$ 、 $Ref(\omega)$ 、 $C(\omega)$ 、 $T(\omega)$ はそれぞれ、送信信号、受信信号、参照信号、パルス圧縮信号、装置伝達関数の周波数領域表示、 $c(t)$ はパルス圧縮信号の時間領域表示である。

Fig.1 には、(a)ハニング窓付き FM チャープ信号の自己相関関数と、(b)同じ FM チャープ信号で励振し、装置の伝達関数の影響を受けた典型的なパルス圧縮波形を、同じ時間スケールで表示している。図のように実際のパルス圧縮出力は左右軸対称でなくな

り、また全体的に分解能が低下する傾向にある。

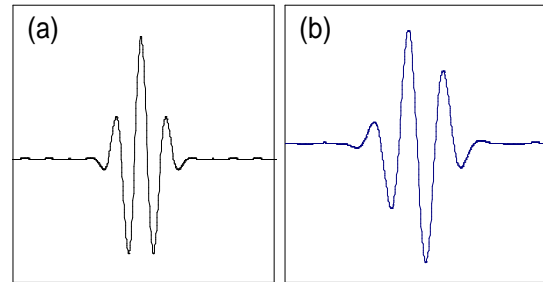


Fig.1 Pulse compressed waveform (a) autocorrelation of Hanning-windowed FM chirp, (b) typical pulse compressed signal influenced by a transfer function

## 3. 伝達関数を考慮したパルス圧縮手法の改良

そこで、理想的なパルス圧縮波形  $C(\omega)$  を予め想定しておき、主として参照信号を装置伝達関数に合わせて最適化するように、パルス圧縮処理を以下のように改良する。

理想のパルス圧縮形状  $C(\omega)$  を、伝達関数  $T(\omega)$  の制約条件の下で決める。

参照波形  $Ref(\omega)$  を次のように決める

$$Ref(\omega) = \{ C(\omega) / F(\omega) T(\omega) \}^*$$

送信信号にはなるべく広帯域の信号を用いる

つまり以下のように定式化できる。

$$c(t) = F^{-1}[R(\omega) \cdot Ref(\omega)^*] \\ = F^{-1}[F(\omega)T(\omega) \cdot \{C(\omega) / F(\omega) T(\omega)\}]$$

### 3-1 伝達関数とパルス圧縮波形の選択

筆者らが用いている磁歪式ガイド波装置の伝達関数(振幅特性)を Fig. 2 に示す。DC 近傍はゼロに落ち込み、かつ高周波側もゼロに漸近する特性となっている。このため理想のパルス圧縮形状  $C(\omega)$  は、帯域の両端でゼロに漸近することが必要であり、この条件を満たす関数として、カイザー窓関数を用いる。カイザー窓関数  $W(\omega)$ :  $0 \leq \omega \leq \omega_m$  は次のように定義される。 $I_0(\cdot)$  は第 1 種 0 次変形ベッセル関数である。

$$W(\omega) = \frac{I_0 \left( \sqrt{1 - \left( \frac{\omega}{\omega_m} \right)^2} \right)}{I_0(1)}$$

パラメータはフーリエ変換後波形のメインローブ幅とサイドローブ高さの状態を決定する。が小さいとメインローブ幅は狭く、サイドローブは高くなる。つまりパルス圧縮信号が高分解能・低 SN 比となる。逆に大きいと低分解能・高 SN 比となる。

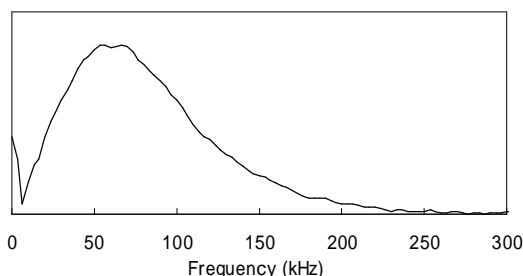


Fig. 2 Transfer function of devices for guided wave inspection

### 3-2 実験結果

Fig.3 に示す配管試験片に対し、従来型及び改良型パルス圧縮実験を行った。欠陥エコー形状の観察および溶接線近傍欠陥等の検出性を評価する目的で、管端から 250mm、50mm の位置にそれぞれスリット欠陥を設けている。どちらの場合も励振波形の周波数帯域は DC ~ 160kHz、励振時間 150  $\mu$  sec であり、従来型では Hanning 時間窓つきリニア FM チャープ信号を励振した。改良型の場合は、漸減余弦時間窓(窓の最初と最後 10%のみ部分的に Hanning 窓を適用する)をかけたリニア FM チャープ波を励振信号に用いた。またカイザー窓としては、分解能優先タイプ ( $\alpha = 3$ ) から、SN 比優先タイプ ( $\alpha = 10$ ) およびその中間 ( $\alpha = 6$ ) の 3 種類を設定した。

Fig.4 に各方式によるパルス圧縮波形の結果を示す。(a) 従来型のパルス圧縮波形では、管端近傍の欠陥エコーが明瞭には識別できない。(b) 改良型(分解能優先)は(a) 従来型に比べて多少 SN 比が悪化しているものの、パルス形状の左右非軸対称性が解消し、明らかに分解能が向上し、管端近傍の欠陥エコーが明瞭に識別できる。(d) 改良型(SN 比優先)においては、従来型(a)と同等程度の分解能で管端近傍の欠陥エコーを識別しづらくなっているが、(b)に比べて SN 比が高くなっている。(c) 改良型(中間タイプ)は(b)と(d)の中間的存在であり、SN 比と分解能のバランスが上手く取れている。(b)~(d)は同じ受信信号データに対し、その後の処理方法を変えて得られるものであり、SN 比優先 / 分解能優先の程度をユーザーが任意に選んで、結果を取り出すことが出来るのである。

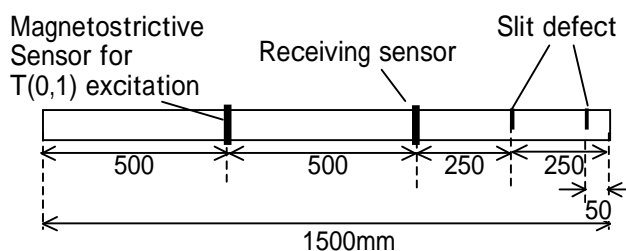


Fig.3 Arrangement of a test piece and sensors used for the experiment.

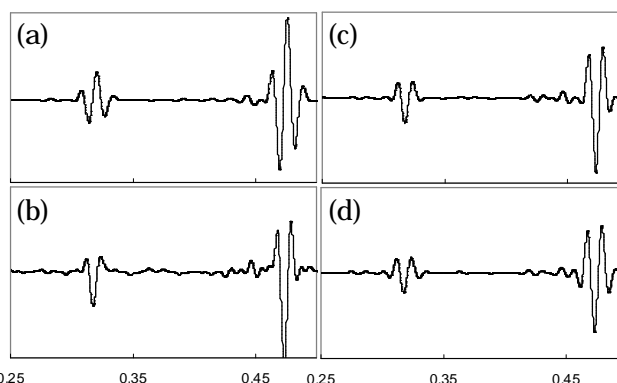


Fig.4 Comparison of several pulse compressed waveform. (a) Conventional way and (b)-(d) proposed way, (b):  $\alpha = 3$ , (c):  $\alpha = 6$ , (d):  $\alpha = 10$

### 4. まとめ

ガイド波を用いた配管検査技術に対し、装置の伝達関数により信号形状が変形する影響を考慮した、改良型パルス圧縮処理手法を考案した。

相関処理に用いる最適な参照信号を求める際に、装置伝達関数の制約条件を満たすカイザー窓関数を用いることとした。

改良型パルス圧縮手法は、Hanning FM チャープ信号を用いる従来のパルス圧縮手法と比較して、分解能、SN 比ともに向上した。

改良型パルス圧縮手法では、同じ受信データに対し SN 比を優先させた処理を行うか、分解能を優先させる処理を行うか、任意に選ぶことが出来る。

### 謝辞

本研究の一部は、平成 15 年度 NEDO 産業技術研究助成事業の助成を受けて行われました。

### 引用文献

1. 西野秀郎:「特集 ガイド波による探傷」, 非破壊検査 52 (12), pp. 653-682 (2003)
2. K. Toiyama et al : Proc. ASME/JSME PVP Conf., PVP-Vol.484, pp. 41-45 (2004)

# 液体を満たしたパイプを伝搬するガイド波の解析

## Theoretical and experimental investigations of the propagation of guide waves in cylindrical pipe filled with fluid

◎佐藤治道、マキシムレベデフ\*、明渡純（産総研、\*東京計装）

Harumichi Sato, Maxim Lebedev\* and Jun Akedo (AIST, \*Tokyo Keiso)

### 1. はじめに

パイプは我々の生活に無くてはならないものであり、その信頼性の確保は重要である。信頼性を保証するためには、非破壊検査が必要であり、パイプの非破壊検査には、ガイド波が有効である。また、超音波を用いた非破壊検査には、流量計としての用途もある。通常、超音波流量計にはバルク波を用いるが、パイプ径が細くなると、ガイド波を用いることも視野に入れる必然性がでてくる。

中空のパイプを伝搬するガイド波については、Gazis による詳しい解析がある[1]。また、Pan 等が、液体を満たしたパイプの音速の計算を行っているが、軸対称モードの計算のみである[2]。そこで、非対称モードにも適用できる、パイプを伝搬するガイド波の音速を計算するプログラムを作成し、検証した。

### 2. 計算手法

図1に計算モデルと座標系(円筒座標)を示す。Pan 等はパイプ部分を円周方向に分割する近似法を用いている。しかし、ここでは、計算の基本概念は、Gazis のそれを拡張する。個体部分 ( $a \leq r \leq b$ ) については、Gazis の文献と同一である。液体部分 ( $0 \leq r \leq a$ ) の変位は、スカラーポテンシャルを用いて次式で表す。

$$\mathbf{u}_L = \nabla \phi_L$$

$$\phi_L = f_L(r) \cos n\theta \cos(\omega t + \xi z)$$

$v_L$  を液体の音速とし、波動方程式

$$v_L^2 \nabla^2 \phi_L = \partial^2 \phi_L / \partial t^2$$

に代入し、 $r=0$  でも有意な解が得られる条件を適用することにより、

$$f_L(r) = A_L Z_n(\chi_1 r)$$

$$\chi^2 = \omega^2 / v_L^2 - \xi^2$$

$$\chi_1 = |\chi|$$

となる。ただし、 $Z_n$  は  $\chi$  が実数であれば第 1

種ベッセル関数  $J_n$ 、虚数であれば第 1 種変形ベッセル関数  $I_n$  である。

境界条件を以下のように設定する。

$$u_z^{solid} = u_z^{liquid}, \quad \sigma_{rr}^{solid} = \sigma_{rr}^{liquid}, \quad \sigma_{rz}^{solid} = \sigma_{r\theta}^{solid} = 0$$

at  $r = a$

$$\sigma_{rr}^{solid} = \sigma_{rz}^{solid} = \sigma_{r\theta}^{solid} = 0 \quad \text{at} \quad r = b$$

これらの境界条件から、 $7 \times 7$  の行列式  $|c_{ij}| = 0$

( $1 \leq i, j \leq 7$ ) が得られる。 $c_{ij}$  ( $1 \leq i, j \leq 6$ ) は、 $c_{31}, c_{61}$  を除いて Gazis の文献と同じであり、 $c_{31}, c_{61}$  は西野等の文献[3]と同じである。また、

$$c_{17} = \rho_L \omega^2 a^2 Z_n(\chi_1 a) / (\rho v_L^2)$$

$$c_{i7} = 0 \quad (2 \leq i \leq 6)$$

$$c_{71} = n Z_n(\alpha_1 a) - \alpha_1 \lambda_1 a Z_{n+1}(\alpha_1 a)$$

$$c_{72} = \xi a Z_{n+1}(\beta_1 a)$$

$$c_{73} = -n Z_n(\beta_1 a)$$

$$c_{74} = n W_n(\alpha_1 a) - \alpha_1 a W_{n+1}(\alpha_1 a)$$

$$c_{75} = \xi a W_{n+1}(\beta_1 a)$$

$$c_{76} = -n W_n(\beta_1 a)$$

$$c_{77} = -n Z_n(\chi_1 a) + \chi_1 \lambda_L a Z_{n+1}(\chi_1 a)$$

である。ここで、 $\rho_L$  は液体の密度、 $\lambda_L$  は  $\chi$  が実数であれば 1、虚数であれば -1 で、その他の記号は Gazis の文献と統一してある。

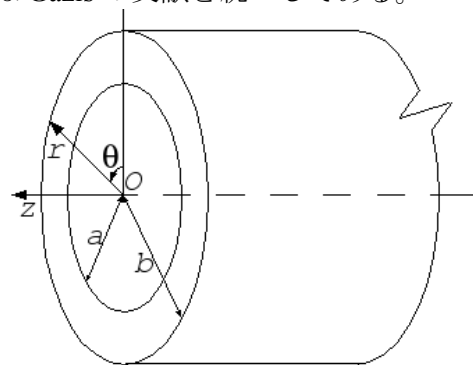


図1 計算モデル

プログラムの中では、周波数および、位相速度のサーチ範囲を設定し、Brent 法[4]で、行列

式 $|c_{ij}|$ の絶対値が設定した最小値より小さくなる位相速度を計算した。

計算手法と作成したプログラムを検証するため、Pan等の文献と同じ条件で位相速度を計算し、計算結果がほぼ一致する事を確認した(図2)。計算に用いた物理定数は以下のとおりである。 $v_1=1230\text{ m/s}$ ,  $v_2=370\text{ m/s}$ ,  $\rho=2200\text{ kg/m}^3$ ,  $v_L=1500\text{ m/s}$ ,  $\rho_L=1000\text{ kg/m}^3$

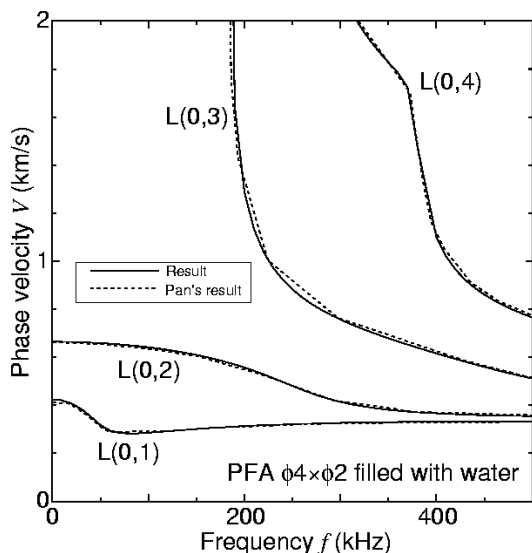


図2 Pan等の計算結果との比較

### 3. 実験

内部に水を満たした 1/4 インチの PFA( $\phi 6.35 \times \phi 4.35$ )に圧電素子を2個付け、一方の圧電素子(送信子)を 310kHz で励振した(図3, 4)。送信子の $\theta$ を $0^\circ$ として、受信子の $\theta$ が $0^\circ$ 近傍の時は、2個のピーク( $V_1, V_2$ )が見える。しかし、 $90^\circ$ 近傍の時は、 $V_1$ の振幅には大きな変化はないが、 $V_2$ の振幅は目に見えて小さくなっている。このことから、 $V_1$ は $n=0$ のモードで、 $V_2$ は $n=1$ のモードではないかと推測される。さらに、弾性波の伝搬時間と素子間の距離から音速を計算した(図5)。図5の、実線は $L(0,1)\sim L(0,4)$ で、破線は $F(1,1)\sim F(1,4)$ の群速度の計算値である。実験データは、それぞれ $L(0,4)$ ,  $F(1,4)$ の群速度と一致する事が見て取れる。さらに、 $n$ の値も、図4の $\theta$ 依存性と符合する。

### 4. まとめ

内部に液体を満たした、パイプを伝搬するガイド波の音速を計算するプログラムを開発し、その有効性を検証した。

なお、筆者等が作成したプログラムは、パイプ内部に液体が無い場合にも対応しており、フリーソフトとして配布する予定である。

### 謝辞

ご助言を賜った、徳島大学の西野先生に感謝します。

### 引用文献

1. D.C.Gazis: J.Acoust.Soc.Am. **31** (1959) 568.
2. H.Pan et al.: J.Acoust.Soc.Am **113** (2003) 3209.
3. H.Nishino et al.: Jpn.J.Appl.Phys. **40** (2001) 364.
4. W.H.Press et al.: Numerical recipes in C, 2nd ed. (Cambridge university press, New York, 1996)

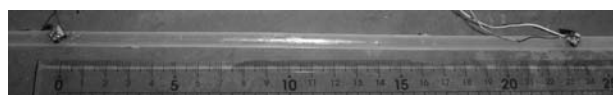


図3 PFAパイプと送受信子の写真

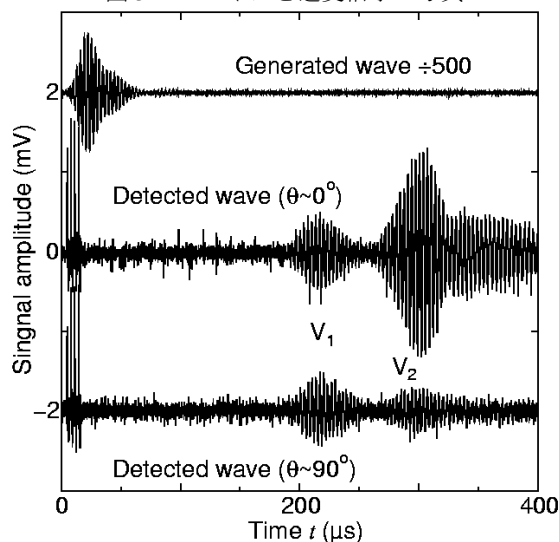


図4 実験結果

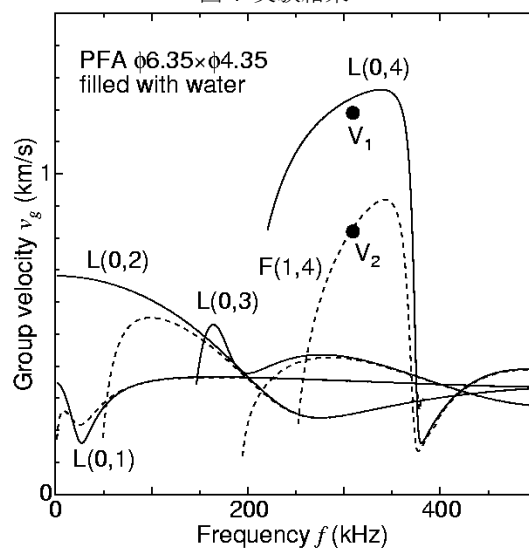


図5 実験結果と計算結果の比較

## 帰還制御方式 FBG センサアレイによる 振動／温度同時測定

Simultaneous measurement of vibration and temperature using FBG sensor array with feedback control

○横須賀泰輝、田中哲、稲本清之、高橋信明 (防衛大 通信)  
Hiroki Yokosuka, Satoshi Tanaka, Kiyoyuki Inamoto and Nobuaki Takahashi  
(Department of Communications Engineering, National Defense Academy)

### 1. はじめに

ファイバブラッググレーティング (以下 FBG) は、光ファイバのコア中に長さ方向に周期的な屈折率変調を施した素子であり、振動、温度、ひずみ、圧力など、各種の物理量に対して感度を持つため、これらの物理量を計測するセンサを構成することが可能である。

従来我々は、FBG を使って振動を計測するセンサを開発してきた[1]。さらに光源のレーザ波長を制御する帰還回路を導入することで、温度変化によるセンサ出力の不安定性を補償したセンサの開発を行った[2, 3]。今回は、レーザ波長制御用の帰還回路の出力が、FBG の環境温度に 1 対 1 に対応することを利用して、FBG を用いた温度センサの開発を行った。この振動と温度を計測するセンサは、互いに干渉せず、振動と温度の同時計測が可能である。

### 2. 原理

Fig. 1 に FBG 反射率と光源のスペクトルを示す。FBG に入射する DFB 半導体レーザ光の波長は、FBG の反射率スペクトルの傾斜部に設定

されている。FBG に振動が加わると、ブラッグ波長 $\lambda_B$ は振動に同期して波長軸に沿って周期的にシフトする。FBG の反射スペクトルはブラッグ波長が変化してもその形状が不変であると考えられ、反射光は印加された振動に同期して線形に強度変動を受ける[3]。

FBG のブラッグ波長は環境温度変化によっても長又は短波長側にシフトする。例えば温度が高くなった場合はブラッグ波長は図の点曲線のように長波長側にシフトする。温度変動がある場合は、レーザ光の波長が一定であるとすると、レーザ波長での FBG 反射率スペクトルの傾きが変化し、反射光の強度が変動する。しかしもしレーザ波長を反射光の平均強度が一定になるようにシフトさせれば (図の点直線)、センサ感度を安定化できるばかりでなく、ブラッグ波長とレーザ波長の差が一定になるので、レーザ光波長の変化は環境温度変化による FBG ブラッグ波長の変化と 1 対 1 に対応することになる。したがって、レーザ波長の制御電圧を測定すれば FBG 環境の温度変化を計測することが可能である。

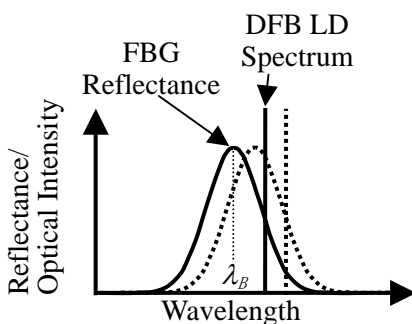


Fig. 1. Spectra of FBG reflectance and optical source.

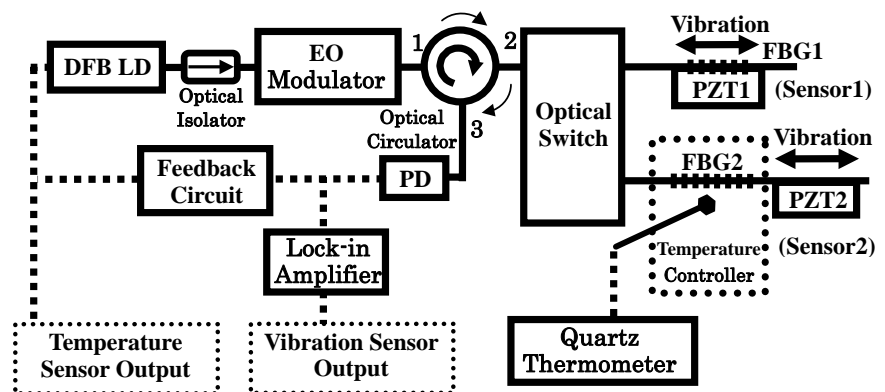
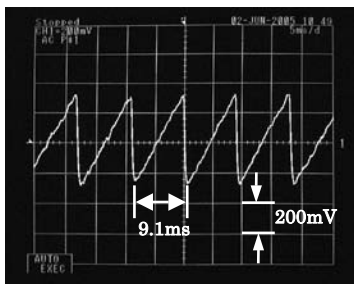
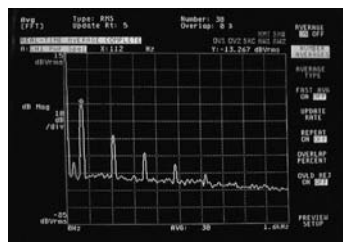


Fig. 2. FBG vibration / temperature sensor array.

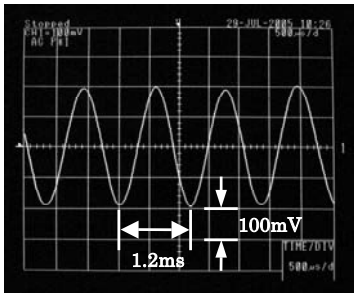
yokosuka@nda.ac.jp



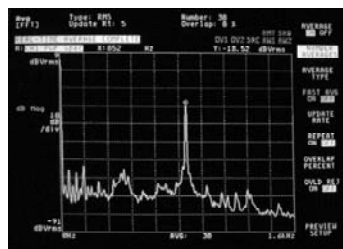
(a) Sensor1: Waveform



(b) Sensor1: Spectrum



(c) Sensor2: Waveform



(d) Sensor2: Spectrum

Fig. 3. Sensor outputs.

### 3. 実験

Fig. 2 に実験系を示す。実験系は、DFB 半導体レーザ、光アイソレータ、光スイッチ、FBG1、FBG2、光検出器、帰還制御系から構成される。FBG1 と FBG2 は光スイッチを用いて光路を選択することができ、2 点の時分割多重動作が可能になっている。FBG に印加された振動は、光検出器からの出力信号をロックイン検波することによって得られ、環境温度出力は帰還回路から出力される DFB レーザ波長制御電圧から得られる。FBG1 (センサ 1) と FBG2 (センサ 2) には、それぞれ、110 [Hz]、850 [Hz]の振動が印加されている。また FBG は恒温槽に入れられ FBG の環境温度を変化させることができる。Fig. 3 (a)~(d)にセンサ 1、センサ 2 によって得られた振動波形とそのスペクトルを示す。センサ 1 にはのこぎり波、センサ 2 には正弦波が印加されているが、取得された波形も印加波形に忠実な波形になっている。またそのスペクトルから高調波成分が減衰なく取得できていることがわかり、今回の振動センサが任意波形を取得できることがわかる。また FBG2 を恒温槽に入れ、その温度を変化させたときの温度センサ出力、すなわちレーザ波長制御電圧を Fig. 4 に示す。この結果より、センサ出力の傾きは  $13.7 \text{ [mV/}^\circ\text{C]}$ 、直線からのずれの標準偏差は  $5.09 \text{ [mV]}$ と計測された。次に温度センサ出力の時間依存性を測定したグラフを Fig. 5 に示す。また測定したデータのヒストグラムを Fig. 6 に示す。測定中 FBG2 は恒温槽に入れ室温 ( $25.9$

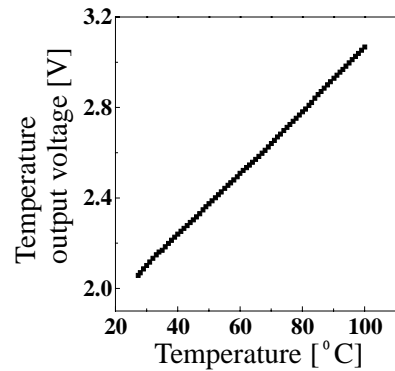


Fig. 4. Temperature dependence of temperature output voltage.

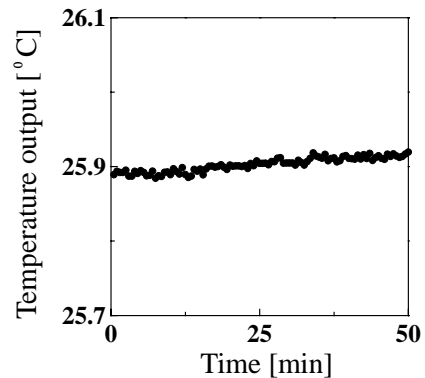


Fig. 5. Temporal stability of FBG temperature sensor output.

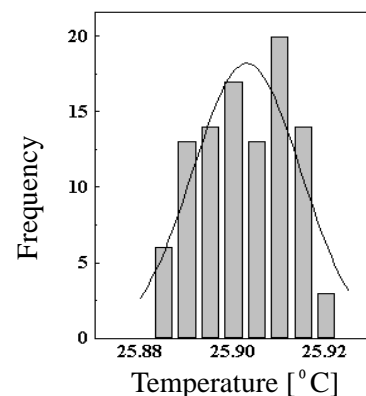


Fig. 6. Histogram of FBG temperature sensor output.

$^\circ\text{C}$ ) に保ち、30 秒間隔で約 50 分間測定した。温度センサ出力は水晶温度計 (HP2804A 分解能  $1/1000 \text{ [}^\circ\text{C]}$ ) で校正した。これより温度出力のゆらぎの標準偏差は  $9.5 \times 10^{-3} \text{ [}^\circ\text{C]}$ となった。

### 引用文献

1. S. Tanaka, T. Ogawa, H. Yokosuka and N. Takahashi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43** (2004) 2969.
2. H. Yokosuka, Satoshi Tanaka and Nobuaki Takahashi: *Proc. SPIE*, **5855** (2005) 731.
3. N. Takahashi, Kazuto Yoshimura and Sumio Takahashi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40** (2001) 3632.

# 光音響法とフォトルミネッセンス法によるナノ結晶 Si の評価 陽極化成時の HF 濃度依存性

Dependence of HF concentration in anodization process  
on photoacoustic and photoluminescence spectra

桑井正也<sup>1)</sup>、猪口真志<sup>1)</sup>、豊田太郎<sup>1, 2)</sup>、沈青<sup>1, 2)</sup>  
(電通大量子・物質工<sup>1)</sup>、コヒーレント光科学専攻<sup>2)</sup>)

M.Kumei,<sup>1)</sup>M.Inoguchi,<sup>1)</sup>T.Toyoda,<sup>1,2)</sup>and Q.Shen<sup>1,2)</sup>

(Dept. Appl. Phys. Chem.,<sup>1)</sup> Course of Coherent Optical Science,<sup>2)</sup> Univ. Electro-Commun.)

## 1. 背景と目的

1990年に、単結晶シリコン(Si)を陽極化成によりエッチング処理することにより、Si表面がナノ結晶Si(nanocrystalline Si)になることが発見された<sup>1)</sup>。このナノ結晶SiはバルクSiにない特性を示す。ナノ結晶Siは室温でバルクSiのバンドギャップ(1.1eV)より大きなエネルギーに対応する可視発光を示し、発光効率が高く、また作製条件によって発光波長を変化させることが可能である。そのため、将来ナノ結晶Siを基とした材料で集積化したオプエレクトロニクスデバイス等への応用が期待される。ゆえに、ナノ結晶Siの光物性および発光メカニズムの研究は重要である。現在までにそれらの物性が解明されつつあるが、未だ不明な点も多い。

今回我々は、陽極化成時のフッ酸(HF)溶液濃度が異なる数種類の試料を作製した。HFの濃度の変化が、作製後のナノ結晶Siの発光にどのような影響を及ぼすかについて検討を行った。作製したナノ結晶Si試料は光音響(Photoacoustic: PA)分光法ならびにフォトルミネッセンス法により評価を行った。

ここでPA法は不透明かつ光散乱の大きなナノ結晶Siに対して、光吸収情報を得るのに有効な手段である。PA法は試料の光励起後の無輻射遷移緩和による熱エネルギーを光音響エネルギーに変換して測定するため、光吸収と共に熱物性、電子物性を非破壊的に評価することが可能である<sup>2, 3)</sup>。

## 2. 試料作製法

ナノ結晶Siの作製には、P型Si単結晶基板(比抵抗5~15Ω・cm、面方位<100>、厚さ525μm)を用いた。Si基板裏面に白金薄膜をスパッタし(膜厚約150nm)、基板を陽極、白金電極を陰極にして、電流密度1.4mA/cm<sup>2</sup>、室温、暗所で45分間、HF濃度の異なるフッ酸溶液(エタノール

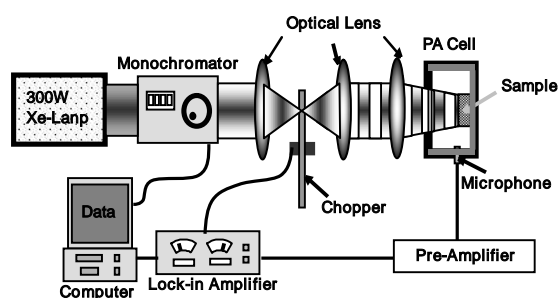


Fig.1 Schematic diagram of photoacoustic spectroscopy (PAS).

中に希釈：濃度25%~100%)中で通電させて陽極化成を行った。さらにその後、47%HF：エタノール：水の混合比1：3：8の溶液でエッチング処理を施した。

## 3. 測定法

Fig. 1にPA測定系の装置図を示す。励起光源には300WのXeランプを用いた。光源から出た光は分光器により単色化(300nm(約4.1eV)~1200nm(約1eV))されたのち、チョッパーで変調(333kHz)され断続光となる。その断続光が密閉された容器(セル)内に設置した試料(5mm×10mm程度)に照射される。試料に光が吸収され、励起された電子が無輻射緩和過程を経て正孔と再結合する際に、熱エネルギーが発生する。励起光は周期的に変調されているため、試料において発生する熱も周期的になる。その結果、試料表面直上にある空気は膨張・収縮を引き起こす。この結果発生する音響波をマイクロフォンで検出し、信号をプリアンプで増幅した後、ロックインアンプで信号処理を行った。

フォトルミネッセンス(Photoluminescence: PL)測定では励起光を340nm(約3.6eV)で固定し、波長500nm(約2.5eV)から750nm(約1.7eV)の範囲で発光スペクトル測定を行った。

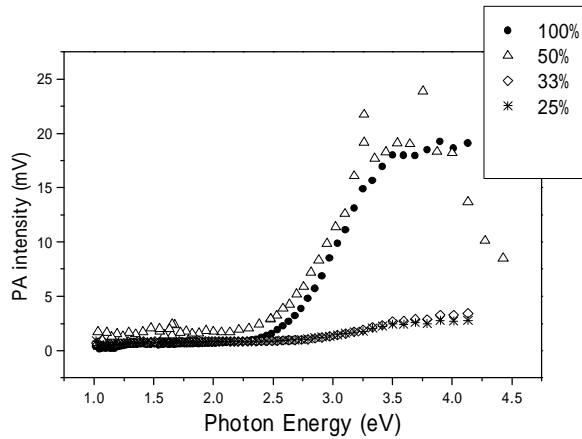


Fig.2 PA spectra for nanocrystalline Si with different HF concentration .

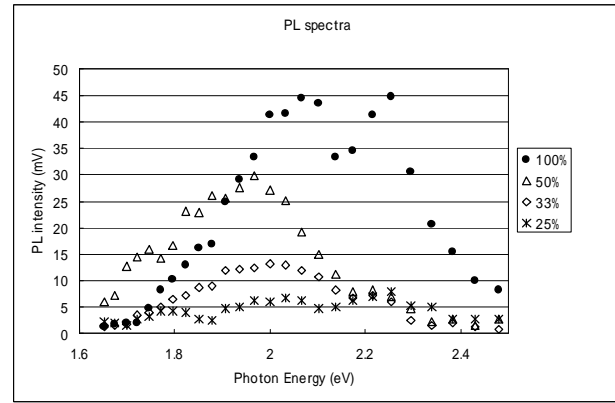


Fig.3 PL spectra for nanocrystalline Si with different HF concentration .

#### 4. 結果と考察

Fig. 2 に各 HF 濃度をパラメータとした PA スペクトルを示す。測定系の設定条件から、PA 信号は光吸収に比例する<sup>4)</sup>。どの試料も光吸収端がバルク Si のバンドギャップ値である 1.1eV より高エネルギー側に現れたことから、量子サイズ効果が現れていると考えられる。間接遷移型半導体の光吸収係数と光子エネルギーの間には

$$(\alpha h\nu)^{1/2} = C(h\nu - E_g)$$

という関係式がある<sup>5)</sup>。ここで  $\alpha$  : 光吸収係数、 $h\nu$  : 光子エネルギー、 $C$  : 任意定数、 $E_g$  : 基礎吸収端である。上記の関係式を適応して基礎吸収端を求めた。その結果を Table.1 中に示す。HF 濃度の減少に対して、基礎吸収端がそれぞれ 2.3eV から 1.8eV まで減少した。HF 濃度が低いほど、バルク Si の 1.1eV の値に近づきつつあるのが分かる。我々は今回の実験により、HF 濃度を変えることで基礎吸収端が変化することを確認した。これは、高濃度の HF では Si がより小さなナノ結晶構造となり、量子サイズ効果が強く現れ、逆に低濃度の HF では量子サイズ効果が強く現れず、基礎吸収端がより高エネルギー側にシフトしなかった結果と考える。

Fig. 3 にフォトルミネッセンス (PL) スペクトルを示す。HF 濃度が減少するに従い、PL 強度は低下する。一方、PL 強度のピーク位置は、HF 濃度の減少に伴い 2.5eV ~ 1.8eV まで減少する。PL 強度のピーク位置を Table.1 中に示す。これらは基礎吸収端の値とよく一致し、電子-フォノン間相互作用が小さいことを示唆している。

HF concentration	100%	50%	33%	25%
<b>E<sub>g</sub> : Fundamental absorption edge</b>	2.3eV	2.2eV	2.0eV	1.8eV
<b>PL peak</b>	2.5eV	2.0eV	2.0eV	1.8eV

Table.1 Fundamental absorption edge and PL peak for nanocrystalline Si with different HF concentration .

#### 謝辞

本研究の一部は文科省科研費若手 ( B ) (No.14750645)の助成を受けて行われた。また、有益な議論をして頂いた (株) 山武、木原隆博士に感謝申し上げる。

#### 引用文献

1. L. T. Canham : Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 1046.
2. T. Toyoda, M. Hayashi and Q. Shen : Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) 3036.
3. Q. Shen and T. Toyoda : Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 2946
4. A. Rosencwaig and A. Gersho : J. Appl. Phys. **39** (2000) 3146.
5. 豊田太郎: 「半導体の科学とその応用」(裳華房、2001) p.69.

# LiNbO<sub>3</sub> 基板上の 50MHz 帯非線形弾性表面波の 振幅推定に関する研究

## Study on an Amplitude Estimation of Nonlinear Surface Acoustic Wave with 50MHz Band on LiNbO<sub>3</sub> Substrate

得永嘉昭<sup>1</sup>、○鈴木政貴<sup>1</sup>、安野淳之<sup>1</sup>、南出章幸<sup>2</sup>

(金沢工業大学 OEDS R&D センター<sup>1</sup>・金沢高専<sup>2</sup>)

Yoshiaki Tokunaga<sup>1</sup>, Masaki Suzuki<sup>1</sup>, Atsushi Yasuno<sup>1</sup>, Akiyuki Minamide<sup>2</sup>

(OEDS R&D Center of Kanazawa Inst. Tech.<sup>1</sup>, Kanazawa Tech. College.<sup>2</sup>)

### 1. まえがき

非線形状態まで成長した弾性表面波 (NLSAW) の伝搬中における時々刻々の変化の分析には光プローブ法が適する。この方法はコヒーレントなレーザー光を試料表面に適当な間隔で移動させ、そこを通過する NLSAW との相互作用による回折光強度を測定することで、振幅、速度、周波数スペクトル等の情報を非接触、高感度、高分解能で取得できる利点がある。しかし、高感度、高分解能な測定法であるが故に、観測情報がプローブ光のビーム径、波長等の照射光条件、試料表面の光反射率、平滑度等の試料の状態に大きく依存する。そのため、回折光強度から弾性表面波の振幅を精度良く求めようとすると、当然それらの要素について考慮されるべきである。しかし、これまでに提案された推定式は、それらの要素がほとんど考慮されていないように思われる<sup>1-2)</sup>。

本報告では、これらの点を考慮した振幅推定式を使って回折光強度から振幅を求めた結果について述べる。

### 2. 振幅推定式

Fig.1 は Rayleigh 型の SAW による光回折の原理を示す。Rayleigh 型の SAW は、LiNbO<sub>3</sub> 基板の表面から試料内部方向に 1 波長以内にそのエネルギーがほとんど集中している。

また、過去の実験事実から、NLSAW による機械的な歪は、表面付近に数十 Å 程度と限定される<sup>3)</sup>。これらの事実を踏まえれば NLSAW は、“異なる周波数の surface ripple packets (以下 SRPs)”と近似的に扱うことができる<sup>4)</sup>。

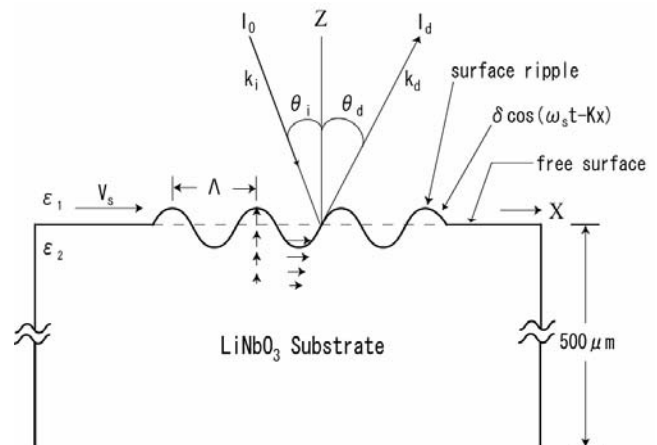


Fig.1 Schematic for optical diffraction by SAW of Rayleigh type. (shown fundamental alone.)

この SRPs による回折光には機械的な歪による直接回折光成分と、その歪による媒質の屈折率の変化に起因する成分の両方が含まれる。Lean らの実験によれば、表面回折光強度のみを観測する反射法においては、機械的な歪による 1 次回折光成分のみが支配的となり、高次回折光の成分は無視できる。このことは、NLSAW の基本波成分および高次高調波成分によるそれぞれの 1 次回折光強度を測定すれば、(1)式を使ってその振幅を簡単に推定できることになる。

$$\delta_n = \frac{1}{G_n T_n} \sqrt{\frac{I_{dn}}{I_0}} \quad (1)$$

ここで  $\delta_n$  は  $n$  次高調波成分の振幅を、 $I_{dn}/I_0$  は測定された規格化  $n$  次回折光強度をそれぞれ示す。(1)式において  $G_n$  は、ビーム径に関する項で式(2)のようになる。また  $T_n$  は、試料表面の反射に関する項で式(3)のようになる。

E-Mail : toklab@mlist.kanazawa-it.ac.jp

$$G_n = \frac{\cos \theta_i}{(\gamma - K)D} \sin \left\{ \frac{(\gamma - K)D}{\cos \theta_i} \right\} \quad (2)$$

$$T_n = \frac{B(k_d \cos \theta_{dn} + k_i \cos \theta_i) + K(1 + R)(k_d \sin \theta_{dn} + k_i \sin \theta_i)}{2k_i \cos \theta_i} \quad (3)$$

また、 $D$  はビームの半径、 $K = n \frac{2\pi}{\Lambda}$  とする。

ここで、 $\Lambda$  は基本波成分の波長である。

また、 $\gamma = k_d \sin \theta_{dn} - k_i \sin \theta_i$

$$B = (1 + R)k_d \cos \theta_{dn} - (1 - R)k_i \cos \theta_i$$

さらに、基板の光反射率  $R$  は、

$$R = \frac{(\varepsilon_2/\varepsilon_1)\cos \theta_i - \sqrt{\varepsilon_2/\varepsilon_1 - \sin^2 \theta_i}}{(\varepsilon_2/\varepsilon_1)\cos \theta_i + \sqrt{\varepsilon_2/\varepsilon_1 - \sin^2 \theta_i}} \quad (4)$$

で求まり、入射角  $\theta_i$  と第  $n$  次高調波成分による回折角  $\theta_{dn}$  の間には(5)の関係がある。

$$\sin \theta_{dn} = \sin \theta_i + n \frac{2\pi}{k_i} \frac{1}{\Lambda} \quad (5)$$

### 3. 実験試料と測定法

実験試料を  $\text{LiNbO}_3$  基板として、 $128^\circ$  Y-X 伝搬の結晶を使った。IDT は正規型で、対数は 20 対とした。また、基板中のフォノンバースによる波の散逸性が無視でき、保存系として扱えること等を考慮し、IDT の中心周波数を 50MHz 付近に設定した。Fig.2 は実験試料の概略図を示す。IDT I と IDT II の間に 20mm の自由空間を設け、この部分で光プローブ計測ができるようにした。

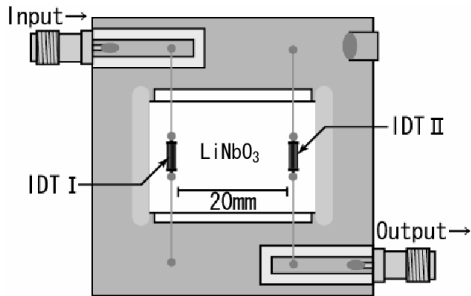


Fig.2 Diagram of the experimental sample.

### 4. 実験結果とその検討

Fig.3 は伝搬距離における規格化回折光強度の測定結果を示す。式(1)の  $I_{dn}/I_0$  にそれらを代入して NLSAW の振幅を求めた結果を Fig.4 に示す。基本波振幅は 50 Å 程度、第 2 次高調波は 2~10 Å となることがわかった。第 2 次高調波に対する推定振幅は、文献 5) に示された値に近いものであった。

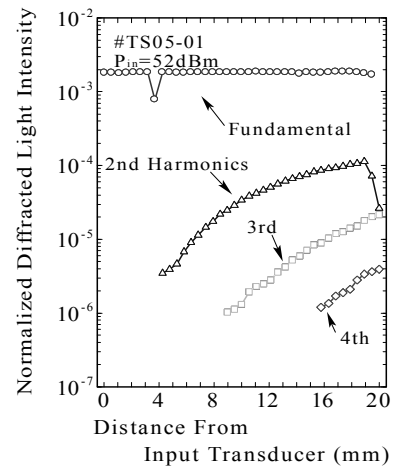


Fig.3 Normalized diffracted light intensity in propagation distance.

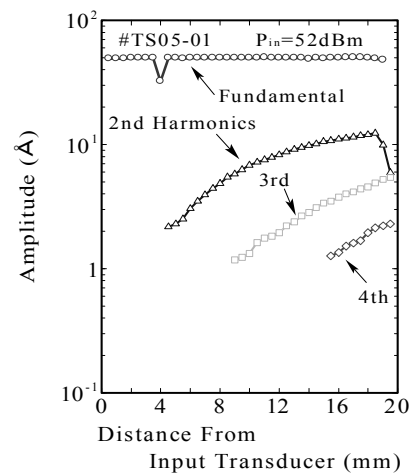


Fig.4 Estimated amplitudes of NLSAW.

### 5. あとがき

以上、NLSAW の基本波と第 2 次高調波成分の振幅について推定した結果を報告した。

### 謝辞

本研究は文部科学省ハイテク・リサーチ・センター整備事業〔2000 年度～2005 年度〕助成で行われた。

### 引用文献

- 1) W.G.Mayer. et. al.: J. Acoust. Soc. Am. **42** (1967) 1255.
- 2) T.Yoshimine. et. al.: Jpn. J. Appl. Phys. **33** (1994) 3166.
- 3) 中川恭彦他: 電子情報通信学会誌, **55-A** (1972) 377.
- 4) E.G.Lean: *Interaction of light and acoustic surface waves*, ed. E. Wolt (progress in optics XI, North-Holland, 1975) 123.
- 5) 柴山乾夫: 弾性表面波工学, (電子情報通信会, 1983) 51.

# Co, および Pr 添加 Zinc Silicate 焼成粉末の 光音響分光法による非発光特性評価 Evaluation of Co and Pr doped Zinc Silicate Powders by Photoacoustic Spectroscopy

○井上善博<sup>1)</sup>、豊田太郎<sup>2)</sup>、守本純<sup>1)</sup>

(防衛大 機能材料<sup>1)</sup>、電通大 量子・物質工<sup>2)</sup>)

Yoshihiro Inoue<sup>1)</sup>, Taro Toyoda<sup>2)</sup>, Jun Morimoto<sup>1)</sup>

(Dept. of Matr. Sci. & Engr., Natl. Def. Acad.<sup>1)</sup>, Dept. Appl. Phys. Chem., Univ. Electro-Commun.<sup>2)</sup>)

## 1. はじめに

光音響分光法 (photoacoustic spectroscopy, PAS) [1]は、散乱光の強い粉末試料などの、従来の分光法では非常に測定が困難な吸収スペクトルの測定が可能である[2]。さらに、発光特性、すなわち輻射遷移過程を評価する Photoluminescence (PL) 測定では得難い非輻射遷移過程を評価できる点で、蛍光体粉末などの非発光特性を評価するのに、非常に有効な測定法である。そこで、我々は、現在、急速に普及率が增大しているPDP (plasma display panel) の緑色蛍光体として実用化されている Zinc Silicate ( $Zn_2SiO_4$ ):Mn、さらに、Mnの代わりに、Co、および Pr を添加した $Zn_2SiO_4$ 焼成粉末の非発光特性を、非発光遷移過程によって生じた熱を音波として検出するマイクロフォン法 PAS によって評価した。

## 2. 試料と実験方法

$Zn_2SiO_4$ は、ZnO粉末 (99.99 %) と $SiO_2$ 粉末 (99.9 %) をモル比で混合し、石英ガラス管に真空封入したものを、 $1000^\circ\text{C}$ で 24 時間焼成することで得られる。そこで、 $Zn_2SiO_4$ 、および $Zn_2SiO_4$ :M (M = Mn, Co, Pr) を合成するため、ZnO粉末と $SiO_2$ 粉末、そして、Mに、MnO (99.9 %)、CoO (99.9 %)、 $Pr_2O_3$  (99.9 %)、 $Pr_6O_{11}$  (99.9 %) 粉末を使用し、MがZnOに対して、6 mol%となるように秤量し、それぞれ、めのう乳鉢で1時間混合した。さらに、混合粉末を、石英ガラス管に真空封入し、 $1000^\circ\text{C}$ で 24 時間焼成し試料とした。得られた $Zn_2SiO_4$ :M 焼成粉末の結晶構造を解析するため、X線回折 (X-ray diffraction, XRD) 測定を行った。さら

に、電子顕微鏡 (scanning electron microscope, SEM) により粒を観察した。発光特性、および非発光特性を評価するため、室温にて、光源にキセノンランプを用いて、PL測定、およびPAS測定を行った。

## 3. 結果と考察

本研究で合成した $Zn_2SiO_4$ のXRDパターンを Fig. 1 に示す。 $Zn_2SiO_4$ :M (M = Mn, Co, Pr) 焼成粉末は、すべて、Fig. 1 と同様なXRDパターンを示した。しかし、Pr添加 $Zn_2SiO_4$ 焼成粉末については、Prの酸化数が異なる $Pr_2O_3$ 、 $Pr_6O_{11}$ の種に関わらず、両者ともに、 $Zn_2SiO_4$ のXRDパターンに加え、 $Pr_2(Si_2O_7)$ の微弱なピークが観測された。 $Zn_2SiO_4$ のSEM写真を Fig. 2 に示す。 $Zn_2SiO_4$ は、Fig. 2 に示す粒形状をしていた。そして、 $Zn_2SiO_4$ 、およびすべての $Zn_2SiO_4$ :Mの粒径は、約  $10 \mu\text{m}$  以下

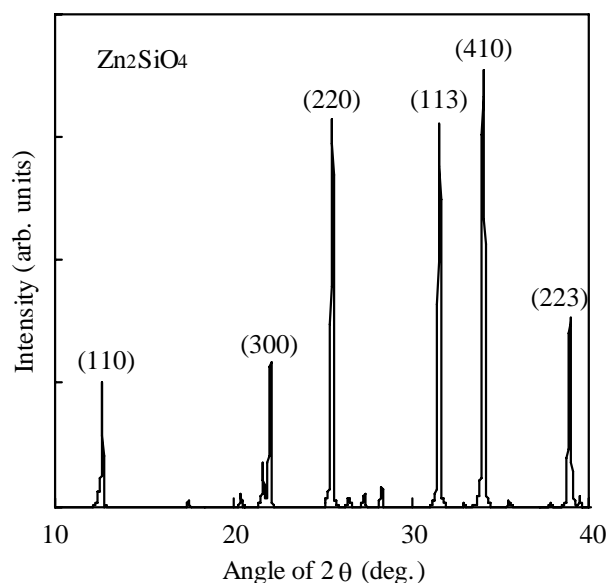


Fig. 1 XRD pattern of  $Zn_2SiO_4$



Fig. 2 SEM image of  $Zn_2SiO_4$

となっており、添加物の種類により、表面状態、および粒の形状は $Zn_2SiO_4$ と較べて変化が見られた。

Fig. 3 に、365 nmの波長で励起した $Zn_2SiO_4$ 、および $Zn_2SiO_4:Mn$ のPLスペクトルを示す。 $Zn_2SiO_4:Mn$ のみ、528 nmを中心とした強い緑色発光を示した。また、他の試料は、450 nm ~ 650 nm付近で、ブロードな発光を示し、添加物の違いにより、スペクトルの変化が見られた。

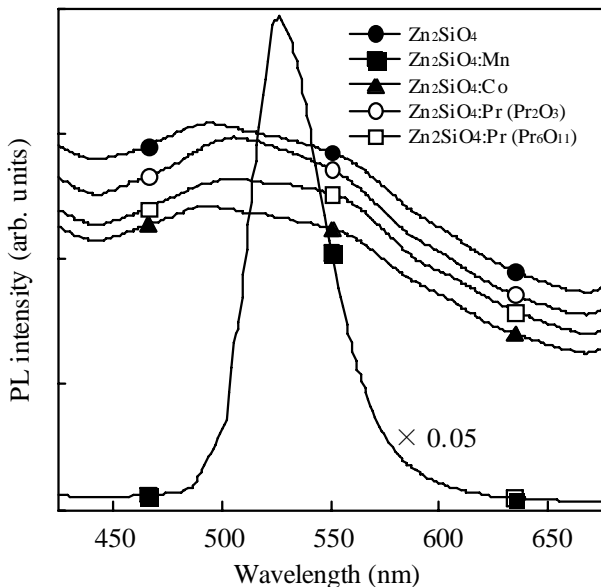


Fig. 3 PL spectra of  $Zn_2SiO_4$  and  $Zn_2SiO_4:M$

次に、波長 350 nm ~ 650 nm の範囲の $Zn_2SiO_4$ 、および $Zn_2SiO_4:M$ のPAスペクトルをFig. 4 に示す。 $Zn_2SiO_4$ 、および $Zn_2SiO_4:Mn$ のPA

スペクトルは、Fig. 3 で見られた発光波長範囲では、ほぼ全範囲でフラットとなり、この間の非輻射遷移に変化がなく、一定であることがわかる。一方、 $Zn_2SiO_4:Co$ のPA信号は、400 nm付近から大きくなっており、これは、非輻射遷移が増大したことを意味し、Co (II) イオンの吸収に起因している。また、 $Zn_2SiO_4:Pr$ のPAスペクトルも同様に、3つのピークが観測されるが、これらもPr (III) イオンによる吸収であり、非輻射遷移が発生していることがわかる。Fig. 3 で、これらの範囲でのイオンに起因する明確な発光が見られないことから、Co (II) イオン、およびPr (III) イオンは、 $Zn_2SiO_4$ 系では、非発光中心となっていると考えられる。

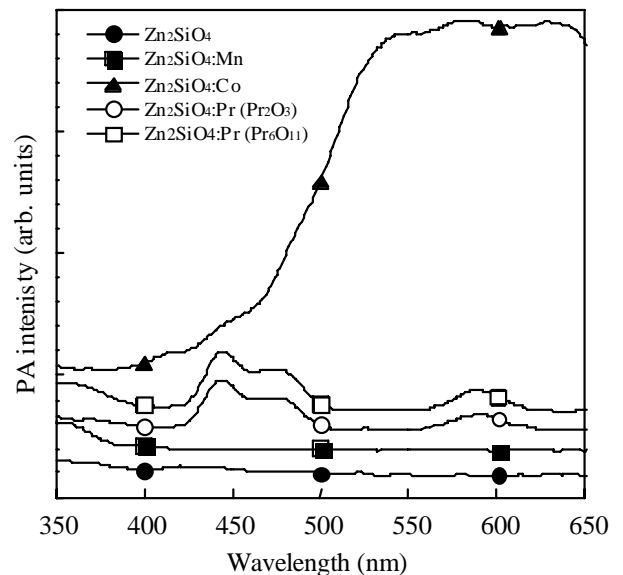


Fig. 4 PA spectra of  $Zn_2SiO_4$  and  $Zn_2SiO_4:M$

#### 4. まとめ

$Zn_2SiO_4$ 、および、Mn、Co、Prを添加した $Zn_2SiO_4$ 焼成粉末の非発光特性をPASにより評価した結果、Co、Prイオンは、Mnイオンとは対照的に非発光中心となっていることがわかった。PAS法は、蛍光体粉末などの非発光の光学特性を評価するのに非常に有効である。

#### 参考文献

- [1] A. Rosencwaig and A. Gersho: J. Appl. Phys. **47** (1976) 64.
- [2] Y. Inoue, Y. Miyauchi, A. Kimura, T. Kawahara, Y. Okamoto and J. Morimoto: J. Appl. Phys. **43** (2004) 2936.

# 楔形状を有する傾斜表面欠陥の光音響顕微鏡 による非破壊検出

## Nondestructive Detection of Tilted Surface Defect with Wedge Shape by Photoacoustic Microscopy

遠藤春男、○大瀧直樹、星宮 務 (東北学院大 工学部)

Haruo ENDOH, Naoki OTAKI and Tutomu HOSHIMIYA  
(Tohoku Gakuin Univ., Dpet. Mech. Eng. & Dpet. Appl. Phys.)

### 1. 序論

一般構造部材や工業製品および電子部品等の破壊強度を確保するためには、その構造物や電子部品に内在しているき裂や欠陥および何らかの外力により発生させられたき裂や欠陥の検出、さらにき裂進展等を精度よく測定・評価することが大変重要である。欠陥の検出方法として様々な非破壊検査法が研究されてきている。光音響顕微鏡はその一種である。特徴として欠陥部の光音響信号が欠陥のない領域の光音響信号よりも強く生ずることから、欠陥検出に対して十分に有効である<sup>1,2)</sup>。一般に欠陥は複雑な形状をしており、その形状を把握することは既存の非破壊検査法では困難である。しかし光音響顕微鏡では他の検査方法では検出が困難である傾斜欠陥の検出に対し可能である。そこで、本研究では表面欠陥の形状が欠陥の表面長さと共に深さが変化する楔形状を有する欠陥を作製し、さらに傾斜させた複雑な欠陥に着目し表面傾斜欠陥の形状検出、および傾斜角度の評価を行った。

### 2. 実験装置の構成および試験片

実験装置<sup>3)</sup>は、光学部、駆動部、検出部、信号処理部、コンピュータ部の5つに分けられる。光学部のレーザー光源からレーザー光を照射し駆動部のリニアモーターステージで試料を走査することで測定を行う。検出部で検出された信号は、信号処理部のロックインアンプにおいて参照信号と同期検波される。処理された信号の振幅および位相がコンピュータ内に読み込まれ処理され画像として再構成・表示される。今回の実験で用いた試験片形状の一例を Fig.1 に示す。材料はアルミニウム平板である。試験片全体の寸法は  $40 \times 40 \times 1.0$  mm である。楔形状を有する表面傾斜欠陥はエンドミルを用いて精密機械加工により導入した。欠陥形状は Fig. 1 に示す通り楔形の形状である。

表面から欠陥底部までの距離は公称値で 0.3 mm、欠陥の幅は 0.3 mm である。傾斜角度はそれぞれ水平面に対して 60、70、80、90° である。欠陥の全長は約 3 mm である。

### 3. 実験結果および考察

一例として得られた結果を示す。Fig.2 は変調周波数 180Hz で測定して得られた楔状表面欠陥の光音響画像である。測定範囲は  $3 \times 3$  mm である。解像度は  $100 \times 100$  ピクセルまた傾斜角度は 70° である。Fig.2(a)はこの時得られた位相像で表面欠陥の全体像が中央に検出されている。欠陥の配置は表面欠陥の深さが A 点に行くほど深くなるように配置してある。この図において、A 点から B 点に行くほど位相信号の違いが見られる。浅いところほど位相が進んでいることが分かる。Fig.2(b)

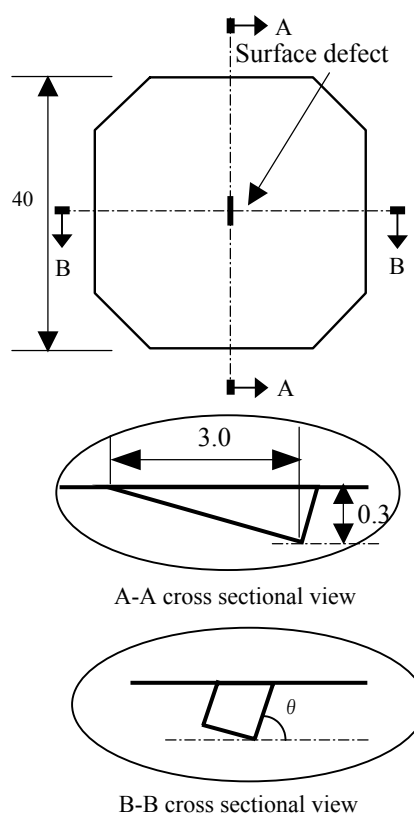


Fig.1 Specimen with tilted surface defect geometry  
( $\theta = 60, 70, 80, 90^\circ$ , unit: mm)

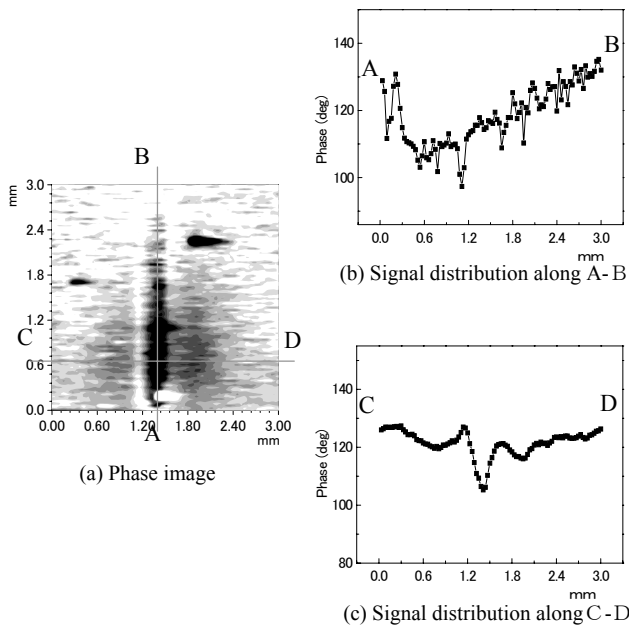


Fig.2 PA phase image and signal distribution for the specimen with tilted surface defect (angle value:  $70^\circ$ ,  $f=180\text{Hz}$ , scanned area  $3 \times 3\text{mm}$ )

は Fig.2.(a)の A-B ライン上の位相信号分布図である。A, B 点付近では試料表面における位相を示しておりほぼ同じ位相信号レベルを示している。この位相信号分布から表面欠陥の深さの変化が明瞭に示されている。また分布形状から楔状欠陥が示されており、表面欠陥形状の推定が可能である。Fig.2(c)は Fig.2.(a)の C-D ライン上の位相信号分布図である。信号のほぼ中央部に位相遅れが観察される。その位置は表面欠陥を示している。また、欠陥部において左右の位相信号のピークに違いが見られる。これは欠陥が試料表面に対し傾斜しているため、左側壁面が内部欠陥となり、さらにレーザービームが傾斜している右壁面に照射されたとき、その面において反射されたレーザービームがさらに内部欠陥となった左側壁を照射すること、および欠陥内部での複雑な乱反射などにより、信号強度に相違が生じたものと考えられる<sup>4)</sup>。次により精度よく表面欠陥を検出するために測定範囲  $1 \times 1\text{mm}$ 、解像度  $100 \times 100$  ピクセルで測定した。Fig.3 は変調周波数  $90\text{Hz}$ 、傾斜角度は  $70^\circ$ 、欠陥深さが緩やかに浅くなっていく欠陥端の位置で得られた光音響画像である。Fig.3(a)はこの時得られた位相像である。Fig.2(a)では確認できなかった、欠陥端 (Fig.2(a)の上部) の形状が鋭い角度を有する表面欠陥 (エンドミル加工により傾斜を付けて楔状表面欠陥を導入すると、この様な形となる。これはレーザー顕微鏡からも確認された。)を明確に確認することができる。Fig.3(b)は Fig.3.(a)の A-B ライン上の信号分布図である。この図において、

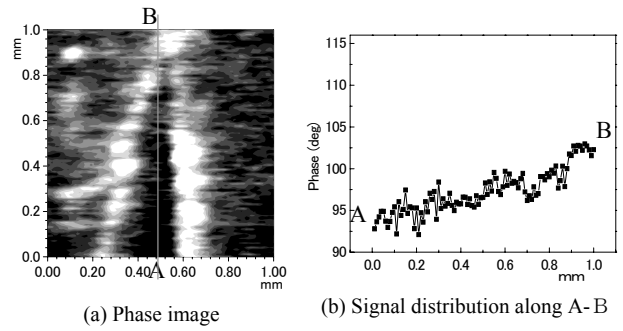


Fig.3 PA phase image and signal distribution for the specimen with tilted surface defect (angle value:  $70^\circ$ ,  $f=90\text{Hz}$ , scanned area  $1 \times 1\text{mm}$ )

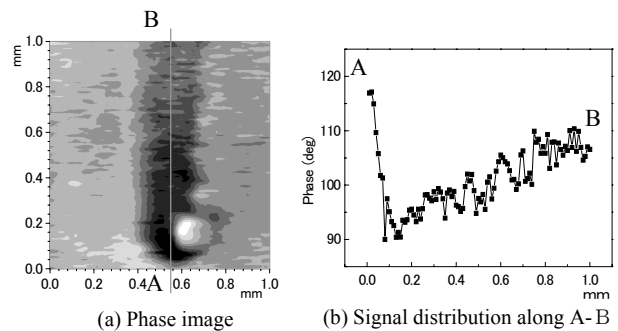


Fig.4 PA phase image and signal distribution for the specimen with tilted surface defect (angle value:  $70^\circ$ ,  $f=270\text{Hz}$ , scanned area  $1 \times 1\text{mm}$ )

欠陥が深くなるに従い位相遅れが大きくなっていくことが分かる。Fig.4 は表面欠陥の一番深い所の位置を同様の範囲および精度で測定した図である。変調周波数は  $270\text{Hz}$  である。Fig.4(a)は位相像で中央部に欠陥が観察される。Fig.4(b)は A-B ライン上の信号分布図である。図より、欠陥深さの大きな変化が位相遅れにより明瞭に捉えられている。

#### 4. 結論

光音響顕微鏡を用いた楔形状表面傾斜欠陥の非破壊検出を目的として非破壊検査を行った結果、得られた光音響位相像および信号強度分布より、楔状表面欠陥形状および欠陥部における非対称性から傾斜の違いを精度よく測定することが出来た。

#### 参考文献

- 1) H.Endoh, Y.Hiwatashi and T.Hoshimiya: Jpn.J. Appl. Phys.,**36**,(1997)3312
- 2) H.Endoh, S.Sugawara, Y.Hiwatashi and T.Hoshimiya: Jpn.J. Appl. Phys.,**38**,(1999)3191
- 3) K.Miyamoto and T.Hoshimiya: Jpn.J. Appl. Phys.,**39**,(2000)3172
- 4) H.Endoh, K. Inomata, K. Miyamoto, Y.Hiwatashi and T.Hoshimiya: Jpn.J. Appl. Phys.,**43**,(2004)2940

## PTCDA 薄膜の光音響スペクトルのアニール温度依存性 Annealing Temperature Dependence on Photoacoustic Spectra for PTCDA Films

○岡本真幸\*、井上善博\*、河原敏男\*\*、守本純\* (\*防衛大 機能材料、\*\*大阪大 産研)  
Masaki Okamoto\*, Yoshihiro Inoue\*, Toshio Kawahara\*\* and Jun Morimoto\* (\*Dept. of MSE, NDA,  
\*\*ISIR, Osaka Univ.)

### 1. はじめに

近年、有機半導体はその特異的な電気的特性、光学的特性により、注目を集めている。特に有機EL素子は薄型テレビやデジタルカメラ等に利用され、薄型・軽量に加え、応用範囲の広いディスプレイの実現が期待されている。そのためには、有機化合物の耐久性や安定性といった問題の解決が不可欠である。

光音響分光法(PAS)とは、試料に断続光を照射して試料内の熱変化を検出する方法であり、非発光遷移過程の評価に用いられる。中でもマイクロフォンを検出器として用いるマイクロフォン法PASは、試料をセルに密閉するだけで非接触の測定が可能である。

以前、我々はマイクロフォン法PASを有機薄膜の評価へ応用し、3,4,9,10-perylenetetracarboxylic dianhydride(PTCDA)薄膜の蒸着基板による特性の違いを調べた。その結果、PTCDA薄膜は基板により結晶性が異なり、それを光音響(PA)信号で評価できることがわかった<sup>1)</sup>。また、PTCDA薄膜は測定温度によって発光特性が変化するという報告がある<sup>2)</sup>。

本研究では、PTCDA薄膜の熱による光学特性の変化を調べるため、ガラス基板上に蒸着した膜を様々な温度でアニール処理し、マイクロフォン法PASを適用した結果について述べる。

### 2. 実験方法

試料の作成には真空蒸着装置を用いて、到達真空度  $10^{-4}$  Paの真空中でガラス基板上にPTCDA薄膜を電子ビーム蒸着した。この試料を電気炉に入れ、 $10^{-1}$  Paで真空引きをしながら温度を変えて10分間のアニール処理を行った。温度は50°C、65°C、80°C、100°Cおよび120°Cとし、昇温、降温の速度はどちらも5°C/minである。

試料の結晶構造はX線回折法(XRD)により、CuK $\alpha$ 線を用いて2 $\theta$ - $\omega$ モードで測定し解析した。PAスペクトルは光源にキセノンランプを用いて

励起光波長は360 nmから690 nm、走査間隔は1 nm、変調周波数は20 Hzとし、室温で測定を行った。また、発光遷移過程の考察のため、発光(PL)スペクトルおよび発光励起(PLE)スペクトルの測定も併せて行った。

### 3. 結果と考察

アニール処理により、膜厚の減少が見られ、120°Cでは半分以下であった。XRDパターンでは、どの試料でも27.5~27.6°にPTCDA(102)の回折ピークが観測され、試料に関係なくPTCDAは基板に対して平行に配向していることがわかった。また、このピークの半値幅は処理温度の上昇に比例して大きくなっていった。

Fig. 1に、アニール処理したPTCDA薄膜のPAスペクトルを示す。(a)、(b)ともに、処理をしていない試料は実線で示している。処理をしていない試料では、400 nmから450 nmおよび530 nmから550 nmに緩やかな吸収ピークが現れ、580 nmあたりから急激に信号が減少する。アニール処理をしてもほぼ同様のスペクトルが得られるが、処理温度の上昇に伴い、信号の減少する波長が長波長側にシフトした。このシフトの様子をプロットしたものがFig. 2である。これは信号の急激な減少が起こる600 nm付近の中間の波長の値であり、アニール温度の上昇とともに変化した。

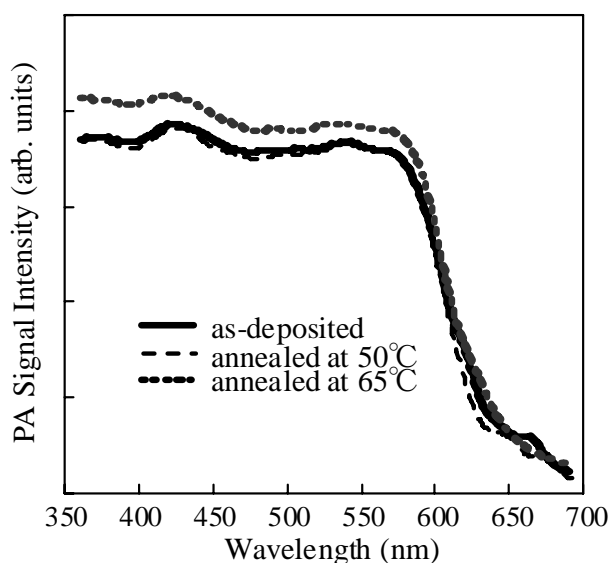
PLスペクトルの測定では、400 nm、420 nm、450 nm、およびPAスペクトルの減少が見られる580 nmで励起して観測した。どの試料でも発光ピークは690 nmに現れたため、この波長の励起スペクトルを測定した。これをFig. 3に示す。処理を加えていない試料のスペクトルは実線で示したようになり、420 nmから520 nmにかけてのブロードなピークと590 nm付近の小さなピークを持つ。処理温度の上昇に伴い、短波長のピークは減少し、長波長側のエネルギーを吸収している。また、長波長側のピークは温度が高くなると短波長側へシフトしていた。

以上の結果から、アニール処理によりPAスペクトルおよびPLEスペクトルが変化し、PTCDA

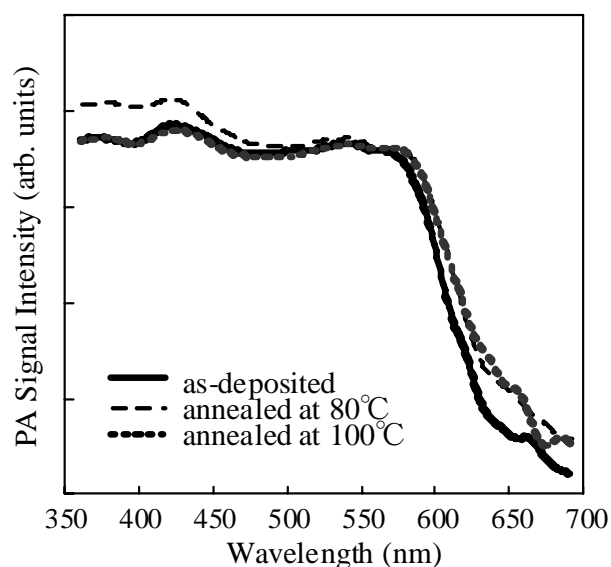
薄膜の光の吸収波長が変化することがわかった。

#### 4. まとめ

本研究では、真空蒸着法でガラス基板上に作成した PTCDA 薄膜の、熱処理による非発光遷移過程の変化をマイクロフォン法 PAS によって検証し、PL 及び PLE スペクトルと比較した。その結果、アニール温度の上昇に伴って PTCDA 薄膜の PA スペクトルおよび PLE スペクトルに変化が見られ、発光遷移のみではなく非発光遷移でも光の吸収波長が変化すると考えられる。



(a) as-deposited film, 50°C annealing film, and 65°C annealing film.



(b) as-deposited film, 80°C annealing film, and 100°C annealing film.

Fig. 1 PA spectra for annealed PTCDA films.

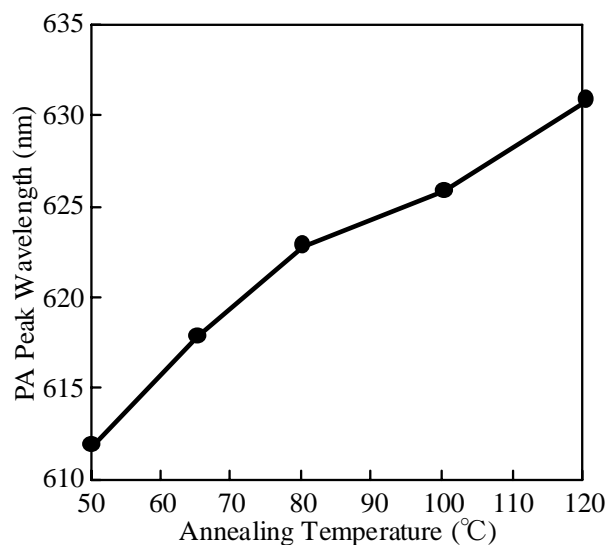


Fig. 2 PA peak shift of annealed PTCDA films.

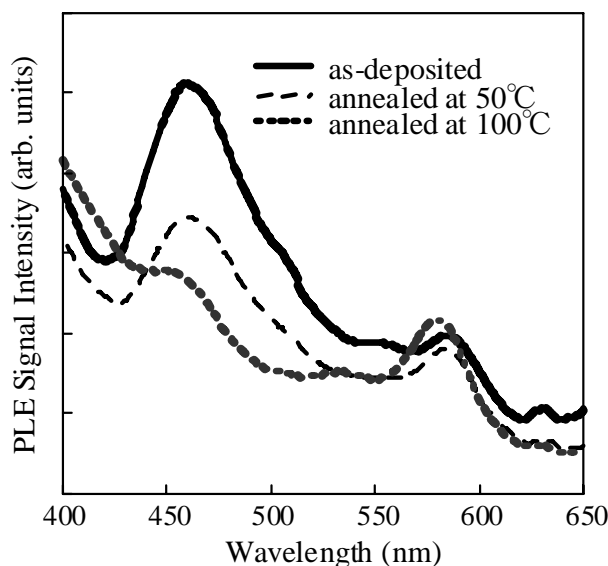


Fig. 3 PL excitation spectra for annealed PTCDA films.

#### 参考文献

1. M. Okamoto, Y. Inoue, K. Yoshihara, T. Kawahara and J. Morimoto : ICICE Trans. Electron. **E87-C** (2004) 2108.
2. W. Bala, Z. Lukasiak, M. Rebarz, P. Dalasinski, A. Bratkowski, D. Bauman and R. Hertmanowski : Opto-Electrons. Review. **12** (2004) 445.

## 透明電極 FTO とナノ構造 SnO<sub>2</sub> 電極に吸着した CdSe 量子ドットの 光音響スペクトルと光電気化学特性

Photoacoustic and photoelectrochemical characterization of CdSe quantum dots  
grafted onto fluorine-doped tin oxide (FTO) glass  
and nanostructured SnO<sub>2</sub> electrodes

矢内 誠<sup>1)</sup>、沈 青<sup>1,2)</sup>、豊田 太郎<sup>1,2)</sup>  
(電通大 量子・物質工<sup>1)</sup>、コヒーレント光科学専攻<sup>2)</sup>)

Makoto Yanai,<sup>1)</sup> Qing Shen,<sup>1,2)</sup> Taro Toyoda<sup>1,2)</sup>

(Dept. Appl. Phys. Chem.,<sup>1)</sup> Course of Coherent Opt. Sci.,<sup>1,2)</sup> Univ. Electro-Commun)

### 1. はじめに

CdSe に代表される半導体量子ドットは、その粒径がボア半径程度まで小さくなると量子閉じ込め効果によりバルクとは異なる性質を示すことが知られている。また、作製時の条件を変化させ粒径をコントロールすることによりエネルギーギャップをコントロールすることが出来る。このような特徴から、近年注目されている色素増感太陽電池に用いられている有機色素に代わる増感剤としても期待されている<sup>1,2)</sup>。色素増感太陽電池における光吸収と電子移動の関係は、光電変換効率を向上するための重要な情報となる。そこで、本研究では透明電極 FTO (fluorine-doped tin oxide) とナノ構造 SnO<sub>2</sub> 電極に CdSe 量子ドットを吸着した試料に対して、光音響 (PA) 法<sup>3)</sup>による光吸収の評価と光化学電流 (PEC) スペクトル測定・光電変換量子効率 (IPCE) 測定による電子移動の評価を行った。また、SEM (走査型電子顕微鏡) により CdSe 量子ドットの吸着状態を確認した。

### 2. 実験法

CdSe 量子ドットの吸着には、化学吸着法を適用した<sup>4)</sup>。吸着溶液の調整は、80mM の CdSO<sub>4</sub> 水溶液に 120mM の N(CH<sub>2</sub>COONa)<sub>3</sub> 水溶液 (NTA 溶液) を加えたものに 80mM の Na<sub>2</sub>SeSO<sub>3</sub> 水溶液を加えることにより行った。この溶液中に電極を浸漬し、時間を変化させ作製条件の異なる CdSe 量子ドットを作製した。

PA スペクトル測定には、マイクロフォン法を用いた<sup>3)</sup>。光源には、300W の Xe ランプを使用し、分光器により単色化された光をメカニカルチョッパーにより 33Hz で変調した後に密閉された PA セル内部の試料に照射した。試料表面での光熱変換現象による温度変化から発生する PA セル内部の周期的な圧力変化をマイクロフォンで検出し、プリアンプで増幅した後ロックインアンプでチョッパーと同期した信号のみをコンピュータに取り込むことによりデータを得た。また、カーボンブラックシートの光音響信

号は光源強度に比例すると仮定し光源強度補正に用い、測定波長範囲は 270nm ~ 800nm とした。

光電気化学特性の評価には、PA スペクトル測定と同様の光源系を用い、信号の検出には石英セル、CdSe を吸着した FTO 電極、Pt 対極、1M の KCl と 0.1M の Na<sub>2</sub>S を混合した電解質水溶液<sup>5)</sup> から成る PEC セルを用い、発生する電流を無抵抗電流計により検出した。励起光強度補正には PA スペクトル測定と同様にカーボンブラックシートの光音響信号を用い、測定波長範囲は 270nm ~ 800nm とした。

### 3. 結果と考察

Fig. 1 と Fig. 2 に 10 分で CdSe 吸着時間を変化させた FTO ガラスの PA スペクトルと、10 分で CdSe を 8 時間吸着させたナノ構造 SnO<sub>2</sub> 電極の PA スペクトルを示す。CdSe 量子ドットを吸着すると FTO ガラスのみの PA 信号強度に比べて、低エネルギー側での PA 信号強度が吸着時間に依存して大きくなっていくことがわかる。PA スペクトルの肩の位置が第一励起状態のエネルギーに対応すると仮定すると、バルク CdSe のバンドギャップである 1.7eV よりも大きいことから量子閉じ込め効果が起こっていることが示唆される。また、PA スペクトルの肩の位置が吸着時間の増加と共に低エネルギー側へと移動していることから吸着時間の増加と共に CdSe の粒径が増加していると考えられる。また、CdSe を 8 時間吸着させたナノ構造 SnO<sub>2</sub> 電極の PA スペクトルでは、吸着時間が 8 時間であるにも関わらず、CdSe による PA 信号が FTO ガラスに吸着したときよりも顕著に表れ、スペクトルの形状も異なる。また、SnO<sub>2</sub> ナノ粒子で薄膜を形成することにより表面積が増大し、より多くの CdSe が吸着したため PA 信号の飽和が見られる。

Fig. 3 に CdSe 量子ドットを吸着した FTO ガラス表面の SEM 像を示す。CdSe 吸着時間が増加するにつれて、FTO 表面に CdSe 粒子が徐々に吸着し吸着時間が 24h の FTO ガラスの表面は粒径が数十 nm の CdSe 粒子に覆われてしまっていることが分かる。しかし、PA スペクトルから CdSe 量子ドットの粒径は ~ 5nm と見積もることができるため、大きな CdSe 粒子はナノメートルサイズの粒子が集合した二次粒

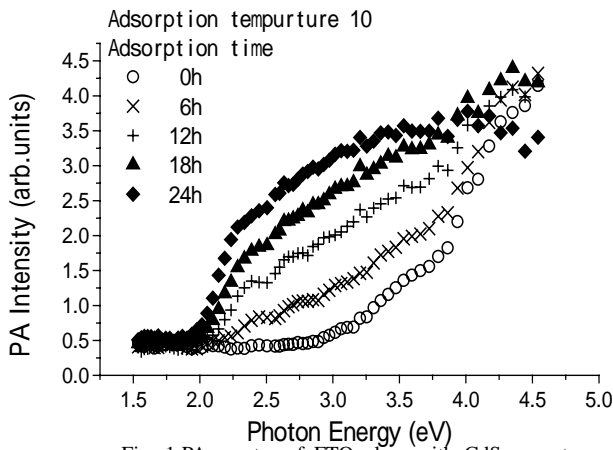


Fig. 1: PA spectra of FTO glass with CdSe quantum dots for different adsorption time.

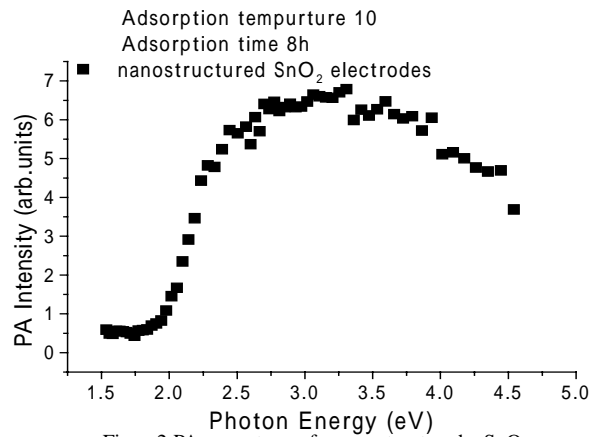


Fig. 2: PA spectra of nanostructured SnO<sub>2</sub> electrodes with CdSe quantum dots.

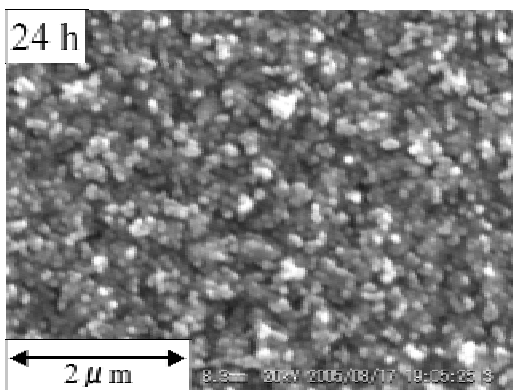
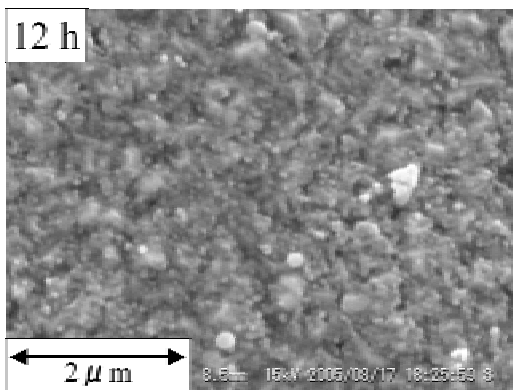
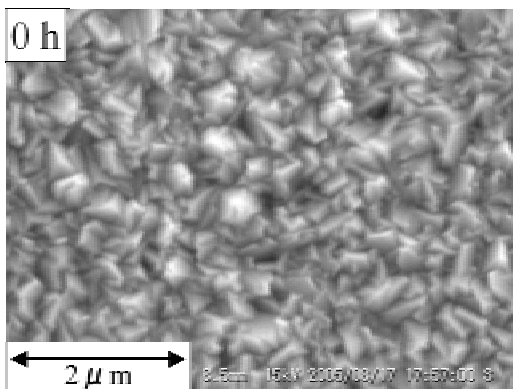


Fig. 3: SEM images of FTO glass with CdSe quantum dots for different adsorption time.

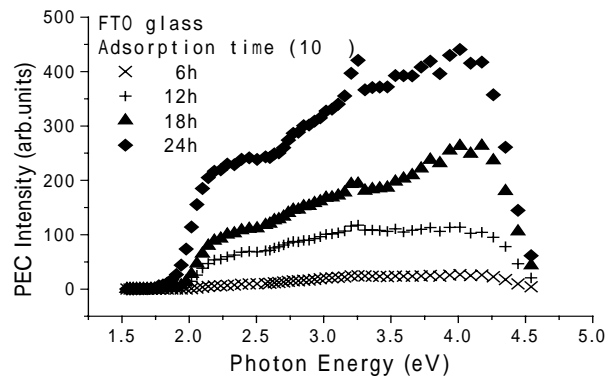


Fig. 4: PEC spectra of FTO glass with CdSe quantum dots for different adsorption time.

子系と考えられる。

Fig. 4 に CdSe 吸着時間を変化させた FTO ガラス電極の PEC スペクトルを示す。CdSe を吸着した電極では、2.0eV 付近に PEC スペクトルの立ち上がりがあることがわかる。このことから CdSe 量子ドットで光励起された電子が FTO の伝導帯へと移動していることが確認された。CdSe 吸着時間に依存して PEC スペクトル強度が増加しているのは、CdSe 吸着量の増加に伴い光吸収量が増加したために FTO の伝導帯へと移動する電子が増加したためであると考えられる。

謝辞：本研究の一部は、文部科学省科学研究費基盤研究(C)(No. 15510098)、若手研究(B)(No. 1475064)、特定領域(417)(No. 155033224)の助成を受けて行われました。

引用文献

- 1) Q. Shen, and T. Toyoda : Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 2946.
- 2) Q. Shen, D. Arae and T. Toyoda : J.Photochem. Photobiol. A : Chem. **164** (2004) 75.
- 3) A. Rosenwaig and A. Gersho : J. Appl. Phys. **47** (1976) 64.
- 4) S. Gorer and G. Hodes : J. Appl. Phys. Chem. **98** (1994) 5338.
- 5) R. Vogel, K. Pohl and H. Weller : Chem. Phys. Lett. **174** (1990) 241.

## Ag 添加 Cu<sub>2</sub>SiS<sub>3</sub> 結晶粒の構造と光音響スペクトル Structure and Photoacoustic Spectra of Ag-doped Cu<sub>2</sub>SiS<sub>3</sub> Particles

○有賀敦、岡本庸一 (防衛大 材料)

Atsushi Aruga and Yoichi Okamoto (Natl. Def. Acad., Dept. of Mat. Sci. & Engr.)

### 1. はじめに

閃亜鉛鉱 (cubic-ZnS) やウルツ鉱 (hexagonal-ZnS) に代表される四面体型構造をとる化合物群は電氣的に半導体のものが多く、類似構造をとる化合物の元素の組み合わせや組成の範囲は古くから研究されている [1]。この中で、Cu<sub>2</sub>SiS<sub>3</sub> は 2 価の Zn 3 個に対して 1 価の Cu 2 個と 4 価の Si 1 個で置き換えたもので、四面体型構造をとる化合物のなかでは境界領域に属している。その結晶構造は閃亜鉛型やウルツ型の超構造 [2, 3] などをとるが、前者は黄色で透明な自形の単結晶が容易に得られ、しかも空气中で安定であることから、光半導体としての利用が考えられる。この Cu サイトを同じ 1 価の Ag で置換した Ag<sub>2</sub>SiS<sub>3</sub> の組成は、合成すると赤色を呈す。しかしながら、この物質は非常に不安定で空気に触れると速やかに分解してしまう。そこで、安定な Cu<sub>2</sub>SiS<sub>3</sub> に Ag を固溶させて、どこまでこの結晶構造が安定に維持されるかを調べてみた。

合成される試料が百マイクロン程度の結晶粒として得られるので、まず、単結晶を用いて格子定数の精密化を行うことにより Cu に対する Ag の固溶限界を見積もった。このうち Ag が最も固溶した単結晶について結晶構造解析を行なうことにより、結晶構造のゆがみの程度を調べた。さらに、この試料が粉末状態なので、一般的な分光器では光学的特性を測定しにくい。そのため、光音響分光法を用いて、粉末試料そのままの状態を調べてみた。これらことから、標記結晶粒の光半導体としてのポテンシャルを探った。

### 2. 試料作成および測定

結晶粒の合成は、各元素の単体を所定の組成 {(Cu, Ag) : Si : S = 2 : 1 : 3 [mol]} で混合し、シリカチューブ中に真空封入してから電気炉で焼成するという、いわゆる "シリカチューブ

溶融法"で行った。原料粉末としては高純度化学研究所の銅 (純度 99.99%, 形状 ~1 μm)、銀 (純度 99.9%, 形状 ~2 μm)、硫黄 (純度 99.99%, 形状 #20) 及びレアメタリック社のケイ素 (純度 99.99%, -150 mesh) を用いた。Cu に対する Ag の添加量は 0.0, 0.5, 1.0, 2.0, 3.0, 5.0 mol% とし、焼成は 800 °C で 7 日間保持してから徐冷した。結晶相の同定は粉末 X 線回折 (XRD) 法で行い、すべての組成の試料で Cu<sub>2</sub>SiS<sub>3</sub> (PDF#19-404) の XRD パターンと一致した。

Ag の固溶限界を見積もるために、各合成物の中から実体顕微鏡下で単結晶候補を選び出し、四軸自動回折装置 (Enraf Nonius 社製; Cad4) 上で回転写真を撮り、結晶の良否を判定した。各組成について良好な単結晶数粒について、それぞれピークサーチして軸立て後、精密化した高角の 2θ 反射を用いて格子定数の精密化を行った。その結果、固溶限界は 2.0 mol% であることがわかった。

構造解析に用いた単結晶は Ag を 2 mol% 添加して合成したもので、自形の黄色透明な結晶 (0.125 × 0.125 × 0.113 mm<sup>3</sup>) で、上記の自動回折装置で晶系・空間群の確認後、格子定数の精密化をしてから、反射強度データを収集した。その結果、晶系は正方晶 [4] ではなく単斜晶系に属し、 $a = 0.63405(6)$ ,  $b = 1.1257(2)$ ,  $c = 0.62812(7)$  [nm],  $\beta = 107.464(9)$  [deg],  $V = 0.42765(9)$  [nm<sup>3</sup>],  $Z = 4$ ,  $d_c = 3.93$  [g/cm<sup>3</sup>] であった。消滅則が (hkl) 面で  $h+k=2n$ , (h0l) 面で  $l=2n$  だったので、空間群は Cc または C2/c に絞られた。構造解析は統合ソフト maXus (マックスサイエンス製) を用いて、はじめ直接法 (Sir97) でモデルを見つけ、空間群は対称心のない Cc であった。独立な 1108 反射 ( $F_o > 4\sigma |F_o|$ ) を用いて最小二乗法で精密化した結果、等方性温度因子で  $R=0.072$  となり、異方性温度因子で  $R=0.061$  となった。

PAS の測定はマイクロフォン法により行った。光源には短波長領域 (350 ~ 700 nm) では出

力 500 W のキセノンランプを、長波長領域 (400~1600 nm) では 300W のハロゲンランプを用いて、モノクロメータで単色化された光をチョッパーで断続して試料に照射した。測定は短波長領域(350~700 nm)では 2 nm 毎に、長波長領域(400~1600 nm)では 5 nm 毎に行い、変調周波数は約 20Hz として、カーボンブラックの PA 信号により光源強度を補正した。

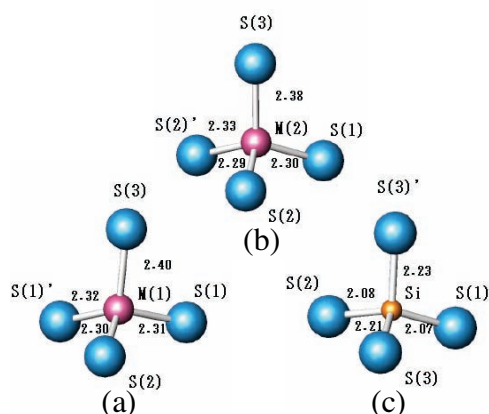
### 3. 結果と考察

**Table 1** に 2 mol%Ag 添加  $\text{Cu}_2\text{SiS}_3$  の構造解析の結果である、原子座標位置(x,y,z), 等価温度因子(Ueq.)及び部分原子価の総和( $\sum s_i$ )を示す。M サイトの占有率は Cu を 0.98, Ag を 0.02 とした。結合距離から計算[5]で求めた  $\sum s_i$  の値より、M サイトは若干共有結合性を、逆に Si サイトはイオン結合性が増している。

**Table 1** Atomic coordinates, temperature factors, and bond valence sums  $\sum s_i$

Atom	x	y	z	Ueq.	$\sum s_i$
M(1)	-0.6540(1)	0.5907(6)	0.3030(1)	0.017(3)	1.1
M(2)	0.1571(1)	0.2537(6)	-0.1931(1)	0.018(3)	1.1
Si	0.1824(3)	0.4168(1)	0.2805(4)	0.008(3)	3.9
S(1)	-0.0487(3)	0.5727(1)	0.1513(3)	0.007(3)	2.0
S(2)	0.5246(3)	0.4172(1)	0.1899(3)	0.010(3)	2.0
S(3)	-0.0397(2)	0.2667(1)	0.1877(3)	0.009(3)	2.1

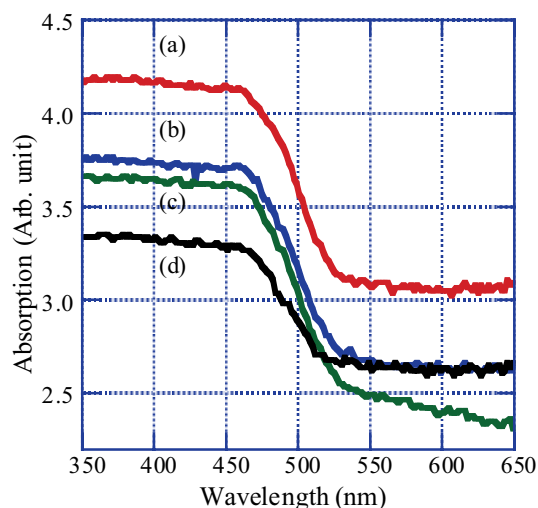
**Fig.1** に示すように、陽イオン金属はすべて硫黄により 4 配位され、四面体型  $\text{M}(1)\text{S}_4$ ,  $\text{M}(2)\text{S}_4$ ,  $\text{SiS}_4$  配位多面体を形成し、これらは四面体の頂点を共有して規則的に結合している。全体として閃亜鉛鉱型の 3 倍の超構造をとっている。



**Fig.1** Coordination polyhedra in 2 mol% Ag doped  $\text{Cu}_2\text{SiS}_3$ ; (a)  $\text{M}(1)\text{S}_4$ , (b)  $\text{M}(2)\text{S}_4$ , (c)  $\text{SiS}_4$ .

**Fig.2** に Ag 添加  $\text{Cu}_2\text{SiS}_3$  の各試料について測定した、紫外・可視光領域の PAS スペクトル

を示す。どのスペクトルもだいたい 423 nm 辺りから遷移が始まり、523 nm 辺りで遷移が終わる。遷移幅は約 50 nm で、50 %点では Ag 添加量 0.0, 1.0, 2.0, 3.0 mol%の順に 499, 498, 497, 491 nm となった。これは固溶限界までは Ag はバンドギャップにほとんど影響を及ぼさないが、固溶できない過剰な Ag は遷移の始まりを短波長側にシフトさせる。即ちバンドギャップが若干広がることがわかった。



**Fig.2** PA spectra of Ag doped  $\text{Cu}_2\text{SiS}_3$  particles; (a) 0.0, (b) 1.0, (c) 2.0, (d) 3.0 mol% Ag doped.

### 4. まとめ

Ag 添加  $\text{Cu}_2\text{SiS}_3$  結晶粒を合成して、固溶限界を求めると共に結晶構造を解析したところ、Ag は 2.0 mol%までは固溶でき、 $\text{Cu}_2\text{SiS}_3$  と同型である閃亜鉛鉱型の超構造をとる。また、PAS の測定より固溶限界まではバンドギャップにほとんど影響を与えないが、過剰の Ag により若干ワイドギャップになることがわかった。

### 参考文献

1. E Parthe, Z. Krist. **119** (1963) 204.
2. X.-a. Chen, H. Wada, A. Sato, H. Nozaki: J. Alloys & Comp. **290** (1999) 91.
3. E. Parthe and J. Garin: Monatsh. Chem. **102** (1971) 1197.
4. J. Rivet: Ann. Chim. **10** (1965) 243.
5. O. Slupeaceki and I. D. Brown: Acta Cryst. **B38** (1982) 1078.

# レーザ光偏向法による音場分布の測定

## Probing Sound Fields using Optical-Beam Deflection Method

山口幸記、崔 博坤 (明大 理工)  
Kouki Yamaguchi and Pak-Kon Choi (Meiji University)

### 1. はじめに

より精密な音圧測定法を確立させることを目的として、超音波による光偏向現象を利用した音場測定を行っている。これまで円形音源、ガウス型音源からの近距離音場測定の結果を報告した<sup>1)</sup>。今回は、振動子には円形の集束型音源振動子を使用し、ハイドロホンを用いた音圧分布の測定も行い、本測定法による測定結果との比較を行った。位相についての測定も行い、本研究で問題となる光学積分効果についての考察を行った。

### 2. 実験

本研究で用いた実験装置はすでに報告したものと同一である。1)振動子は電極径 18.4mm、曲率半径 40mm、共振周波数 2.142MHz の集束型セラミック振動子を使用した。光源には波長 632nm の He-Ne レーザを使用する。ここで、本測定法で問題となる光学積分効果による影響を考慮し、レーザは一度ビーム径を約 16mm に拡大させ、セル手前のレンズ(焦点距離 100mm)で集束させて音場に入射させる。レーザの集束点が測定するポイントとなる。音波強度に比例した偏向角をもつ光の位置を PSD (Position Sensitive Detector) で検出した。音場 mapping のため、セルを固定したステージを上下に 0.5mm 間隔で手で動かす、超音波伝播方向には自動ステージで 2mm 間隔で移動させることで入射レーザー位置を走査させた。伝播させる超音波は、ファンクションジェネレータを 60 波のバースト波に設定し発生させた。試料には純水を使用した。P.VDF ハイドロホンを用いた実験では、同様に純水を使用し、3次元の自動ステー

E-mail: pkchoi@isc.meiji.ac.jp

ジを用いて水平方向については中心位置で固定し、上下に 0.5mm、超音波伝播方向には 2mm 間隔で移動させて測定を行った。ハイドロホンはニードル型(径 0.5mm)で、校正値は 2MHz で 44nV/Pa であった。

### 3. 結果

Fig.1 は、中心軸上、音源からの距離を変えて測定を行った結果である。黒丸が光偏向による測定値、破線がハイドロホンによる測定値、細い実線が理論計算値を表している。計算値と測定値の極大位置が一致するように計算を行った。ハイドロホンと光偏向法の極小部分については約 1mm のずれている程度であるが、計算値のみが約 8mm ほどのずれがあることがわかる。

計算値は複雑な回折音場を示している。ハイドロホンについても多少の打ち消し合いを見ることが出来る。光偏向については光学積分効果による影響から、ごく近距離での音場については打ち

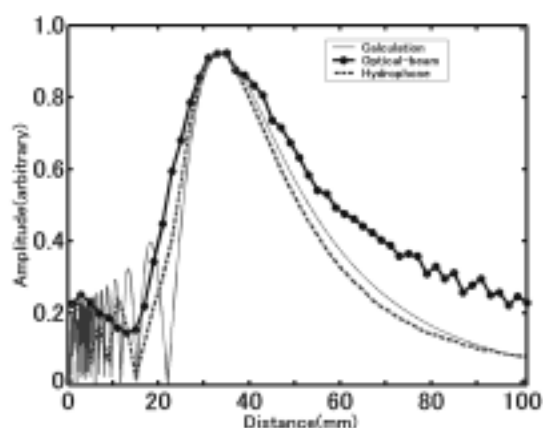


Fig.1 Comparison of measured values with the optical-beam deflection (closed circles) and the hydrophone (dashed line) along the central propagation axis. The thin solid line represents calculated values of sound pressure

消しは起きず 15mm 付近で最小を示すのみである。また最終極大後の減衰の仕方も他の 2 つに比べて明らかになだらかであることが分かる。ここで、ハイドロホンの測定結果から極大値における音圧値は約  $4.5 \times 10^5 \text{Pa}$  であった。

レーザ光経路は振動子径方向であるから、メインローブとサイドローブの両方の部分を通過する。メインローブとサイドローブでは位相が反転していることが知られている。そのことを確かめるため、伝播距離を固定し、径方向にレーザビームを走査しながら偏向信号の位相を計測した。ハイドロホンでも位相測定を行った。Fig. 2 は焦点(伝播方向距離約 40mm)の手前の伝播方向距離 30mm に固定したときの結果である。ハイドロホンの結果は中心軸が最も位相が遅れており、径方向距離 3.5mm のあたりから位相がほぼ だけ進んでいて、位相が反転し始めている。しかし光偏向の結果については、径方向距離  $\pm 2.0\text{mm}$  のところまではほぼ一致しているが、それ以上の部分では逆に位相は遅れてきている。光偏向法の場合この部分 ( Fig. 2 における径方向距離  $\pm 2.5 \sim \pm 3.5$  の地点) での信号が非常に微弱であり測定が困難であったので、この結果については測定上の誤差なのか光学積分効果による影響かはまだ断定することは出来ない。

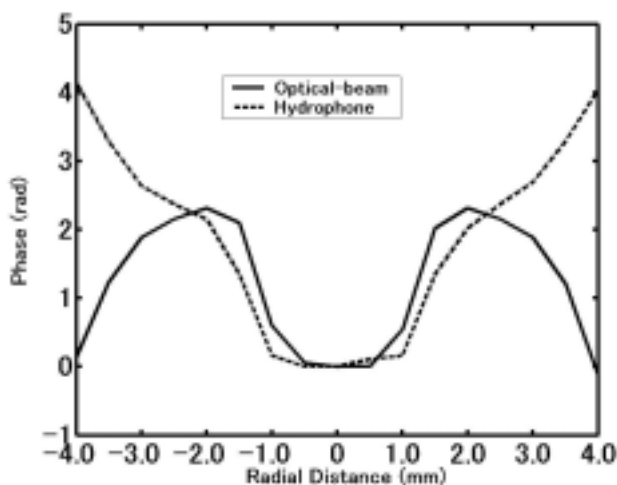


Fig.2 Measured results of the relative phase using the optical-beam deflection (solid line) and the hydrophone (dashed line) at the position before the focal point,  $z=30$  mm.

Fig 3 に焦点直後の伝播方向距離 40mm に固定し径方向の位相を測定した結果を示す。ハイドロホンと光偏向法の測定結果はほぼ一致している。焦点手前の位相分布と異なり、中心軸位置が最も位相が進んでいること分かる。メインローブがほぼ だけ位相が進んでいる。この結果は光学の回折理論と定性的に一致している<sup>4)</sup>。また、メインローブ内では、位相はほぼ一定であることもわかる。位相が異なっている場所を光が順次通過すると、光偏向信号としては打ち消しあうことになる。光偏向の観測結果において、メインローブの幅が狭くなっているのは、その打ち消しが起きているためと考えられる。この積分効果の範囲を決定することによって焦点近傍の音圧が求められるはずである。

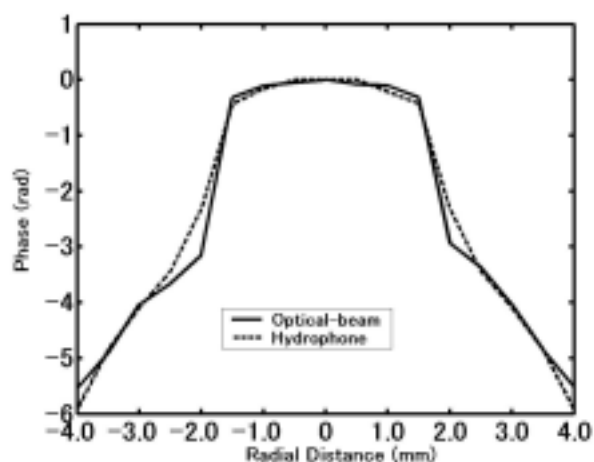


Fig.3 Measured results of the relative phase using the optical-beam deflection (solid line) and the hydrophone (dashed line) at the position after the focal point,  $z=40$  mm.

集束音場についてご教授頂きました斎藤繁実先生に感謝致します。

#### 参考文献

- 1) 戸谷美和、崔博坤、斎藤繁実：日本音響学会 春季演論文集 (2002) pp.1095-1096.
- 2) P.-K. Choi, T. Ezawa, G. Kudoh, J. Acoust. Soc. Jpn. (E), 20(1999) pp.313-318
- 3) 斎藤繁実：日本音響学会誌 57 巻 8 号 (2001) pp.523-528
- 4) M. Born and E. Wolf, 「光学の原理」, p.664.

# ラム波による側圧を用いた

## 光ファイバー光の偏波面回転

### Rotation of polarized wave in optical fiber using stress-induced by Lamb wave

○末原裕史郎、中川恭彦、垣尾省司 (山梨大院 医工)  
Yujiro Suehara, Yasuhiko Nakagawa and Shoji Kakio ( University of Yamanashi)

#### 1. はじめに

光ファイバーに側圧を印加すると複屈折性が生じ、偏波面が回転することが知られている。これまで、側圧印加によるモード結合を利用した波長間隔可変フィルタ[1]や、偏波面維持光ファイバーに側圧を印加したときに起こるモード結合を利用した可変光波機能回路[2]が提案されている。

本研究では、圧電基板上にラム波を励起し光ファイバーに接着させ、ラム波による熱応力によって生じた側圧が光ファイバー光の偏波面を回転させる事ができることを明らかにする。静的な側圧印加の実験と比較し、ラム波による偏波面回転を実験的に確認した。

#### 2. ラム波による偏波面回転の原理

Fig.1 に示すように LiNbO<sub>3</sub> 基板と光ファイバーを接着しラム波を励振する。ラム波によって発生する熱応力により光ファイバー中の光弾性効果を引き起こし、複屈折が生じるため光ファイバー中の光は速軸と遅軸に速度差が生じ、直線偏光は楕円偏光になり偏波面が回転する。

#### 3. ラム波による偏波面回転実験

ラム波基板を光ファイバーに接着して光偏波面回転実験を行った。実験系を Fig.2 に示す。光源は He-Ne レーザー(632.8nm)を使用した。熱応力による回転を測定するため、光ファイバーからの出力光を検光子に通し光量変化を測定した。ラム波基板は厚さ 530 μm、幅 10mm 長さ 15mm の Y-Cut Z 方向伝搬 LiNbO<sub>3</sub> 基板を周波数 18.8MHz で使用した。Fig.3 に検光子を回転させた時の光量の変化を示す。偏波面回転による光量変化は直流の値が 1/2 の時に最も大きくなるため、検光子を半値の時に固定しラム波を励振した。

光量の時間変化を確認するためラム波基板にバースト信号を入力した。Fig.4 にラム波の受信端電圧と光量変化を示す。Fig.4 の光量変化から Fig.3 におけるラム波による偏波面回転角 Δθ を求めることができる。

Fig.5 にラム波の入力電圧を増加させた時の偏波面回転角 Δθ を示す。Fig.5 から Δθ は入力電圧の二乗に比例することがわかる。これは熱応力が入力電圧の二乗に比例することを示す。

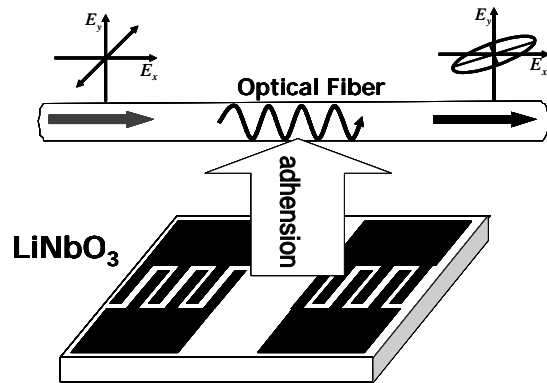


Fig.1 Optical modulator.

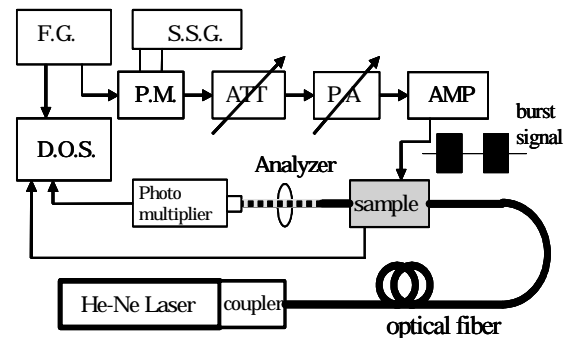


Fig.2 Experiment system.

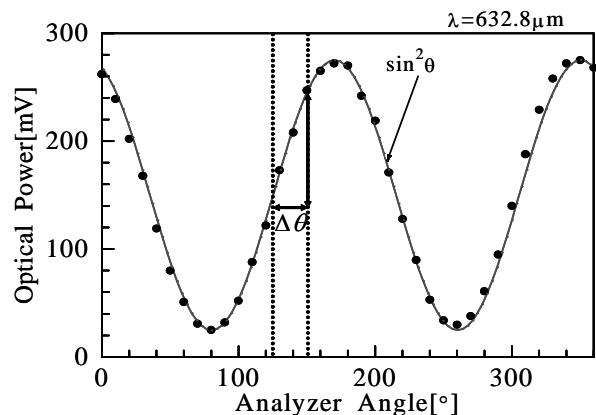


Fig.3 Output optical power through the analyzer.

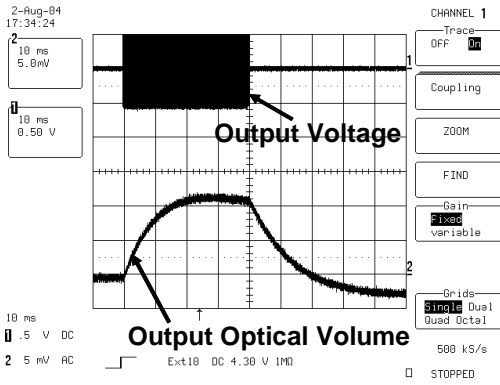


Fig.4 Output optical power of photo multiplier (f=18.8MHz).

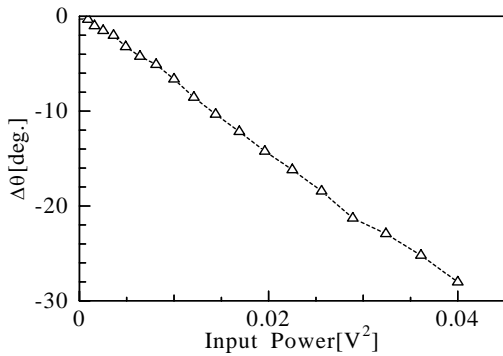


Fig.5 Rotation of polarization with lamb wave.

#### 4. 側圧印加実験

ラム波と静的な側圧による偏波面回転と比較するため、光ファイバーに静的な側圧を印加し光弾性効果を引き起こすことで偏波面回転を得る実験を行った。

実験は光ファイバー上にガラスを乗せその上に錘を乗せる事により側圧を印加した。

光ファイバー中の光波は式(1)の電場ベクトルで表すことができ、直線偏光では位相差  $\delta = 0$ 、角度  $\theta = \theta_0$  である。応力を印加することにより直線偏光は楕円偏光へ変化し、式 (2) で表すことができる。この様子を Fig.6 に示す。

$$\begin{aligned} E_x &= a_1 \cos(\tau + \delta_1) \\ E_y &= a_2 \cos(\tau + \delta_2) \end{aligned} \quad (1)$$

$$\left(\frac{E_x}{a_1}\right)^2 + \left(\frac{E_y}{a_2}\right)^2 - 2\left(\frac{E_x}{a_1}\frac{E_y}{a_2}\right)\cos\delta = \sin^2\delta \quad (2)$$

$$\cos\delta = \tan 2\theta / \tan 2\theta_0 \quad (3)$$

実験において角度  $\theta$  と楕円の長軸と短軸の長さの比を測定することにより式(3)から位相差  $\delta$  を求めることができる。Fig.7 に応力に対すると角度  $\theta$  と位相差  $\delta$  を示す。Fig.7 からその関係は線形であることがわかる。

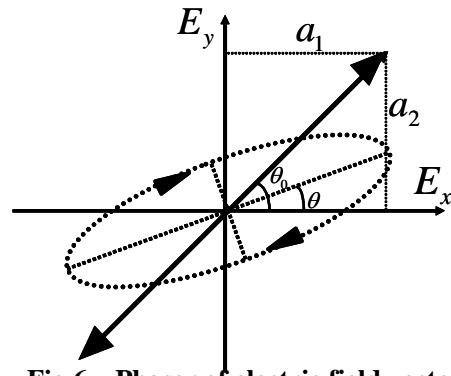


Fig.6 Phaser of electric field vector.

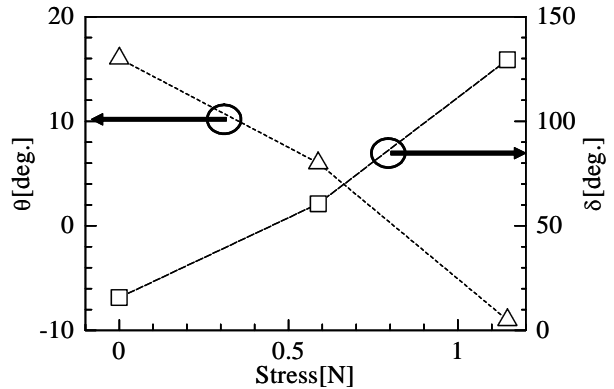


Fig.7 Rotation of polarization and phase difference with stress.

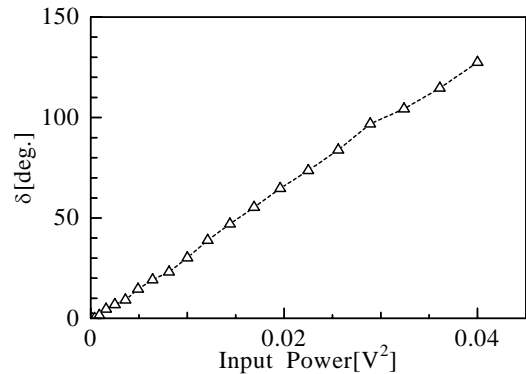


Fig.8 Phase difference with lamb wave.

#### 5. ラム波と静的な側圧の偏波面回転の比較

ラム波と静的な側圧による回転はどちらも線形である。よって Fig.5 と Fig.7 からラム波によって生じる位相差を求めることができる。その結果を Fig.8 に示す。その結果本実験系においては側圧 1N に対するラム波励振電圧 174.39mV に相当することが分かった。

#### 6. まとめ

ラム波による熱応力によって生じた側圧を用いて、光ファイバー光の偏波面を回転させることができることを、実験的に確認した。

#### 参考文献

- [1] 馬場,山下:信学技法,OSC2001-45 (2001) 1
- [2] 西島,山下:信学技法,OPE2003-18 (2003) 17

# 弾性表面波を用いた導波路型音響光学変調素子の光回折特性の改善

## Improvement of Diffraction Properties in Waveguide-Type Acoustooptic Modulator Driven by Surface Acoustic Wave

◎魚谷真司 垣尾省司 中川恭彦 (山梨大院・医工) 原武文 伊藤弘昌 (東北大・通研)  
小林哲也 渡辺正行 (オプトクエスト)

Shoji Kakio, Shinji Uotani, Yasuhiko Nakagawa (Univ. Yamanashi), Takefumi Hara, Hiromasa Ito (Tohoku Univ.),  
Takashi Iizuka, Tetsuya Kobayashi, and Masayuki Watanabe (Optoquest Corp.)

### 1. はじめに

著者らは、光波長  $1.55\mu\text{m}$  においてブラッグ回折光が得られるプロトン交換  $\text{LiNbO}_3$  導波路型音響光学変調素子 (AO Modulator : AOM) を提案し[1], 周波数シフト帰還型ファイバレーザへの適用[2], 光マトリックススイッチへの応用を検討している. しかし, 素子を駆動した際の光損失が大きく, 最大回折効率が 60%程度に制限されるという問題点がある. ビーム伝搬法 (Beam Propagation Method : BPM) を用いた導波光伝搬, および光回折特性の解析により, これらの問題点は, 入出力ポートと光回折部を接続しているテーパ導波路における導波光の複雑な干渉に起因することを示した[3].

本報告では, 導波路光回折部に対する SAW ビームの配置と光回折特性の関係を検討し, 素子の高効率化を図った結果について述べる.

### 2. 光回折特性のBPM解析

Fig. 1 に BPM 解析, および実験に用いる導波路型 AOM の概観を, Fig. 2 に光回折部の導波路解析モデルをそれぞれ示す. Port1 は入力ポート, Port3, Port4 はそれぞれ回折光出力ポート, 非回折光出力ポートである. 各ポートの導波路幅 ( $10\mu\text{m}$ ) をテーパ導波路で  $W=120\mu\text{m}$  に拡大し, これらを  $2\theta_B=2.02^\circ$  ( $\theta_B$ : ブラッグ角) の角度で交差させて光回折部とした構造を採用している.

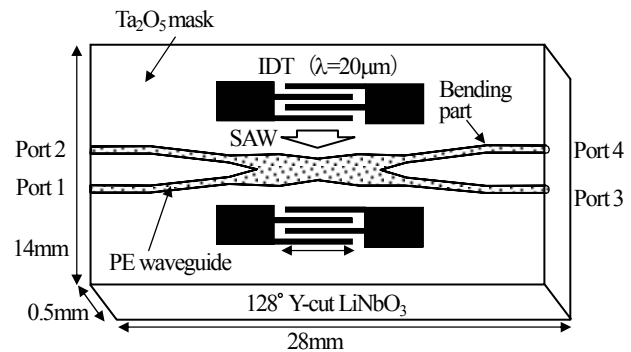


Fig. 1 Configuration of waveguide-type AOM.

前報[3]と同様に, SAW ビームに相当する位置に,  $\Delta n_g \sin(2\pi x / \Lambda)$  で表される屈折率グレーティングを設定することにより, SAW による光回折特性の解析を行った. 複雑な干渉を示すテーパ導波路拡大部付近からグレーティングを遠ざければ, 光回折特性が改善されると考えられる. この効果を解析するために, Fig. 2 において光回折部 (幅  $L=3.0\text{mm}$ ) の中央と, グレーティング (幅  $L_g$ ) の中央を一致させて配置し,  $L_g$  を変化させた場合 ( $0.5 < L_g < 3.0\text{mm}$ ) の導波光伝搬を解析した. グレーティング周期  $\Lambda$  は実際の素子の IDT 波長と等しい  $20\mu\text{m}$ , 光波長は  $1.55\mu\text{m}$ , 伝搬モードは TM モードとした.

$L_g=1.0\text{mm}$  と  $3.0\text{mm}$  の場合について,  $\Delta n_g$  に対する Port3 と Port4 の導波光パワー  $P_3, P_4$  を Fig. 3 に示す. Port1 の入力導波光パワーで規格化してある. 図中曲線は, 解析結果を  $\sin^2$  曲線でフィッティングし

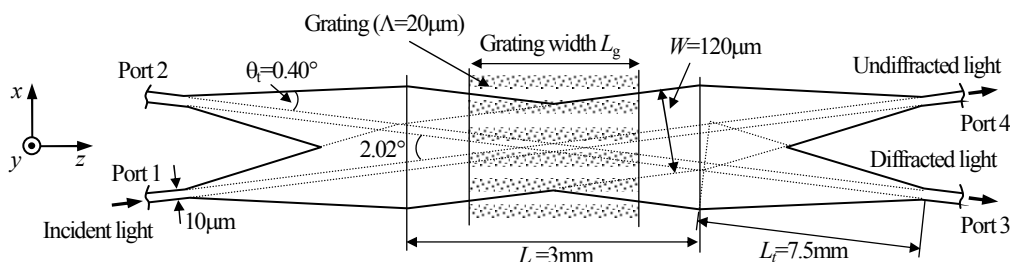


Fig. 2 Analytical model in diffraction region of waveguide-type AOM.

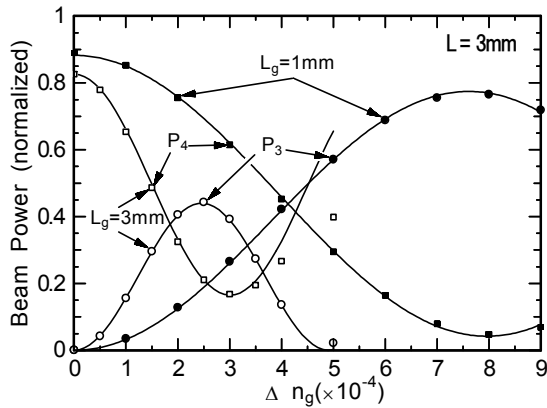


Fig. 3 Calculated diffraction efficiency.

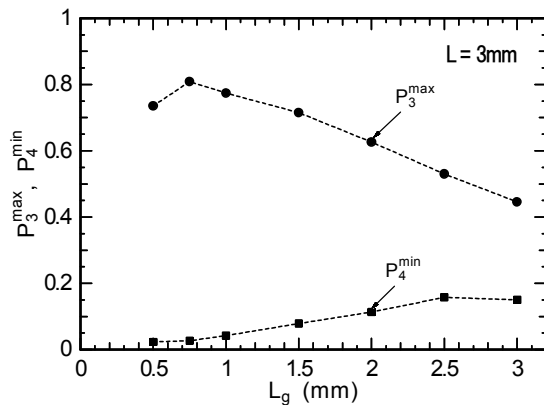


Fig. 4 Calculated beam power  $P_3^{\max}$  and  $P_4^{\min}$  as a function of grating width  $L_g$ .

たものである。 $L_g$ を小さくすることにより、 $P_3$ の最大値  $P_3^{\max}$  が大きくなること、 $P_4$ の最小値  $P_4^{\min}$  が小さくなること、両者のピークを示す  $\Delta n_g$  の差が小さくなるのがそれぞれわかる。

$L_g$  に対する  $P_3^{\max}$ ,  $P_4^{\min}$  を Fig. 4 に示す。 $L_g=0.8\text{mm}$  付近で最も良好な光回折特性を示すことがわかった。ただし、 $L_g$  (SAW ビーム幅) を小さくすると、 $P_3^{\max}$ ,  $P_4^{\min}$  を示す  $\Delta n_g$  の値が大きくなる。すなわち最大回折効率を得るための入力 SAW パワーが大きくなる。SAW ビーム幅を狭くする代わりに、導波路サイズを拡大しても同様の効果が得られると考えられる。

### 3. 光回折効率の測定

上述の解析結果に従って、SAW ビーム幅を導波路光回折部の幅よりも狭くした素子を作製し、その光回折特性を評価した

これまでと同様に、 $128^\circ\text{Y}$  カット  $\text{LiNbO}_3$  基板上に  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  マスクをパターンニングしプロトン交換導波路を形成、端面研磨後に Al 製 IDT (波長  $20\mu\text{m}$ ) を

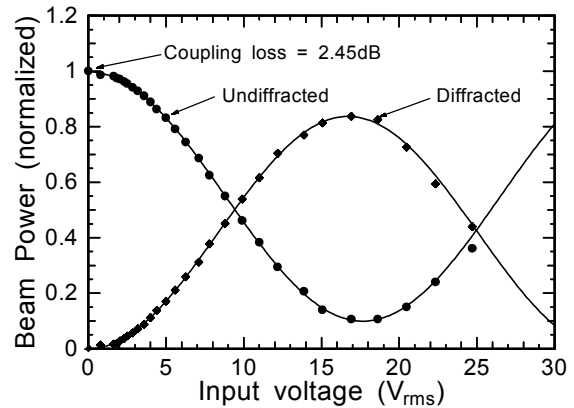


Fig. 5 Measured diffraction efficiency for sample with  $L=4\text{mm}$  and  $L_g=2\text{mm}$ .

設け、導波路型 AOM を作製した。Fig. 2 の光回折部形状において、光回折部の幅  $L$  を 3.4, 4mm, SAW ビーム幅 (IDT 交差幅)  $L_g$  を 2, 3mm とし、 $L_g < L$  となる組み合わせで試料を作製した。 $L_g=2\text{mm}$  の IDT 対数は 30 対、3mm では 20 対である。

$1.55\mu\text{m}$  の LD を光源とし、前報と同様の測定系により光回折特性を測定した。最も大きな回折効率を示した  $L=4\text{mm}$ ,  $L_g=2\text{mm}$  の試料の光回折特性を Fig. 5 に示す。これまでよりも約 20% 大きな 83% の最大回折効率を得られた。しかし、非回折光パワーの最小値 (10%) に改善はみられなかった。また、両者のピークを示す電圧の差が約  $3\text{V}_{\text{rms}}$  発生していたが、この差が  $1\text{V}_{\text{rms}}$  に減少した。他の試料の光回折特性も同様の傾向を示した。

### 4. まとめ

導波路型 AOM において、光回折部に対する SAW ビームの配置と光回折特性の関係について検討した。SAW ビーム幅を、導波路光回折部の幅よりも狭くすることにより、83% の回折効率を得られた。

### 謝辞

本研究は東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究、及び総務省戦略的情報通信研究開発推進制度の援助を受けており関係諸氏に深謝致します。

### 参考文献

- [1] S. Kakio, N. Zou, M. Kitamura, H. Ito, and Y. Nakagawa : Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) 3063.
- [2] 垣尾, 北村, 中川, N. Zou, 原, 伊藤, 飯塚, 小林, 渡辺 : 信学論 **J-86-C** (2003) 1263.
- [3] S. Kakio, S. Uotani, Y. Nakagawa, T. Hara, H. Ito, T. Iizuka, T. Kobayashi and M. Watanabe : Jpn. J. Appl. Phys., **44**, (2005)4472.

# コリニア音響光学素子を用いたフォトニックルーティングにおける光符号方式の検討

## Optical Coding Methods in Photonic Routing Using Collinear Acoustooptic Devices

○後藤 信夫 (豊橋技科大) 宮崎 保光 (愛知工大)  
Nobuo Goto (Toyohashi Univ. of Tech.) Yasumitsu Miyazaki (Aichi Univ. of Tech.)

### 1. はじめに

フォトニックラベルルーティングシステムの基本構成要素である光スイッチングと光ラベル処理の高速化をめざした種々の研究が活発に行われている。筆者らは、コリニア音響光学(AO)素子<sup>1-5)</sup>における多波長制御性を活かしたラベル識別への適用に関して検討を行ってきた。特に、光波長領域での光符号を用いるシステム<sup>6)</sup>および時間領域での光符号を用いるシステム<sup>7)</sup>に関して検討を行ってきた。

本報告ではコリニア AO 素子の WDM 光に対する波長選択的なスイッチング特性をより活かしたラベルの相関処理が可能となる光符号方式に関して検討を行う。

### 2. フォトニックルーティングシステム

フォトニックルーティングシステムにおいて、IP パケットに付加したラベルによる高速ルーティングシステムを図1に示す。本論文ではコリニア AO スイッチを図1のシステムにおけるラベル認識に適用するための検討を行う。スイッチ制御には電気信号を用い、また、ラベル処理における相関処理以外の信号処理も電気的な処理を想定している。

### 3. フォトニックルータにおけるラベル識別

光学的な高速ラベル処理として PSK 変調光パルスによる干渉を利用した受動的システム等が報告されている。コリニア AO 素子ではスイッチングにはμs 程度要するが、WDM 光に対する処理が容易となり簡易なシステム構成が可能となる。図2に示すように、

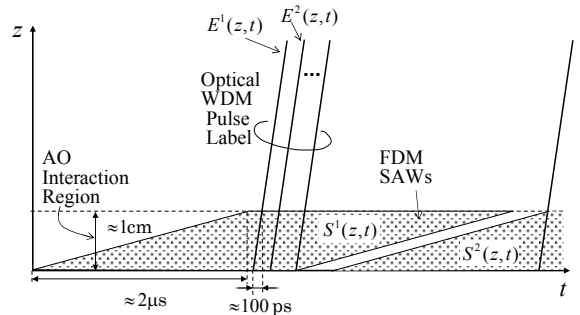


Fig.2 Optical label processing with collinear AO device.

制御に用いる弾性表面波 (SAW) の伝搬に時間を要するが、その後、高速な光パルス列を処理することが可能である。WDM 光パケットに対しては周波数多重 (FDM) SAW により単一素子で制御が可能となる。

ラベルの光符号へのマッピングを考える際、波長領域での符号を用いるとネットワークにおける光パケットの WDM 数を制限してしまう。逆に、時間領域での光符号を利用した場合、コリニア AO 素子を用いる利点が薄れる。そこで、本論文では、両者を組合せ、階層的にラベル処理が可能なシステムについて検討

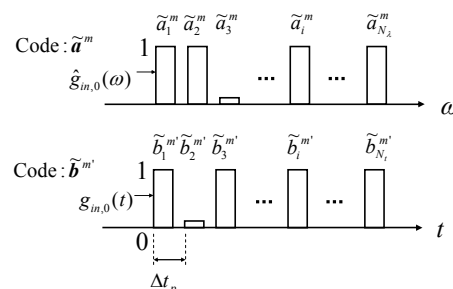


Fig.3 Optical pulses encoded in time and spectral regions.

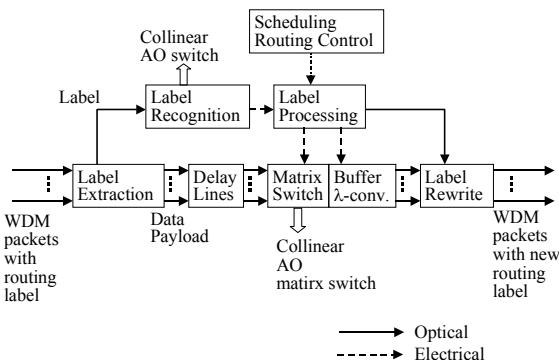


Fig.1 Photonic routing system with AO label recognition.

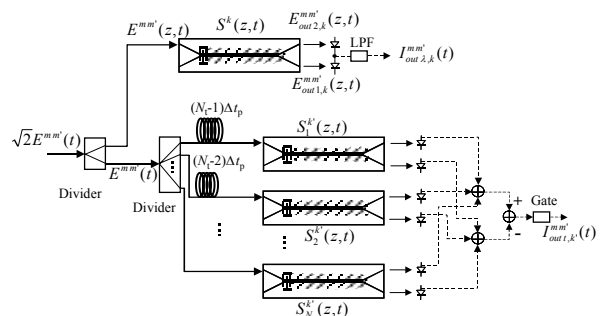


Fig.4 Code correlation with collinear AO devices.

を行う。

符号  $\mathbf{c}^{mm'}$  を光周波数領域で表した符合  $\mathbf{a}^m$  と時間領域で表した符合  $\mathbf{b}^{m'}$  との組み合わせで表す。すなわち光周波数多重数を  $N_\lambda$ 、時間パルス数を  $N_t$  として

$$\mathbf{a}^m = (a_1^m, \dots, a_{N_\lambda}^m), \quad \mathbf{b}^{m'} = (b_1^{m'}, \dots, b_{N_t}^{m'}) \quad (1)$$

ここで、光パルスの符号方式として ASK 変調を用いると、 $\mathbf{a}_i^m, \mathbf{b}_\ell^{m'}$  として  $\{0,1\}$ 、PSK を用いると  $\{-1, 1\}$  の 2 元符号が可能となる。前者の場合を  $\tilde{a}_i^m, \tilde{b}_\ell^{m'}$  で区別する。図 3 は  $\{0,1\}$  の場合を示している。ここで、 $g_{in,0}(t)$  は各パルスの時間波形を、 $\hat{g}_{in,0}(\omega)$  は周波数領域での各スペクトル形状を示す。符号化された光信号は次式で表される。

$$E^{mm'}(t) = \sum_{i=1}^{N_\lambda} a_i^m \sum_{\ell=1}^{N_t} b_\ell^{m'} g_{in,0}(t - (\ell-1)\Delta t_p) e^{j\omega_i t} \quad (2)$$

この光信号が図 4 に示すように 2 分岐後、上側のコリニア AO 素子に入射すると、入射端から距離  $z$  の点の光導波路上で、

$$E^{mm'}(t, z) = \sum_{i=1}^{N_\lambda} a_i^m \sum_{\ell=1}^{N_t} b_\ell^{m'} g_{in,0}(t - (\ell-1)\Delta t_p - N_t z/c) e^{j(\omega_i t - \beta_i z)} \quad (3)$$

ここで  $N_t$  は光導波路において、角周波数  $\omega_i$  の光波に対する等価屈折率、 $\beta_i$  はその伝搬定数である。この AO 素子では波長多重光信号を識別する。すなわち、 $\tilde{a}^m$  に対して符号  $\tilde{a}^k$  と相関処理をする。

SAW として周波数多重化した CW 信号で  $\tilde{a}^k$  を表すと、歪分布は

$$S^k(t, z) = \sum_{i=1}^{N_\lambda} \tilde{a}_i^k s_0 \cos(\Omega_i t - K_i z) \quad (4)$$

と表される。 $s_0$  は振幅、 $\Omega_i$  と  $K_i$  は SAW 角周波数および波数である。SAW としては  $\mathbf{a}^k$  を表現することは困難であり  $\tilde{a}^k$  を表現することになる。AO スイッチが理想的な特性を有すると仮定すると、PD での差動出力は

$$I_{out,\lambda,k}^{mm'} \cong I_0 \sum_{i=1}^{N_\lambda} [(\tilde{a}_i^m \tilde{a}_i^k)^2 - (\tilde{a}_i^m \tilde{a}_i^k)^2] \cdot \sum_{\ell}^{N_t} (\tilde{b}_\ell^{m'})^2 g_{in,0}^2(t - (\ell-1)\Delta t_p - N_t \ell_{SW}/c) \quad (5)$$

となる。 $\tilde{a}_i^k = 1 - \tilde{a}_i^k$ 、 $\ell_{SW}$  は相互作用長、 $c$  は光速である。LPF を通した後の時間信号を

$$c_{LPF}(t) = \left[ \sum_{\ell}^{N_t} (\tilde{b}_\ell^{m'})^2 g_{in,0}^2(t - (\ell-1)\Delta t_p - N_t \ell_{SW}/c) \right]_{LPF} \quad (6)$$

と表すと、適当な符号により  $c_{LPF}(t)$  は  $m'$  に依存しないようにできる。

次に、時間領域の相関を考える。図 4 の下側の AO

スイッチは波長依存性の小さい素子と仮定する。符号  $\tilde{b}^{k'}$  との相関処理をしたとき、ゲートを通した出力は次式で表される。

$$I_{out,t,k'}^{mm'} \cong I_0 \sum_{i=1}^{N_\lambda} (\tilde{a}_i^m)^2 \sum_{\ell'}^{N_t} [(\tilde{b}_{\ell'}^{m'} \tilde{b}_{\ell'}^{k'})^2 - (\tilde{b}_{\ell'}^{m'} \tilde{b}_{\ell'}^{k'})^2] \cdot g_{in,0}^2(t - (N_t - 1)\Delta t_p - \ell_d N/c - N_t \ell_{SW}/c) \quad (7)$$

この信号は適当な符号により  $m$  に依存しないようにできる。図 4 において、光出力を加え合わせた後 PD で変換する場合は  $\tilde{b}^{m'}$  の代わりに  $\mathbf{b}^{m'}$  を用いることができ

$$I_{out,t,k'}^{mm'} \cong I_0 \sum_{i=1}^{N_\lambda} (\tilde{a}_i^m)^2 \left[ \sum_{\ell'}^{N_t} b_{\ell'}^{m'} \tilde{b}_{\ell'}^{k'} - \sum_{\ell'}^{N_t} b_{\ell'}^m \tilde{b}_{\ell'}^{k'} \right] \cdot g_{in,0}^2(t - (N_t - 1)\Delta t_p - \ell_d N/c - N_t \ell_{SW}/c) \quad (8)$$

となる。

次に、数値例を示す。直交符号の例として Hadamard 符号を考え、全てのビットが 0 のものを除き、さらに、1 ビット目の 0 を除いた 7 ビットの符号  $\mathbf{c}^m$  を考える。このとき

$$\sum_{i=1}^7 [(\tilde{c}_i^m \tilde{c}_i^k)^2 - (\tilde{c}_i^m \tilde{c}_i^k)^2] = 4 \quad (m=k) \quad \text{or} \quad 0 \quad (m \neq k) \quad (9)$$

$$\left( \sum_{i=1}^7 c_i^m \tilde{c}_i^k \right)^2 - \left( \sum_{i=1}^7 c_i^m \tilde{c}_i^k \right)^2 = 7 \quad (m=k) \quad \text{or} \quad -1 \quad (m \neq k) \quad (10)$$

$$\left( \sum_{i=1}^7 \tilde{c}_i^m \tilde{c}_i^k \right)^2 - \left( \sum_{i=1}^7 \tilde{c}_i^m \tilde{c}_i^k \right)^2 = 16 \quad (m=k) \quad \text{or} \quad 0 \quad (m \neq k) \quad (11)$$

となり、いずれの場合も符号識別が可能となる。

#### 4. まとめ

フォトニックルーティングにおけるラベル識別処理にコリニア AO 素子を適用する際の光符号の検討を行った。周波数および時間領域で符号化することにより階層的な識別処理が可能となる。今後、S/N 特性等検討する予定である。

#### 引用文献

- 1) T. Kondo, Y. Miyazaki and Y. Akao : Jpn. J. Appl. Phys., 17, 7, pp. 1231-1243 (1978).
- 2) N. Goto and Y. Miyazaki: Jpn. J. Appl. Phys., 40, 5B, pp. 3762-3767 (2001).
- 3) 後藤、宮崎：電子情報通信学会論文誌 C, Vol. J86-C, No. 12, pp. 1272-1281 (2003).
- 4) N. Goto and Y. Miyazaki: Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 43, No. 5B, pp. 2958-2964 (2004).
- 5) 後藤、宮崎：電気学会論文誌 C, Vol. 124, No. 12 (2004).
- 6) N. Goto and Y. Miyazaki: Jpn. J. Appl. Phys., 44, 6B, p. 4449 (2005).
- 7) N. Goto and Y. Miyazaki : Proc. ISMOT 2005, C-36 (2005).

## 可同調フィルタ型ファイバレーザを用いた 温度補償機能付 FBG 水中音響センサ

### Temperature-compensated FBG Underwater Acoustic Sensor using Wavelength Variable Filter Laser with Electrically Tunable Filter

○稲本清之、田中哲、横須賀泰輝、高橋信明 (防衛大 通信)  
Kiyoyuki Inamoto, Satoshi Tanaka, Hiroki Yokosuka and Nobuaki Takahashi  
(Department of Communications Engineering, National Defense Academy)

#### 1. はじめに

これまで、実用的な FBG センサの開発を目的として環境温度の変動に対して温度補償機能をもつ振動及び水中音響センサを提示してきた。これらのセンサでは、温度変動による FBG のブラッグ波長の変化に合わせて光源の波長を制御することにより、温度補償を行っている<sup>1-4)</sup>。しかしながら、これまでの手法では、特別な仕様の FBG を必要とする<sup>1, 2)</sup>、温度補償動作の速度が遅い<sup>3, 4)</sup>、といった問題点があった。本研究では、これらの問題点を解決するための一手法として、可同調フィルタを用いた波長可変の光ファイバリングレーザを試作し、これを FBG 水中音響センサに適用した。

#### 2. 動作原理

実験系を Fig.1 に示す。図において、左上の破線で示した部分が、試作した可同調の光ファイバレーザである。このレーザでは波長選択素子として、外部電圧に

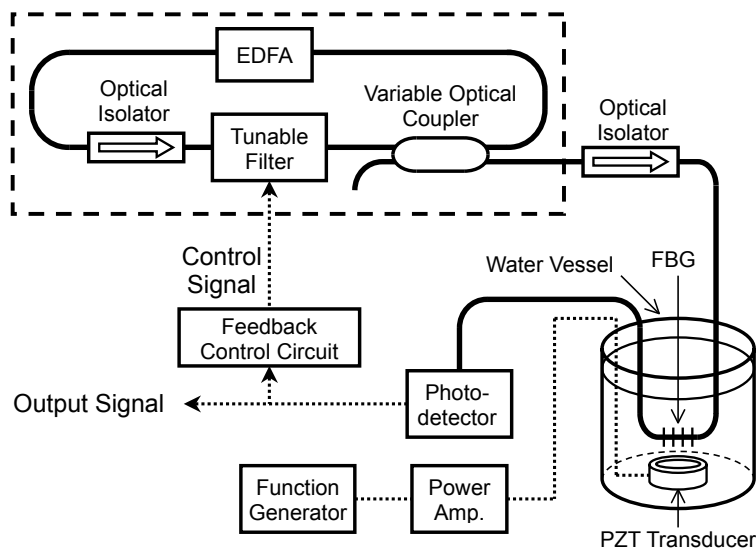


Fig.1. Experimental setup.

よって制御可能な可同調フィルタを用いて、リング型の光ファイバ共振器が構成される。このレーザを発した光波は光アイソレータを透過した後、水槽中に設置した FBG へ入射される。Fig.2 に用いた FBG の透過スペクトル及びレーザの発振スペクトルを示す。ここで、実線の曲線は室温 (27°C) で測定した FBG の透過スペクトルを示し、レーザの発振波長はこのスペクトルの傾斜部 (動作点: 1551.8 nm) に同調されている。このとき、FBG に水中音響が印加されると、透過光は強度変調を受けるので、光検出器からセンサ出力が得られる<sup>1)</sup>。一方、FBG の周囲の水温が変動すると、FBG の透過スペクトルのシフトによって動作点に変化してセンサ感度が劣化することになる。しかしながら、本方式では帰還回路を用いたレーザの発振波長の制御によって動作点を一定に保ち、温度補償を行うことができる。実験では、試作したレーザの基本的な特性を確認するとともに、これを FBG 水中音響センサへ適用した。

センサの動作確認のための実証実験では、水槽中の圧電トランスデューサを用いて FBG に音圧を印加した。

#### 3. 実験及び結果

試作したレーザについて、発振波長の制御電圧への依存性を測定した結果、制御電圧 0~16 V に対して発振波長が 1531~1567 nm の範囲で線形に制御されることが確認できた。また、レーザの出力パワーの安定度は 0.5 h の間で 3%程度で、本センサ用の光源として十分利用可能であることが分かった。なお、試作したレーザの波長走査速度は用いた可同調フィルタの性能によって決まり、約 50 ms で 36 nm (1531~1567 nm) にわたる波長走査が可能である。

FBG 水中音響センサの動作確認を行うため、円環型の圧電振動子を共振周波数 (17.5 kHz) で駆動することにより FBG に音圧を印加した。得られた結果の一例として、センサ出力の波形及びスペクトルを Fig.3 及び Fig.4 にそれぞれ示す。これらの図から、印加音圧に対してセンサ出力が線形にตอบสนองし、40 dB 以上の SN 比で出力信号が得られていることが分かる。センサの温度補償機能を実証するため、水温を 30~70 °C まで 1h の間で変化させてセンサ出力を測定した。得られた結果を Fig.5 に示す。図において●、及び、■は、それぞれ、レーザの波長制御によって温度補償を行った場合、及び、行わなかった場合の結果を示す。図に示されているように、温度補償がない場合に 38 dB 以上あった出力変動を、温度補償機能を付与することによって 2.0 dB 以内に抑えることができた。また、FBG に対して 50 °C (27 °C→77 °C) の温度変化を瞬間的に加えてセンサ出力を測定した結果、この帰還回路による波長制御が 2s 程度で追従することが確認された。

#### 4. まとめ

本研究では、可同調フィルタ型の波長可変ファイバレーザを用いて温度補償機能をもつ FBG 水中音響センサを構成し、センサの有用性を確かめるための実証実験を行った。実験では試作したレーザの基本的な性能を確認するとともに、これを温度補償機能付 FBG 水中音響センサへ適用した。この方式では、比較的単純な構成で温度補償機能をもつ FBG 水中音響センサを実現することができる。现阶段では、温度変化に対する温度補償の応答特性は帰還回路の性能に依っており、この回路を改良することで、応答速度のさらなる改善が見込まれる。

#### 参考文献

1. N. Takahashi, K. Yoshimura, and S. Takahashi: Jpn. J. Appl. Phys. **40**, 3632-3636 (2000).
2. S. Tanaka, T. Ogawa, H. Yokosuka, and N. Takahashi: Jpn. J. Appl. Phys. **43**, 2969-2972 (2004).
3. N. Takahashi, T. Weerapong, and S. Takahashi: Opt. Rev. **10**, 106-110 (2003).
4. 田中哲, 横須賀泰輝, 高橋信明: USE2004 講演論文集, 131-132 (2004).

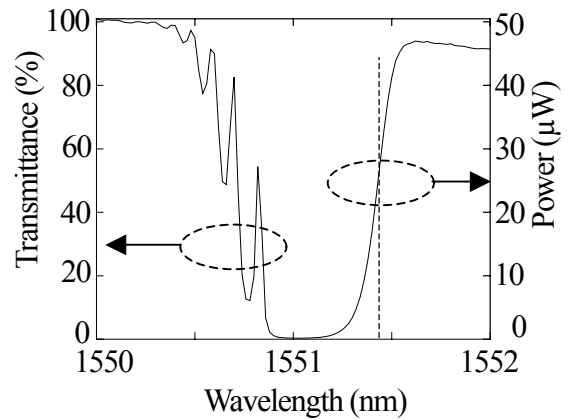


Fig.2. Transmittance spectrum of FBG and oscillation spectrum of fiber laser.

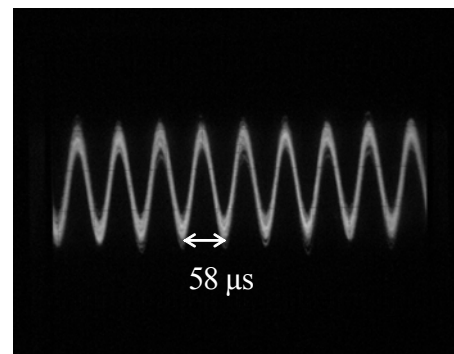


Fig.3. Waveform of sensor output.

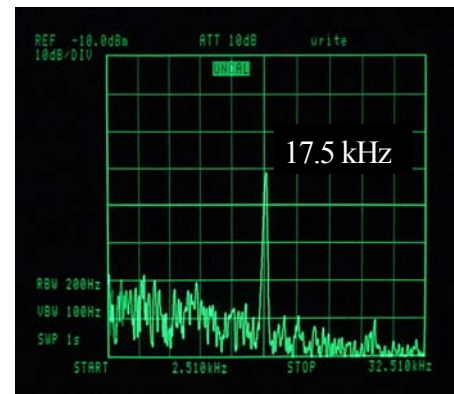


Fig.4. Spectrum of sensor output.

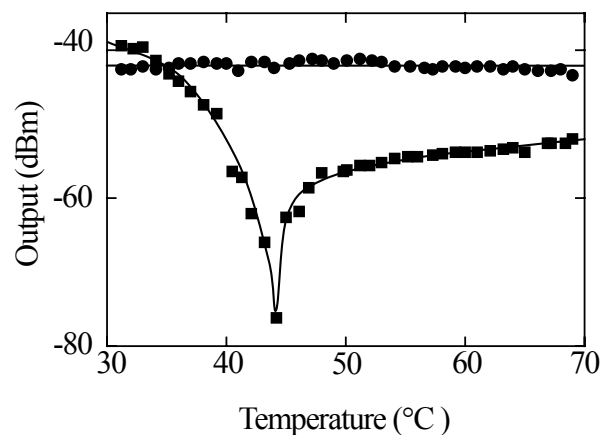


Fig.5. Temperature dependence of sensor output.

## CdSe 量子ドットを吸着した TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶電極の 光音響スペクトルと光電気化学特性

### Photoacoustic and photoelectrochemical characterization of photonic TiO<sub>2</sub> electrodes sensitized with CdSe quantum dots

佐藤 彰<sup>1)</sup>、Lina J. Diguna<sup>1)</sup>、村上 元信<sup>1)</sup>、沈 青<sup>1,2)</sup>、豊田 太郎<sup>1,2)</sup>  
(電通大 量子・物質工<sup>1)</sup>、コヒーレント光科学専攻<sup>2)</sup>)  
Akira Sato,<sup>1)</sup> Lina J. Diguna,<sup>1)</sup> Murakami Motonobu,<sup>1)</sup> Qing Shen,<sup>1,2)</sup> Taro Toyoda<sup>1,2)</sup>  
(Dept. Appl. Phys. & Chem.,<sup>1)</sup> Course of Coherent Opt. Sci.,<sup>2)</sup> Univ. Electro-Commun.)

#### 1. はじめに

近年、シリコン太陽電池に代わり比較的高い光電変換効率が期待できる太陽電池としてナノ構造 TiO<sub>2</sub> 電極に色素を吸着させた色素増感太陽電池が注目されている。通常、色素増感 TiO<sub>2</sub> 太陽電池では TiO<sub>2</sub> ナノ粒子が用いられているが、最近、TiO<sub>2</sub> ナノ粒子と TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶の 2 層構造によって光吸収を増加させたという報告がある<sup>1)</sup>。ここでフォトニック結晶とは屈折率の異なる物質を光の波長程度の長さで周期的に配列した結晶のことである。フォトニック結晶は特定の波長を持つ光子の伝播が禁止されるフォトニックバンドギャップという領域を持ち、その付近では光子の群速度が遅くなるといった特異な光学特性を有している。これら光学特性の中で太陽電池への応用として注目されているのがフォトニックバンドギャップ付近における光子速度の遅延である。光子速度の遅延によって光捕集効率の向上が見込まれ、光吸収の増加、最終的には変換効率の向上が期待できる。しかしそのメカニズムは十分に解明されていない。

今回我々は TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶電極を作製し、その性能と特性の評価を行った。本研究では増感剤として従来の有機色素ではなく、最近注目されている半導体量子ドットを増感剤として吸着させた<sup>2)</sup>。半導体量子ドットとして CdSe 系を対象とした。量子ドットの特色は量子ドットサイズを変化させることにより 1 種類の材料で吸収スペクトル領域を調節できること、有機色素に比べて光吸収係数が大きいこと、双極子モーメントが大きく電荷分離しやすいことなどが挙げられる。作製した電極に対して ナノ構造、光吸収、電流変換量子効率の検討を行った。光吸収評価としては、不透明かつ光散乱の強い系においても光吸収情報を得られる光音響 (photoacoustic : PA) 分光法を適用した<sup>3)</sup>。さらに入射した光子数に対してどのような割合で電子に変換されたかを示す電流変換量子効率 (Incident photon to current conversion efficiency : IPCE) の測定を行った。

-----  
E-mail address : toyoda@pc.uec.ac.jp

#### 2. 実験法

試料作製の第一歩として、導電性ガラス FTO をポリスチレンラテックス粒子 (PSL : 平均粒径 309nm) 懸濁液 (0.05wt%) 中に立てて固定し、40 で徐々に水を蒸発させて PSL のテンプレートを作製した。次に PSL テンプレートに 2% の TiCl<sub>4</sub> メタノール溶液を滴下し、30 分間加水分解させた後、80 で 10 分間熱処理を施した。この作業を 3 回繰り返した後、昇温速度 0.5 /min、最終温度 450 で 1 時間熱処理を行った<sup>4)</sup>。熱処理により PSL は取り除かれ、TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶電極が完成した。続いてこの TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶電極に増感剤として 10 の定温条件下で CdSe 量子ドットを吸着させた。CdSe 量子ドットの形成には化学吸着法を適用した<sup>5)</sup>。

PA 測定は、通常のマイクロフォン法を適用した。光源には 300W のキセノンランプを使用し、分光器を通して単色化された光はメカニカルチョッパーにより強度変調され、密閉された PA セル中の試料に照射した。マイクロフォンで検出された信号は、プリアンプで増幅された後、2 位相ロックインアンプに入力し検出を行った。測定波長範囲は 270nm ~ 800nm、変調周波数は 33Hz である。光源強度の補正にはカーボンブラック試料の PA 信号を用いた。IPEC 測定は、光源には 300W のキセノンランプを用い、光源強度をパワーメータで測定し、カーボンの PA 信号で補正した。入射光は変調しないで直流のまま試料に照射した。PA セルの代わりに石英ガラス製の IPCE セルを用い、電解質溶液としてそれぞれ 1M の KCl と 0.1M の Na<sub>2</sub>S 水溶液による混合溶液を適用した。対極には Pt 電極を用いて短絡電流を測定した<sup>6)</sup>。

#### 3. 結果と考察

Fig. 1 に TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶の SEM (走査型電子顕微鏡) 観察結果を示す。白色部が TiO<sub>2</sub>、暗部は熱処理によって PSL 粒子が除去されてできた空孔である。Fig. 1 から TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶は最密充填構造をとっており、3 次元的な構造となっていることが推測される。空孔の平均直径はおよそ 260nm であり、テンプレートとして利用し

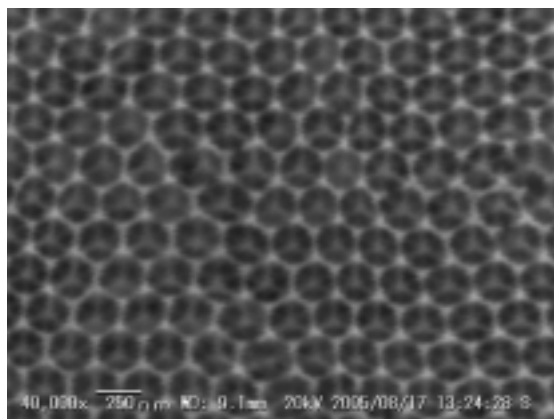


Fig. 1 SEM image of TiO<sub>2</sub> inverse opal.

た PSL 粒子の直径 309nm よりも小さい値であった。これは熱処理の際に収縮したものであると考えられる<sup>7)</sup>。

Fig. 2 に TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶電極における CdSe 吸着時間をパラメータとした PA スペクトルを示す。吸着時間の増加とともに立ち上がり位置が低エネルギー側にシフトし、バルク CdSe のバンドギャップである 1.75eV に近づいていくことがわかる。これは、吸着時間の増加とともに CdSe 量子ドットの粒径が大きくなり、CdSe 量子ドットの第一励起エネルギーの大きさが変化したためと考えられる。PA スペクトルの肩の位置を CdSe のバンドギャップと仮定して、有効質量近似により CdSe 量子ドットの直径を求めた。CdSe 量子ドットの吸着時間が 5 ~ 30 時間の変化に対して、CdSe 量子ドットの直径は約 4.8 ~ 6.0nm まで変化する。ここで CdSe のボーア半径は 5.6nm であるので、この系において量子サイズ効果が出現していると考えられる。

Fig. 3 に CdSe 吸着時間をパラメータとした IPCE スペクトルを示す。CdSe 量子ドットの吸着により TiO<sub>2</sub> のバンドギャップ (~3.2eV) 以下の光子エネルギー領域で光電流の増加が見られ、吸着した CdSe 量子ドットから光励起された電子が TiO<sub>2</sub> 伝導帯に移動していることが確認された (分光増感)。吸着時間の増加に伴い、立ち上がりが低エネルギー側にシフトしていることから、量子ドットの粒径が次第に増加していることが示唆される。また吸着時間の増加に伴い単純に IPCE 値は増加し、次第に飽和する。

今回の研究では残念ながらフォトニック結晶の特徴である光吸収量の増加を確認できず、IPCE 値は通常のコロイドナノ粒子による電極よりも低かったが、Fig. 3 から CdSe による十分な分光増感を確認することができた。今後、CdSe 量子ドットの吸着状況を改善し、フォトニック結晶とナノ粒子から構成される 2 層構造の電極を作製することで光吸収量の増加を期待することができる。

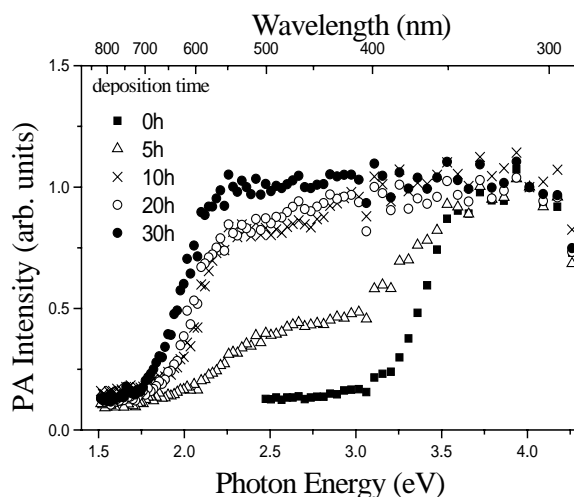


Fig. 2 PA spectra of TiO<sub>2</sub> inverse opal electrodes with different CdSe deposition time.

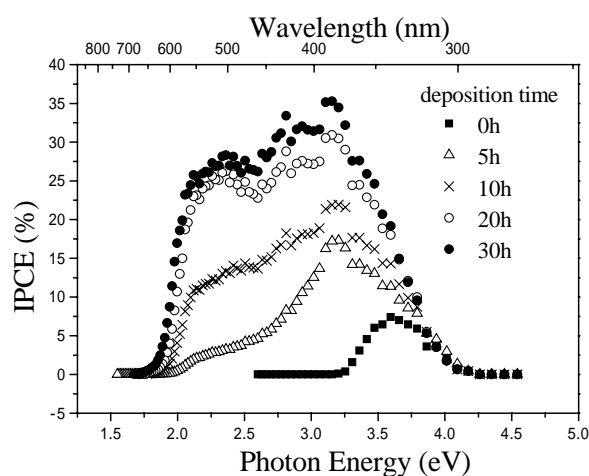


Fig. 3 IPCE spectra of TiO<sub>2</sub> inverse opal electrodes with different CdSe deposition time.

謝辞：

本研究の一部は文科省研究補助金 ( 基盤研究 (C) No. 15510098, 若手研究 (B) No. 14750645 ) および同特定領域 417 (No. 15033224) の援助を受けて行われました。

引用文献

1. S. Nishimura et al. : J. Am. Chem. Soc. **125** (2003) 6306.
2. Q. Shen, D. Arae and T. Toyoda : J. Photochem. Photobiol. A: Chem. **164** (2004) 75.
3. A. Rosencwaig and A. Gersho : J. Appl. Phys. **47** (1976) 64.
4. 村上元信：電気通信大学 量子・物質工学科 卒業論文 (2005).
5. S. Gorer et al. : J.Phys. Chem. **98** (1994) 5338.
6. R. Vogel, K. Pohl and H. Weller : Chem. Phys. Lett. **174** (1990) 241.
7. 青井芳史他：日本材料学会誌. **53** (2004) 1309.

# 超高周波平面超音波材料解析システムによる 縦波音響特性測定における薄層厚の検討

Investigation of the thickness of thin liquid layer in the longitudinal acoustic property measurements by the plane-wave ultrasonic material characterization system.

○小田川 裕之、荒川 元孝、櫛引 淳一 (東北大院 工)

Hiroyuki Odagawa, Mototaka Arakawa and Jun-ichi Kushibiki (Grad. Sch. Eng., Tohoku Univ.)

## 1. はじめに

筆者らは、VHF・UHF帯で固体、液体、生体試料の音響特性（音速、減衰、音響インピーダンス、密度）を高精度に計測できる超高周波平面超音波材料解析システムを開発してきた[1][2]。その中で、減衰の大きいUHF帯の計測では、固体試料計測の場合は液体カプラを、また、液体試料計測（または生体試料計測）の場合は試料を薄層化することで、超音波の伝搬減衰を小さくして音響特性を高精度かつ簡便に計測する方法を提案している[3]。この場合、薄層の厚さを正確に求めることが測定精度の向上に不可欠であるため、薄層厚を $\lambda_d/2$  ( $\lambda_d$ : 測定帯域内のある周波数  $f_d$  における薄層での超音波の波長) とし、薄層での反射係数が最小となるディップの周波数 ( $f_d$  となる) を高精度に測定して正確な薄層厚を求めている。

しかし、粘度の高い試料や生体組織などを計測する場合、或いは、周波数が高くなり波長が短くなった場合には、薄層厚を $\lambda_d/2$ まで薄くすることが困難であると考えられる。ディップを設けるのは膜厚決定のためであるので、帯域内に1個以上存在すればよく、薄層厚は必ずしも $\lambda_d/2$ である必要はない。従って薄層厚が $\lambda_d/2$ 以上の場合の計測について検討することは、計測の対象を拡大する上で重要である。また薄層試料厚を許容範囲内で厚くすることは測定精度の向上にも役立つ。よって本報では、薄層厚を厚くした場合についての計測について検討を行ったので報告する。

## 2. 測定原理

まず説明のために固体参照試料を用いた薄層試料の縦波音響特性測定の実験原理を述べる。図1はその音響伝送線路モデルである。薄層液体表面からの反射信号を $V_2$ 、固体参照試料裏面からの反射信号を $V_3$ 、試料と接触していない状態でのロッド端からの反射信号を $V_0$ とすると各信号は以下のように表せる。

$$V_2 = A \cdot ATT_2 \cdot R_{M13} \cdot \exp(-2\gamma_1 \ell_1) \quad (1)$$

$$V_3 = A \cdot ATT_3 \cdot T_{M13} \cdot R_{34} \cdot T_{M31} \cdot \exp(-2\gamma_1 \ell_1 - 2\gamma_3 \ell_3) \quad (2)$$

$$V_0 = A \cdot ATT_0 \cdot \exp(-2\gamma_1 \ell_1) \quad (3)$$

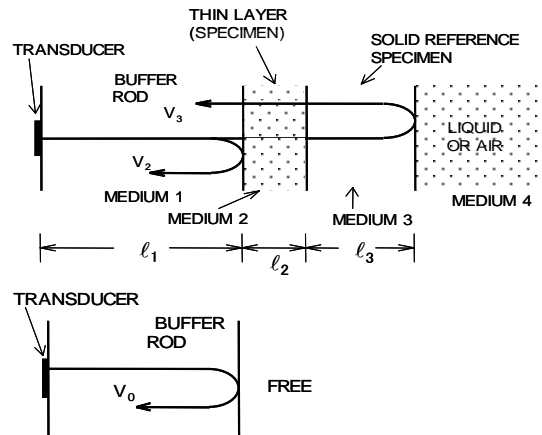


図1 Transmission line model

ここで、 $A$ は振幅係数、 $ATT_i$ は各信号の伝搬に伴う回折の影響、 $\gamma_i (= \alpha_i + jk_i)$ は媒質 $i$ の伝搬定数である。液体層を薄くしたために薄層内で多重反射する信号の分離ができないためそれを含めて解く必要がある。 $R_{M13}$ 、 $T_{M13}$ 、 $T_{M31}$ は薄層液体内の多重反射を考慮したときの、ロッドから固体試料を見た反射係数、ロッドから固体試料への透過係数、固体試料からロッドへの透過係数であり、次のように表せる。

$$R_{M13} = \frac{R_{12} + R_{23} \cdot \exp(-2\gamma_2 \ell_2)}{1 + R_{12} \cdot R_{23} \cdot \exp(-2\gamma_2 \ell_2)} \quad (4)$$

$$T_{M13} = \frac{(1 + R_{12}) \cdot (1 + R_{23}) \cdot \exp(-\gamma_2 \ell_2)}{1 + R_{12} \cdot R_{23} \cdot \exp(-2\gamma_2 \ell_2)} \quad (5)$$

$$T_{M31} = \frac{(1 + R_{32}) \cdot (1 + R_{21}) \cdot \exp(-\gamma_2 \ell_2)}{1 + R_{32} \cdot R_{21} \cdot \exp(-2\gamma_2 \ell_2)} \quad (6)$$

$V_2$ を $V_0$ で割った値は $ATT_0 = ATT_2$ と近似すると、

$$\left| \frac{V_2}{V_0} \right| = |R_{M13}| \quad (7)$$

となり、この値のディップが生じる周波数から薄層液体の正確な厚さを求めることができる。

また、固体試料の音速 $V_3$ および減衰 $\alpha_3$ は次式により求められる。

$$V_3 = -\frac{2\omega \ell_3}{\phi - \pi - \Delta\theta - \theta_{TR}} \quad (8)$$

$$\alpha_3 = \frac{1}{2\ell_3} \ln \left\{ \left| \frac{V_2}{V_3} \right| \cdot \left| \frac{T_{M13} \cdot R_{34} \cdot T_{M31}}{R_{M13}} \right| \right\} - \frac{1}{2\ell_3} \ln \left\{ \left| \frac{ATT_2}{ATT_3} \right| \right\} \quad (9)$$

ここで、 $\omega$ は角周波数、 $\ell_3$ は固体試料の厚さ、 $\phi$ は $V_3/V_2$ の位相、 $\pi$ は固体試料裏面での反射の際の位相回転、 $\Delta\theta$ は $V_2$ 信号と $V_3$ 信号の回折による位相進み

の差分、 $\theta_{TR}$  は薄層液体中を反射・透過する際の位相変化である。なお、回折の影響は Williams の厳密式 [4] で数値計算により補正する [5]。

### 3. 薄層厚の検討

薄層厚を変えて  $|R_{M13}|$ 、 $V_2$ 、 $V_3$  の周波数特性を計算した結果を以下に示す。計算で用いたデバイスは、ZnO 薄膜トランスジューサ(膜厚 10.55 $\mu\text{m}$ 、金電極 0.3 $\mu\text{m}$ 、直径 2mm)を合成石英ガラスのバッファロード(長さ 8mm)に形成した構造である。また、固体参照試料には厚さ 2.7mm の合成石英ガラスを、薄層液体には純水を用いて計算している。このデバイスの挿入損失( $V_0$ の振幅)の計算結果を図 2 に示す。図 3 は  $|R_{M13}|$  の周波数特性である。図 3(a)は試料厚  $l_2$  が  $\lambda_d/2$  ( $\lambda_d$ : 中心周波数 300MHz における薄層中での波長、ここでは 4.97 $\mu\text{m}$ ) の場合であり、図 3(b)は  $2\lambda_d$  の場合である。試料厚が  $\lambda_d/2$  の場合は、透過係数が最大となる周波数( $|R_{M13}|$  のディップの周波数)は帯域内に 1 点しか存在しないが、 $2\lambda_d$  の場合には複数点存在している。このように、試料厚を  $\lambda_d/2$  から  $n$  倍に増やすと、ディップは  $f_d/n$  おきに複数個存在することになる。

次にこれらに対応した  $V_2$  の振幅特性をそれぞれ図 4(a)、(b)に、 $V_3$  の振幅特性を図 5(a)、(b)に示す。 $|R_{M13}|$  のディップの周波数では反射係数が極小、透過係数が極大となるため、 $V_2$  は極小に、 $V_3$  は極大となっていることがわかる。

本計測法では、 $V_2$  のディップの周波数付近では、音速に若干誤差が生じることわかっている(文献[3]参照)。これは、 $V_2$  信号が小さくなるために位相誤差を生じることと、ディップ付近では  $\theta_{TR}$  の位相の変化が急峻であるために、試料厚などの極めてわずかな誤差が位相の誤差として大きく現れるためだと考えられる。(しかし、それでも文献[3]の場合は 0.2m/s の誤差以内である。)  $V_3$  信号があるレベルよりも小さくなると  $V_2$  の場合と同様に位相誤差を生じるので、ある程度以上のレベルが必要である。そのレベルはシステムの特性と要求される精度により異なるが、目安として -70dB を最低ラインとし図 5 に点線で示した。

試料厚を厚くすると減衰が大きくなるため  $V_3$  信号は小さくなるが、 $V_2$  のディップ付近では透過係数が極大となり  $V_3$  のレベルが上がるため、-70dB ラインを上回り計測可能となっていることがわかる。 $V_2$  及び  $V_3$  のディップ付近では誤差がやや大きくなるため測定値として用いないとしても、殆どの場合分散は緩やかであるので、完全に連続した周波数で計測する必要はなく、このように、飛び飛びの周波数で計測することで試料の特性を評価できると考えられる。以上より、本計測法は、粘度の高い試料や生体組織などを計測する場合や、周波数が高くなり波長が短くなった場合でも、薄層厚を  $\lambda_d/2$  以上として計測することが可能であり、幅広い材料に適用できる。

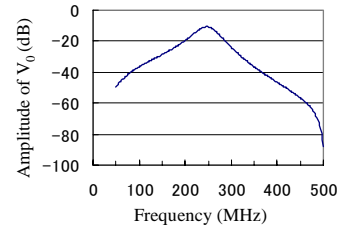


図 2 Frequency characteristics of  $V_0$

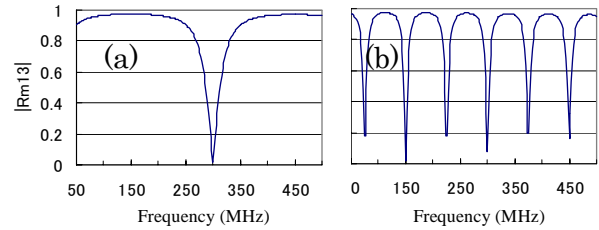


図 3 Frequency characteristics of  $|R_{M13}|$

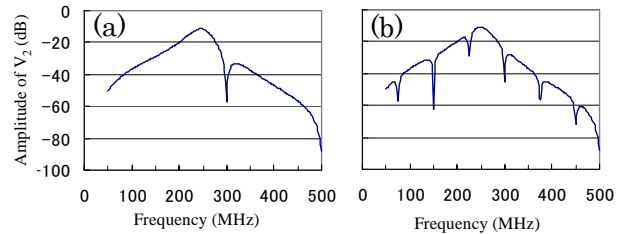


図 4 Frequency characteristics of  $V_2$

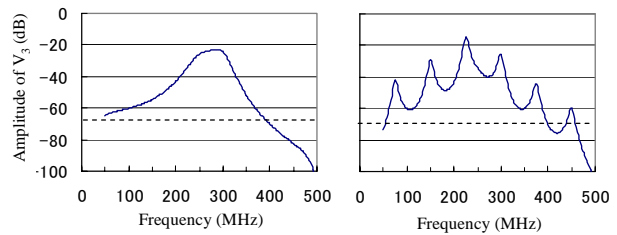


図 5 Frequency characteristics of  $V_3$

### 4. まとめ

本報では、固体参照試料を用いた薄層試料の縦波音響特性測定における薄層厚について検討した。薄層厚をある程度厚くしても、飛び飛びの周波数ではあるが計測可能であるため、薄くすることが困難な試料でも計測し特性を評価することが可能であることがわかった。

### 参考文献

- [1] J. Kushibiki et al., IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr., Vol. 42, pp. 1028-1039 (1995).
- [2] 櫛引他, 信学技報, Vol. US2003-46, pp.7-12 (2003.9).
- [3] 櫛引他, 音講論 (春), pp.905-906 (2005).
- [4] A. O. Williams, Jr., J. Acoust. Soc. Am., Vol. 23, pp. 1-6 (1951).
- [5] J. Kushibiki and M. Arakawa, J. Acoust. Soc. Am., Vol. 108, pp. 564-573 (2000).

# 超音波によるエタノールの分解

## Sonochemical decomposition of ethanol

東海林祐輔, 富山優介, 荻博次, 水垣共雄, 平尾雅彦 (大阪大 基礎工)

Yusuke Shoji, Yusuke Tomiyama, Hirotsugu Ogi, Tomoo Mizugaki and Masahiko Hirao

(Grad. Sch. Eng. Sci. Osaka Univ.)

### 1. 緒言

超音波による化学反応の促進はキャビテーション現象に起因することは古くから知られている[1]. キャビテーションによって生じた気泡の内部は気化した溶媒, 溶質や溶存ガスで満たされている. 気泡崩壊時には高温高圧場が生じ, 通常では起こりえない反応が起こりうる. 本研究には2つの目的がある. 第一に, 超音波分解における溶存ガスと雰囲気ガスの影響を系統的に調べることであり, 第二に, エタノールを分解し, その特異な反応経路に対する原因を示唆することである.

### 2. 実験

実験装置の概略図を Fig.1 に示す. 反応器内に高振幅超音波共鳴モードを発生させるために, 振動子と反応器の間の距離は8-30 mmの間で可変とした[2]. 円筒形のガラス反応器の下方から超音波を照射し, 高振幅の共鳴モードを生じさせた.

反応器には3本のバルブが取り付けられており, それぞれガス過飽和水の注入, 真空排気, 雰囲気ガスの注入のために使用する. 反応器内に分解対象溶液をあらかじめ入れており, 反応器内の気体を目的の雰囲気ガスによって置換を3度行なう. 脱気モジュールで蒸留水を脱気し, 目的の溶存ガスによりバブリングすることで過飽和水とする. このガス過飽和水を反応器に注入し, 目的の濃度の分解対象溶液を作る. その後, 超音波照射を行なう.

### 3. 溶存ガスと雰囲気ガスの関係

溶液中に溶解している気体を溶存ガス(反応器に注入する前にバブリングしたガス), 反応器内を

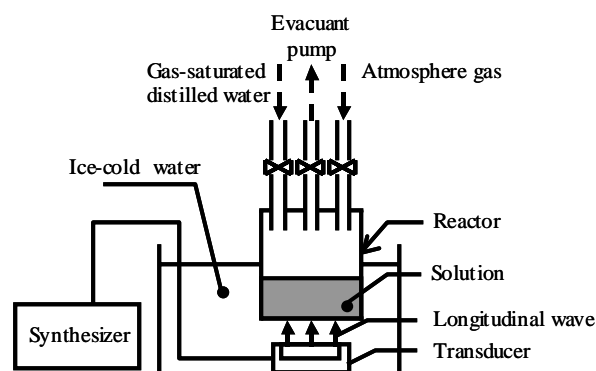


Fig. 1 Setup of the decomposition measurement.

満たす気体を雰囲気ガスと呼ぶことにする. 発生する高温場は主に断熱変化によるものであるため, 分解は溶存ガスの比熱比に強く依存すると考えられる. また, 超音波照射によって雰囲気ガスが溶液中に取り込まれ, 分解に影響を与える. よって, キャビテーションによる分解は溶存ガスと雰囲気ガスの両方に影響を受ける. 本研究ではガスとして Ar と O<sub>2</sub> の2種類を用い, 過飽和ガスおよび雰囲気ガスの影響を調べる. 以下 Ar および O<sub>2</sub> 過飽和水による実験を Ar-S および O<sub>2</sub>-S と表し, Ar および O<sub>2</sub> の雰囲気ガス中の実験をそれぞれ Ar-A および O<sub>2</sub>-A と表す.

### 4. 結果

Ar-S, O<sub>2</sub>-S, Ar-A, O<sub>2</sub>-A を組み合わせた各実験条件において 1%のエタノール溶液に超音波を1h照射した. 照射後の溶液を分光光度計により分析した結果を Fig. 2 に示す.

超音波照射による雰囲気ガスの溶解を調べるため, 溶存酸素メータによって, Ar-S かつ O<sub>2</sub>-A と O<sub>2</sub>-S かつ Ar-A の照射前後の溶存酸素量を測定した. 結果を Table に示す. O<sub>2</sub>-S かつ Ar-A の照射前の溶存酸素量は酸素過飽和であったため飽和

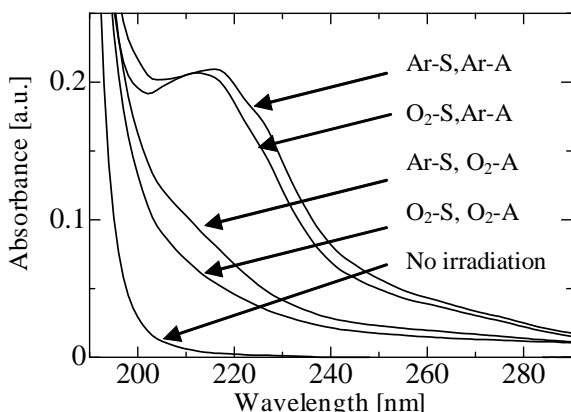


Fig. 2 Absorbance spectra of the ethanol solution exposed to ultrasonic irradiation with various gas atmosphere and gas saturation.

Table I Dissolved amount of oxygen before and after ultrasonic irradiation.

	Dissolved O <sub>2</sub> [mg/l]	
	before	after
Ar-S, O <sub>2</sub> -A	1.09	over 20
O <sub>2</sub> -S, Ar-A	over 40	1.15

酸素量の 41 mg/l 以上とした (溶存酸素メータの測定限界は 20 mg/l である)。

分光光度計では混合成分の特定が不可能であるため、照射後の溶液をガスクロマトグラフ質量分析装置(GC/MS)で分析した。Ar-S かつ Ar-A の条件下で 2 %のエタノール溶液に超音波照射を 1 h 行った後の溶液を対象とした。その結果、生成物としてアセチレン、メタノール、メチルアセチレン、アセトアルデヒドが検出された。特にアセトアルデヒドは主生成物であり、生成量は 24 ppm であった。

## 5. 考察

Fig. 2 と Table より溶液は雰囲気ガスによる過飽和の状態に変化したと考えられる。Henry の法則によれば、溶解する気体の質量は気体の分圧に比例する。溶解度から水 100 ml に溶け込む Ar, O<sub>2</sub> はそれぞれ 3.5 cm<sup>3</sup>, 3.1 cm<sup>3</sup> である。しかし、雰囲気ガスは反応器内を満たすため、1000 cm<sup>3</sup> 以上存在する。超音波照射には脱気作用があることが知られており、溶存ガスは脱気されると雰囲気

ガスに比べ、極微量であるから分圧は 0 とみなされる。そのため、溶存ガスが脱気されると、雰囲気ガスが溶液へ溶解すると考えられる。よって超音波分解に対する過飽和した溶存ガスは雰囲気ガスにほぼ完全に置換され、雰囲気ガスこそが超音波分解に最も影響を与えられと考えられる。

エタノール溶液の分解後の成分からは酢酸は検出されず、酸化の進行はアセトアルデヒドまでであった。アセトアルデヒドから酢酸まで酸化が進行しなかったことから OH ラジカルによる反応とは異なることを示唆する[3]。アルコールのアルデヒドへの酸化は酸化試薬を必要とするため、超音波分解において特異な反応が生じていることがわかる。超臨界水中のエタノールの分解ではアセトアルデヒドが主成分として発生することが報告されている[4]。超臨界水のエタノールの分解機構は水触媒機構であると考えられており、複数の水分子が触媒の役割を果たすことで、活性エネルギーの障壁を下げ、反応を促進させる[5]。気泡の崩壊によって生じる高温高圧場は超臨界水を生成する条件を十分満たすため、超音波分解においても、超臨界水中での分解に類似した反応が生じていると考えられる。

## 6. 結論

本研究において以下の結論を得た。

1. 超音波分解では、溶存ガスに比べて雰囲気ガスの影響が大きい。
2. エタノール溶液の超音波分解は、OH ラジカルでは説明できない。超臨界水中で起こる水触媒化学反応と類似した化学反応が生じる可能性がある。

## 参考文献

- [1] S. Ley and C. Low, 岩崎訳, 超音波有機合成, シュプリンガー・フェアラーク東京 (1991).
- [2] 富山優介, 荻博次, 平尾雅彦, 超音波 TECHNO, **17**, 33(2005).
- [3] K. Nakahara et al., Proceeding of 8th Meeting on Supercritical Fluids, Bordeaux, France, 2002.
- [4] T. Arita et al., *Tetrahedron Letter*, **44**, 1083(2003).
- [5] H. Takahashi et al., *Chem. Phys. Lett.*, **363**, 80 (2002).

## 超音波照射による活性酸素の生成量が ナノダイヤモンド微粒子の分散性におよぼす影響

Relationship between amount of active oxygen species generated by ultrasound exposure and dispersion of nano diamond particles

内田武吉、有間智、濱野彰子、川島徳道、竹内真一 (桐蔭横浜大・医工)  
Takeyoshi Uchida, Satoshi Arima, Akiko Hamano, Norimichi Kawashima, Shinichi Takeuchi  
(Toin Univ. of Yokohama, Faculty of Biomedical Eng.)

### 1. はじめに

近年、ダイヤモンド粒子などの研磨材による表面研磨が、先端エレクトロニクスなどの分野でその重要性を再認識されている<sup>1)</sup>。例えば、ハードディスクの分野で、一次粒子の粒径がナノスケールであるナノダイヤモンド微粒子 (ND) が、ハードディスク基板表面のテクスチャリングの研磨に期待されている。テクスチャリングは、ハードディスク基板表面に円周の溝を掘る事である。ハードディスクのテクスチャリングは、ハードディスクの性能に影響を与える事が知られている。近年、ハードディスクの大容量化、高密度化が進み、表面をテクスチャリングするためには、ナノスケールの研磨材が必要とされている。

研磨材を使用するためには、研磨材の分散性が重要である<sup>2-3)</sup>。しかし、一次粒子がナノスケールの微粒子は、製造時に凝集してしまい、一次粒子の粒径を維持できず、分散性が悪い。そのため、微粒子を一次粒子まで解凝集させ、分散性を向上させる技術の確立が重要視されている。

蒸留水に超音波を照射することにより、音響キャビテーションが生成される。その効果により、さらに活性酸素種や衝撃波が発生する。また、超高温・超高压の反応場が形成される。当研究室では、音響キャビテーションにより発生する衝撃波と超音波パワーを用いて、凝集してしまった ND を解凝集させ、音響キャビテーション発生時に同時に発生する活性酸素種を用いて、微粒子表面を改質し、分散性を向上させることを考えている。今回は、当研究室製の超音波照射システムで発生する活性酸素種の発生量が ND の分散性へ与える影響を検討した。

### 2. 超音波照射システム

本研究の実験システムを Fig.1 に示す。ファンクションジェネレータ (旧 HP、8116A) の出力信号を増幅度 50dB のパワーアンプ (ENI、2100L) で増幅し、水槽底部に固定したランジュバン振動子 (HEC-45402、本多電子) に印加して、超音波を照射した。ソノケミカルルミネッセンスの発光強度の周波数特性の測定結果から、本実験では、155kHz の周波数を使用することに決めた。

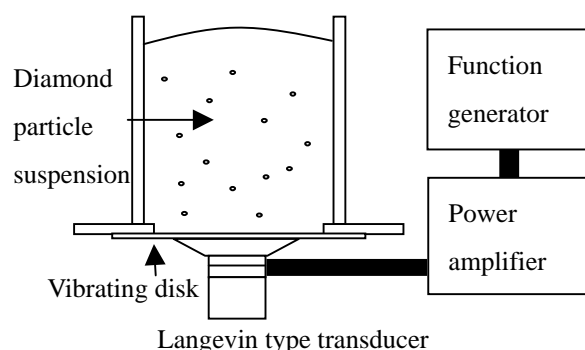


Fig.1 Experimental system of disaggregation and surface modification of diamond particles by ultrasound exposure.

### 3. 実験

#### 3.1 活性酸素種の発生量

本研究は、超音波照射による活性酸素種を用いて、ND の表面を改質し、分散性を向上させる事を目的としている。電子スピン共鳴装置 (ESR) による DMPO を用いたスピントラップ法と KI 溶液による化学的定量法を用いて、活性酸素種の発生量を測定した。その結果を Figs.2 と 3 に示す。

Figure 2 より、水槽内の平均音響強度を増加させると、DMPO-OHの発生量も増加した。DMPO-OH は、活性酸素種のひとつであるOH・がスピントラ

UP剤DMPOによってトラップされて発生するので、平均音響強度を増加させると、OH・の発生量も増加したと考えられる。また、Fig.3の結果により、平均音響強度を増加させると、活性酸素種のひとつである過酸化水素の発生量も増加することがわかった。KI溶液中で遊離したI<sup>-</sup>は、過酸化水素で酸化されI<sub>2</sub>となり、さらにI<sub>3</sub><sup>-</sup>に変化することが知られている。Figures 2と3より、水槽内の平均音響強度 800W/m<sup>2</sup>付近に、超音波照射による活性酸素種発生 の 閾値があることがわかった。

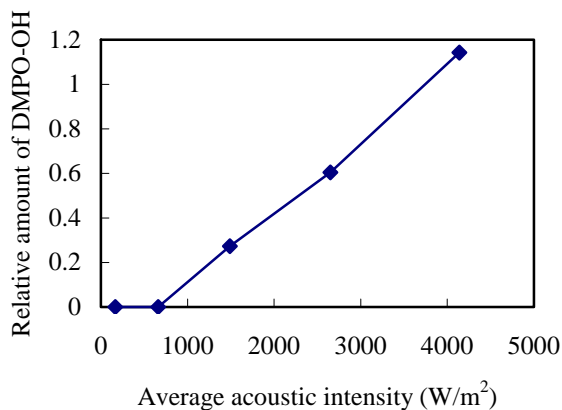


Fig.2 Relationship between average acoustic intensity and relative amount of DMPO-OH.

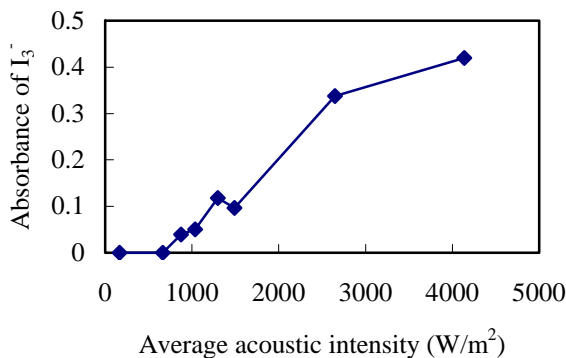


Fig.3 Relationships between average acoustic intensity and absorbance of I<sub>3</sub><sup>-</sup>.

### 3.2 ナノダイヤモンド微粒子の表面改質

本実験は、一次粒子が約 5nm であるが、凝集してしまっている ND を使用した。超音波照射による表面の変化をゼータ電位を測定する事で評価した。ゼータ電位は分散性の指標である。ゼータ電位の絶対値が大きいほど、分散性が良い。その結

果を Fig.4 に示す。

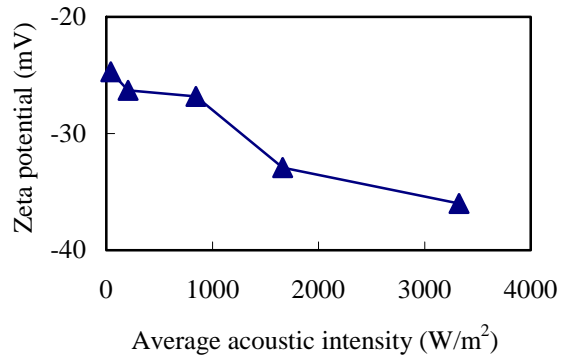


Fig.4 Relationship between average acoustic intensity in water tank and zeta potential of nano diamond particles after ultrasound exposure.

Figure 4 より、超音波照射によりNDのゼータ電位の大きさが向上して表面状態が改善される事がわかった。水槽内の平均音響強度を増加させると、NDのゼータ電位も増加した。また、平均音響強度で約 800W/m<sup>2</sup>付近に、NDの表面改質の閾値があると考えられる。この結果は、Figs 2と3の活性酸素種の発生の閾値の結果と良く対応している。

### 4. まとめ

ND の分散性の向上と超音波照射による活性酸素種の発生量の関係について検討した。

OH・と過酸化水素の発生を確認した。また、本実験で使用した超音波照射システムの水槽内の平均音響強度で 800W/m<sup>2</sup>付近に、活性酸素種発生 の 閾値がある事がわかった。NDのゼータ電位が水槽内の平均音響強度で 800W/m<sup>2</sup>以上で増加する事がわかった。

#### 参考文献

- 1) 黛 政男, “クラスターダイヤモンドの物性,” 季刊フラレン, pp.177-186, Oct.2001.
- 2) Takeyoshi Uchida, Akiko Hamano, Norimichi Kawashima, Shinichi Takeuchi : Jpn.J.Appl.Phys. 44 (2005) 4553
- 3) Takeyoshi Uchida, Toshio Satou, Shinichi Takeuchi, Naimu Kuramochi and Norimichi Kawashima: Jpn.J.Appl.Phys.42(2003)2967

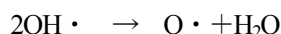
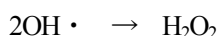
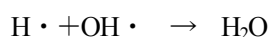
# 多泡性ソノルミネッセンス強度と化学反応力との相関性

## Relationship between intensity of multi bubble sonoluminescence and chemical reactivity

◎梶原太朗、原田久志 (明星大院 理工)  
Taro Kajiwara and Hisahsi Harada (Meisei Univ.)

### 1. 緒言

水あるいは、水溶液に超音波照射した時、水分子の分解により次の反応式で表されるようにH・やOH・ラジカルが生成される。



さらに、溶存気体を変える事で、さまざまな分子種を形成する<sup>[1]</sup>。上式では、過酸化水素が生成しているが、例えばこれを空気雰囲気下で飽和した水溶液では、硝酸や亜硝酸が生成することが知られている。また、キャビテーションが起きると同時に観測される発光の強度も溶存気体の種類に依存していることが知られているが化学的効果との相関性についての報告はない。今回は、この発光強度と化学的効果(反応性)との相関性について検討することを目的とし、化学的効果の目安として過酸化水素生成量を取り上げ、各反応雰囲気における発光強度との相関性について検討を行った。

### 2. 実験方法

実験に用いた装置の概要図をFig.1に示す。暗箱(フォトルミディテクティングチャンバー)内に超音波振動子(カイジョー,200kHz,200W)を置き、変形筒状フラスコに純水200ml入れ各反応雰囲気に置換後固定した。このように反応雰囲気を定めることによって

溶存気体の組成を定めた。また、発光強度の測定として、側方よりハママツホトニクス製ホトカウンティングヘッド(H7360-02)を用いて単位時間あたりの発生光子数を測定した。また、過酸化水素分析は、硫酸チタン発色法を用いた。

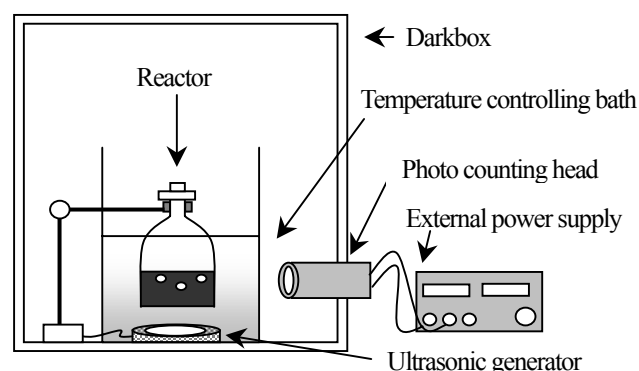


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental apparatus for sonoluminescence measurement.

### 3. 結果及び考察

Fig.2にアルゴン雰囲気における超音波出力と発生光子数の関係グラフを示した。出力が上がるにつれ発光光子数も増加しているのがわかる。しかし、出力6か

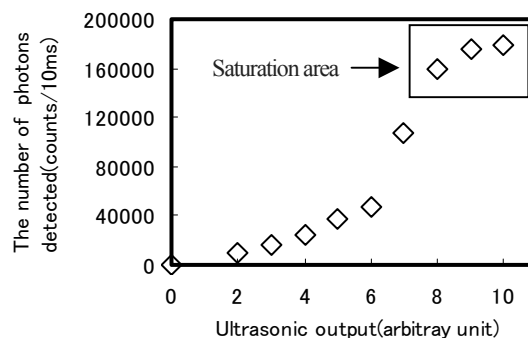
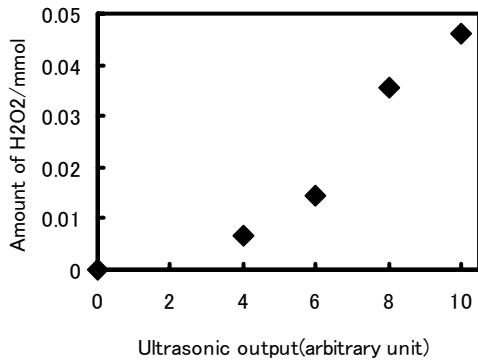
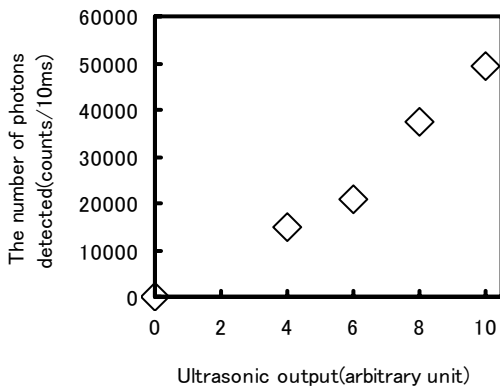


Fig. 2 Relationship between ultrasonic intensity and sonoluminescence intensity in an Ar atmosphere.



**Fig. 3-1 Relationship between ultrasonic intensity and chemical reactivity.**

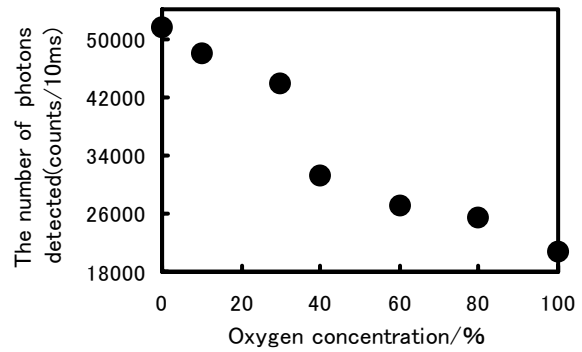


**Fig. 3-2 Relationship between ultrasonic intensity and sonoluminescence intensity in an O<sub>2</sub> atmosphere.**

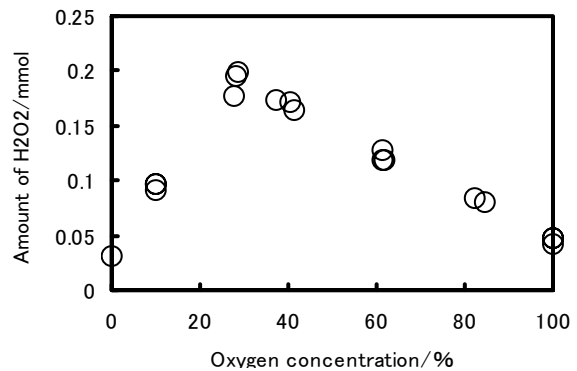
ら発光強度が急増し出力8付近から飽和してきている。これは、検出器の検出限界によるものと考えられる。

次に、酸素雰囲気中で超音波出力変化に対する発光強度と化学反応性について検討を行った。Fig3に示した通り発光強度が急増する出力6以上で超音波出力の増大に伴い両者とも直線的に増加し相関性が得られたと考えられる。酸素は過酸化水素生成に関与することが予測される。しかし、アルゴン雰囲気と比べてそれほど生成量は多くなかった。これは、酸素の場合にアルゴンのように強い発光強度が得られなかったためだと考えられる。すなわち、酸素の場合キャビテーション量（発光強度）が少ないため過酸化水素生成環境であるにも関わらず、アルゴン雰囲気と比べて過酸化水素がそれほど増加しなかったのであろう。

Fig4に、Ar-O<sub>2</sub>比に対する発生光子数（発光強度）及び過酸化水素生成量を示した。検出限界を避けるため出力6で実験を行った。アルゴンと酸素では、発生光子数に違いが見て取れる(Fig.4-1)。これは、熱容量比



**Fig. 4-1 Effect of O<sub>2</sub> concentration on the intensity of sonoluminescence.**



**Fig. 4-2 Effect of O<sub>2</sub> concentration on the chemical reactivity.**

が大きいアルゴンが酸素より強い発光を示している」と解釈している。発光強度は酸素濃度と逆相関しているが、30%~40%で傾きが変化しているように見える。この理由は現在検討中である。一方、過酸化水素生成量もこの濃度付近でピークとなっている。従って何らかの特異性があるのではないかと考えられる。

#### 4. 結論

今回、多泡性ソノルミネッセンス強度と化学反応性（過酸化水素生成量）を取り上げ検討したところ、同一気体雰囲気では相関性が得られた。混合気体についてはさらに検討が必要である。

#### 引用文献

- [1] 超音波便覧 (1999.8) 310-311

e-mail:harada@chem.meisei-u.ac.jp

## KI 定量法による円筒型超音波反応器の評価 Characterization of Sonochemical Reactors by Chemical Dosimetry

○朝倉 義幸 (本多電子、名大)、前林 正弘、松岡 辰郎、香田 忍 (名大)  
Yoshiyuki Asakura (Honda Electronics, Nagoya Univ), Masahiro Maebayashi, Tatsuro Matsuoka  
and Shinobu Koda (Nagoya Univ.)

### 1. 緒言

超音波キャビテーションを利用した化学反応を工業的に実用化するためには、超音波反応器を効率良くスケールアップすることが課題である。超音波による化学作用の効率を上げるために、200 kHz から 500 kHz の周波数の超音波照射が有効であることが報告されている。<sup>1)</sup> 近年、筆者等は液面高さを 520 mm にした円筒型超音波反応器を用いて、下から上に超音波を垂直照射した場合の化学作用の効率に高さ依存性があることを報告した。<sup>2)</sup>

今回、照射方向の違いによる化学作用の効率を調べるため、超音波を水平に照射した場合の化学作用の効率を垂直照射の場合と同じ KI 法を用いて評価し、垂直照射の場合と比較した。

### 2. 実験

#### 2.1 円筒型超音波反応器

円筒型超音波反応器の構成図を Fig.1 に示す。円筒型反応器は内径 70 mm、厚さ 5 mm の透明アクリル製で、超音波を水平照射するため、Fig.1 に示すように円筒の軸方向を水平にしている。円筒型反応器と振動子の写真を Fig.2 に示す。Fig.2(a)に示すように、アクリルパイプ内側にステンレス製の防水振動子 (Fig.2(b)) が Oリングにより密着されている。振動面から 500 mm の距離に振動子と同形状の防水型反射板が対向している。振動板は厚さ 2 mm のステンレス製で裏側は空気層である。

周波数 490 kHz の連続波をファンクションシンセサイザー (エヌエフ回路設計ブロック製 MODEL: WF1942) で発生させ、パワーアンプ (本多電子製 MODEL: L-400BM-H) で増幅して振動子 (本多電子製、直径 50 mm) を駆動した。

E-mail:yoshi@honda-el.co.jp

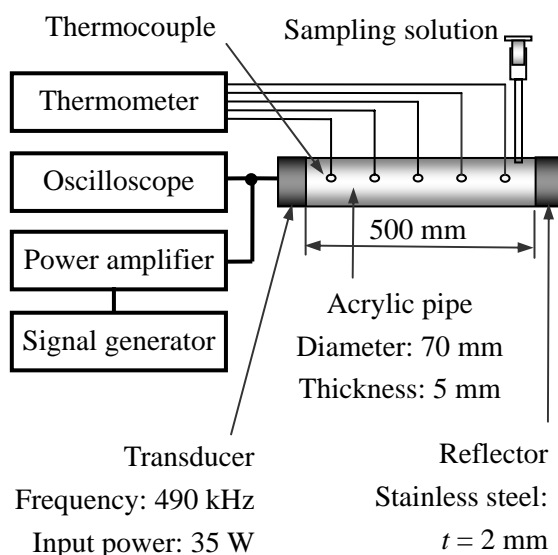


Fig.1 Experimental setup

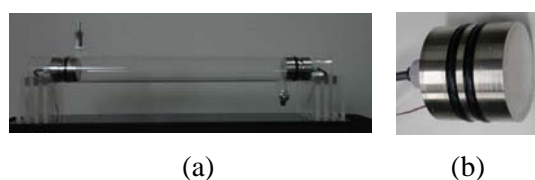


Fig.2 Photograph of the (a) sonochemical cylindrical reactor and (b) transducer

#### 2.2 化学反応の定量化

超音波による化学作用の定量法として、ラジカルによるヨウ化カリウム(KI)水溶液の酸化反応を用いた。超音波を KI 水溶液に照射するとキャビテーションにより  $I_3^-$  が生成される。紫外可視分光光度計 (日本分光製 MODEL: U-best30) を用い、355 nm に吸収を持つ  $I_3^-$  イオン ( $\epsilon = 26,303 \text{ dm}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ ) の吸光度を測定することで、超音波の化学作用を定量化した。<sup>1)</sup>

0.1 mol·dm<sup>-3</sup> の KI 水溶液を円筒型反応器内に満たし、入力電力 35 W で 15 分間超音波照射した。照射後、円筒型反応器の円筒軸上の各点から 3 cm<sup>3</sup> づつ溶液をサンプリングして吸光度を測定し、I<sub>3</sub><sup>-</sup>イオンのモル濃度を求めた。

### 2.3 熱量測定

円筒型反応器内に投入された超音波エネルギーを求めため熱量測定法を用いた。円筒型反応器の軸上で、振動子からの距離が 50 mm, 150 mm, 250 mm, 350 mm, 450 mm の各点の温度を熱電対 (Omega Engineering Inc 製、直径 0.127 mm、T 型) とデータ収集システム (キーエンス製、NR-500 & NR-TH08) を用いて記録した。

### 2.4 サーモグラフィーによる温度測定

円筒アクリル表面の温度分布および温度の時間依存性を調べるために、赤外線サーモグラフィー (日本アビオニクス社製 MODEL:TVS-110) を用いて 30 秒毎の赤外線サーモグラフ画像を記録した。

## 3. 結果と考察

超音波を水平照射した後の、円筒型反応器の中心軸上における振動子からの距離に対する I<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度を Fig.3 に示す。I<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の距離依存性がわずかに見られた。

熱量測定より円筒型反応器内に投入されたエネルギーを求め、単位エネルギーあたりに生成される I<sub>3</sub><sup>-</sup>量より、音響化学的な効率である平均 SE 値 (Sonochemical efficiency) を求めた。比較のために、同じ実験装置を縦置きにして、下から上へ超音波を垂直照射した場合の平均 SE 値

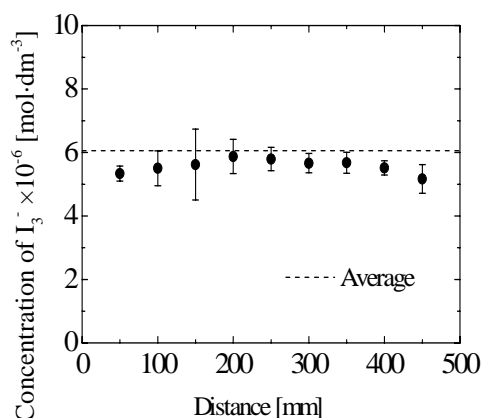


Fig.3 Concentration distribution of I<sub>3</sub><sup>-</sup> against the distance from the transducer

Table I Averaged sonochemical efficiency (SE) against the direction of irradiation

Direction	Averaged SE-value ×10 <sup>-10</sup> [mol·J <sup>-1</sup> ]
Horizontal	3.7±0.3
Vertical	4.0±0.3

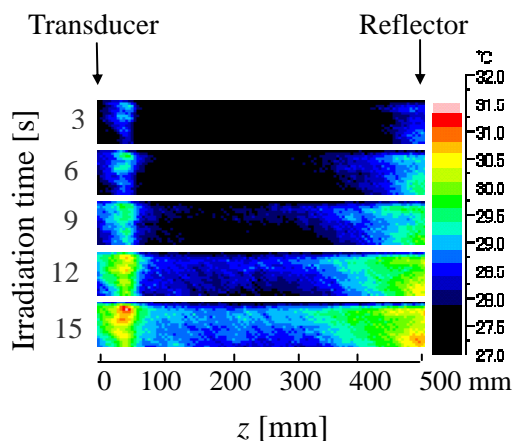


Fig.4 Temperature of the reactor surface against the irradiation time by thermography

を **Table I** に示す。垂直照射の場合、液面に反射板はなく自由面である。垂直照射と水平照射ともに平均 SE 値はほぼ同じであった。

サーモグラフィーによる円筒型反応器表面の温度の時間変化を **Fig. 4** に示す。時間と共に反応器表面の温度が上昇し、特に反射面近傍の温度が高くなっている。これは垂直照射の場合と同じであった。<sup>2)</sup>

### 謝辞

本研究の一部は独立行政法人日本学術振興会の科学研究費補助金「物質循環のためのソノプロセスの確立」課題番号 17360382 の研究助成を受けて行われました。

### 引用文献

- 1) S. Koda, T. Kimura, T. kondo and H. Mitome: Ultrason.Sonochem., **10** (2003) 149.
- 2) Y. Asakura, M. Maebayashi and S. Koda: accept for publication (2005).

## 水溶液中ナノカーボン材料の超音波合成 Sonochemical synthesis of nano-carbon materials in aqueous solutions

◎畑中 信一、白井 洋至、林 茂雄 (電通大 量子・物質工学科)

Shin-ichi Hatanaka, Yoji Shirai and Shigeo Hayashi (Univ. Electro-Commun., Dept. Appl. Phys. Chem.)

### 1. 緒言

液体への超音波照射で、カーボン・ナノ材料が生成する。1998年、産総研のKatohらは液体ベンゼンへの超音波照射で、フラーレンC<sub>60</sub>が生成したことを報告し<sup>1)</sup>、続く1999年には、クロロベンゼンや*o*-ジクロロベンゼンに塩化亜鉛粒子または亜鉛粒子を添加することでカーボンナノチューブが生成したことを報告した<sup>2)</sup>。カーボンナノチューブを含めフラーレンの生成は、アーク放電法やレーザー蒸発法などに見られるように、2000~5000℃の高温環境が必要なため、常温の液体中での生成は画期的である。

ソノケミストリーにおいて、液体は常温であっても、音響キャビテーション気泡は圧壊時に約5000℃に達することが知られている<sup>3,4)</sup>。フラーレンの生成機構に未知の部分が多く、人為的に操作可能なのは炭素を気化する段階だけの現在では、ソノケミカル合成法で従来法レベルの大量合成ができる可能性がある。キャビテーション気泡の温度は、溶存ガス種によって変化することが明らかにされており<sup>4)</sup>、また、周波数や音場の違いによっても異なると考えられている<sup>5)</sup>。

そこで本研究では、キャビテーション気泡に影響する種々の実験条件を変化させて、フラーレン生成の最適条件を見つけることを目的とする。今回我々は、Katohらの報告にある有機溶媒ではなく、水溶液中に微量に溶解したベンゼンよりナノカーボン材料を生成したので報告する。

### 2. 実験装置および方法

実験装置を Fig. 1 に示す。実験は音場の異なる

hatanaka@pc.uec.ac.jp

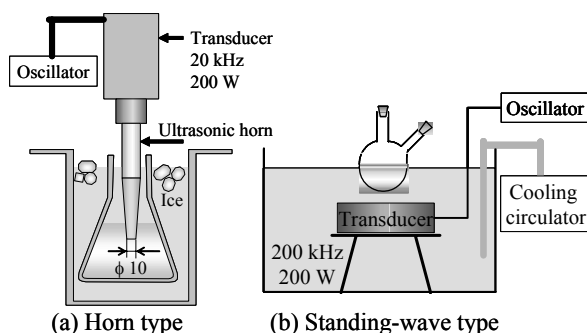


Fig. 1. Experimental setup.

2種類の装置を用いて行った。Fig. 1 (a)はホモジナイザーとしてよく用いられるホーン型の超音波照射器であり、チタン製ホーン先端を直接試料に入れて、大振幅の超音波を照射するタイプである。音場は進行波的となる。Fig. 1 (b)は投げ込み型の振動子を水槽に入れ、冷却水を通して容器底面から超音波を照射するタイプである。試料容器内では定在波音場が形成されている。以下、Fig. 1 (a)の装置をホーン型、Fig. 1 (b)を定在波型と呼ぶ。ホーン型では周波数 20 kHz、最大出力 200 W のパースト波(大岳製作所、Sonicator5202PZT)を 30 mL 三角フラスコ内の試料 20 mL に照射した。フラスコは氷浴に浸して冷却した。定在波型では周波数 200 kHz、最大出力 200 W の連続波 (KAIJO、TA4021)を 100 mL 二口なすフラスコ内の試料 115 mL に照射した。なお、冷却水は 20℃に設定した。

試料の調製方法を以下に示す。市販のベンゼン 3.6 g を 10 mL メスフラスコ内に入れエタノールで定量にし、その溶液 700 μL を取って milli-Q 水 115 mL に溶解した。水溶液中のベンゼン濃度は 28 mmol/L である。クロロベンゼン、*o*-ジクロロベンゼン水溶液についても同様に調製した。調製した水溶液またはベンゼン等の有機溶媒そのものにアルゴン等のガスを 20 min バブリングして試料溶液とした。

### 3. 実験結果および考察

定在波型で、ベンゼン水溶液に超音波を照射すると、20分で溶液が黄色く色づき、5時間後には溶液が濁りはじめて不透明になり、7時間後には泥のような濃い黄土色となった。この傾向は、溶存ガスがアルゴン、空気とも同様であった。7時間照射した溶液からジエチルエーテルで分液抽出すると3相に分かれ、上部に濁った茶色のエーテル相、下部に透明な黄色の水相、その中間に泡のような相が現れた。中間の相を遠心分離機にかけて固まらせた試料の写真を Fig. 2 に示す。Fig. 2 (a)は溶存ガスがアルゴンの場合で、Fig. 2 (b)は空気の場合である。両者とも大きな差がないことがわかる。なお、(a)の試料の収量は4.1 mgであった。

Fig. 2 (a)の試料のTEM写真を Fig. 3 に示す。Fig. 3 (a)は低倍率のTEM像であり、Fig. 3 (b)は高倍率のTEM像である。Fig. 3 (b)の像から、グラファイトの格子面が確認でき、この物質がグラファイトであることがわかる。また、Fig. 3 (a)の像から、100 nm オーダーのグラファイト粒子がクラスター状になっていることがわかる。これより、ベンゼン水溶液から、超音波照射によって、カーボンナノ粒子が生成したことが明らかとなった。

一方、定在波型で純粋の液体ベンゼンに超音波を照射しても全く変化がなかった。アルゴン下で10時間超音波を照射した試料は無色透明のままであった。

ホーン型の結果は、定在波型と逆の結果となった。アルゴンバブリングしたベンゼンへの超音波照射で、5分後には黄色く着色した。また、塩化亜鉛粒子、亜鉛粒子を添加した *o*-ジクロロベンゼンは両方とも黒く着色した。この結果は Katoh による結果<sup>1,2)</sup>と一致している。一方で、ベンゼン水溶液および亜鉛粒子を添加した *o*-ジクロロベンゼン水溶液は、同条件の照射では全く変化が見られなかった。

ホーン型と定在波型では、気泡の到達温度が異なることが Yasui<sup>5)</sup>によって理論的に提案されている。ホーン型ではどの気泡も5000°C程度になるが、定在波型では、1万°Cを越える気泡が存在するとしている。また、ナノカーボンの生成に重要

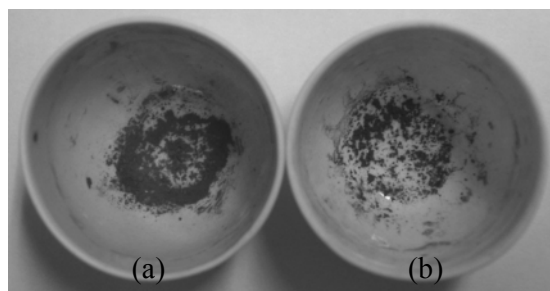


Fig. 2. Photographs of the products irradiated by ultrasound at 200 kHz for 7 h. under argon (a) and air (b).

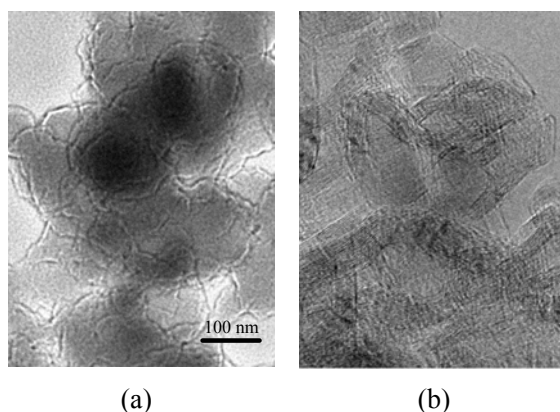


Fig. 3. TEM images of the product shown in Fig. 2 (a); the image (a) is the low magnification ( $\times 80$  K) and (b) is the high ( $\times 400$  K).

な気泡の冷却速度の違いの影響かもしれない。

### 4. 結言

定在波型の超音波の照射により、ベンゼン水溶液からカーボンナノ粒子が生成した。一方、液体ベンゼンには全く変化がなかった。この結果は、ホーン型のナノカーボンの生成結果とは全く逆の結果であった。

### 引用文献

1. R. Katoh et al.: Ultrason. Sonochem. **5** (1998) 37.
2. R. Katoh et al.: Ultrason. Sonochem. **6** (1999) 185.
3. E. B. Flint and K. S. Suslick: Science **253** (1991) 1397.
4. W.B. McNamara III, Y.T. Didenko and K.S. Suslick: Nature **401** (1999) 772.
5. K. Yasui: J. Chem. Phys. **115** (2001) 2893.

# 水熱合成 PZT 厚膜を用いた 20MHz 帯での強力超音波の発生

## High-intensity ultrasonic radiation of over 20 MHz using hydrothermal PZT thick film

石河睦生・黒澤 実(東工大・総理工),  
遠藤聡人・内田武吉・竹内真一・川島徳道(桐蔭横大・医用工)

Mutsuo Ishikawa, Minoru Kuribayashi Kurosawa (Tokyo institute of Technology),  
Akito Endo, Takeyoshi Uchida, Shinichi Takeuchi, Norimichi Kawashima (Toin University of Yokohama)

### 1. はじめに

数 10 MHz 以上の帯域で十分な送受波感度を有し、更には広帯域な特徴を持つ超音波トランスデューサの開発は超音波診断、超音波治療への応用を考えると重要な研究テーマである。そこで我々は、水熱合成法により Ti 基板に PZT 多結晶厚膜を成膜する方法<sup>1) 2) 3)</sup>を利用し、高周波、高感度、広帯域を同時に満たすような超音波トランスデューサを作製することを試みている。現在までに超音波送信実験<sup>4)</sup>と受信実験<sup>5)</sup>を行い、数 MHz ~ 20 MHz において、広帯域に十分な送受波感度を有するという実験結果を得ている。今回は厚み振動モードの共振周波数を利用した連続駆動での高出力特性について報告する。

### 2. 超音波トランスデューサの試作

水熱合成法により、厚み 50  $\mu\text{m}$  の Ti 基板上に約 50  $\mu\text{m}$  の PZT 多結晶膜を形成した。成膜された PZT 厚膜の表面には 5 mm $\times$ 5 mm の寸法で金を蒸着した。Ti 基板を対極として用いることで超音波トランスデューサとした。音響整合層やバッキング層は有していない単純な構造である。水熱合成 PZT 多結晶膜の音速と厚みから、厚み振動モードの共振周波数を見積もると約 20 MHz となり、実際に共振周波数をインパルス応答により測定した結果は 21.4 MHz であった。

### 3. 超音波放射の測定方法

試作トランスデューサを蒸留水中に浸し、共振周波数での駆動による出力特性について測定を行った。試作トランスデューサの駆動には、フ

ンクションジェネレータからの信号をアンプ (ENI A300, 55dB) で増幅した電圧を印加した。駆動に用いた信号は、試作トランスデューサの共振周波数である 21.4 MHz の正弦波を 200 波とした。

放射された音圧の測定にはハイドロフォン (NTR, TNU001A) を使用した。ハイドロフォンは試作トランスデューサから距離 30 mm の場所に固定した。ハイドロフォンで検出した電圧をパルサーレーバを通して 40 dB 増幅し、オシロスコープ上に表示した。検出した電圧の振幅値とハイドロフォンの受波感度から音圧を求めた。

### 4. 実験結果

試作トランスデューサを印加電圧 1 V、周波数 21.4 MHz の正弦波 200 波で駆動した時、ハイドロフォンでの受信波形を Fig.1 に示す。外乱の影響を受けずに、送信から約 20  $\mu\text{s}$  後 (距離 30 mm) に音波を検出していることが分かる。

次に印加電圧を 1 V から 25 V まで変化させた時の試作トランスデューサの入出力特性を Fig.2 に示す。距離 30 mm での測定では、印加電圧が 10 V を越えた時点で放射される音圧が 100 kPa を越えることが分かった。また、この時に検出電圧の波形に歪が観測された。現時点では印加電圧が 20 V の時、最大 195 kPa までの音圧を放射できることを確認している。なお、駆動に用いる信号の波数を 200 波から倍以上に増加した場合においても、放射される音圧の振幅値には変化がなかった。また、印加電圧 25 V の連続波による駆動では、目視による明らかな音響流が観測された。

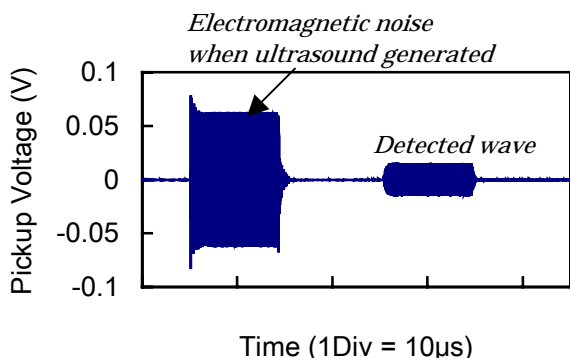


Fig.1 Ultrasonic 10 - cycle sine wave detected by the hydrophone radiated that from the hydrothermal PZT thick film ultrasonic transducer.

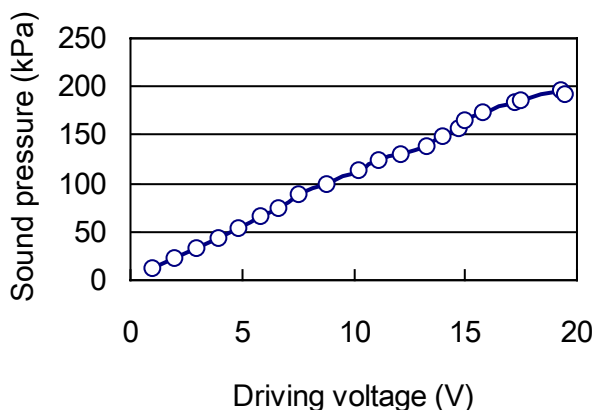


Fig.2 The driving voltage - the generation sound pressure characteristics at 21.4 MHz using the hydrothermal PZT thick film ultrasonic transducer; at a distance of 30 mm from the radiator surface.

## 5. 音響化学作用の有無の観測

今回、蒸留水中において、21.4 MHz で 100 kPa 以上の音圧を連続に放射可能であるという結果を得た。この時、非線形現象も観測されており、キャビテーションが発生している可能性もある。そこで、音響化学作用の有無についての調査を行った。音響化学作用は、キャビテーションの圧壊・収縮時に発生すると言われている。例えば、キャビテーションの圧壊・収縮による準断熱圧縮が関係した水分子の分解反応により、活性酸素種が生成され、それが作用する酸化反応がある。今回の測定では超音波強度の定量化方法の一つであるヨウ化カリウムを用いた酸化反応の測定<sup>6)</sup>を行った。ヨウ化カリウム溶液は、酸化反応によりヨウ素イオンとなる。この酸化反応を超音波によるキャビテーションの発生と圧壊・収縮で引き起こし、ヨウ素イオンを生成する。生成されたヨウ素イオンは波長 350 nm の紫外線に吸収の極大を持つ性質があるので、その性質を利用して

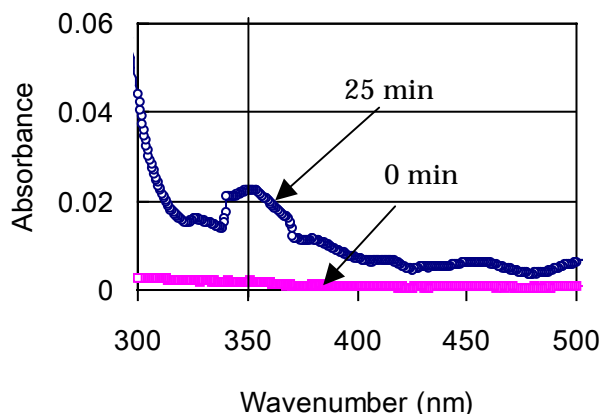


Fig.3 The absorption spectrum of the iodine ion in the ultrasonic radiation of 100 kPa at 21.4 MHz.

分光光度計 (V-550, 日本分光) を用いた吸光スペクトル測定を行うことでヨウ化カリウム溶液の酸化反応が測定できる。

実験では容器に濃度 0.1 M のヨウ化カリウム水溶液 100 ml を入れて超音波照射を行った。駆動の条件は周波数 21.4 MHz、放射音圧 100 kPa、照射時間 25 分である。超音波照射と溶媒中のヨウ素イオンによる吸光スペクトルの変化の関係を Fig.3 に示す。超音波の照射によりヨウ素イオンの吸収の極大である波長 350nm 付近の値が増加する傾向を確認した。

## 4. まとめ

水熱合成 PZT 多結晶膜による超音波トランスデューサを利用して、共振周波数 21.4 MHz において 195 kPa までの超音波を連続的に放射可能であることを示した。また、超音波照射により発生したキャビテーションが寄与すると考えられる酸化反応の測定を行った。今後は更に複数の条件下で実験を行い、活性酸素種の同定や、20 MHz 帯での放射音圧と活性酸素種の発生量の比率等を求める予定である。

## 謝辞

本研究は日本学術振興会、特別研究員制度の研究奨励金の支給を受けて行われた。

## 参考文献

- 1) Y. Ohba, M. Miyauchi, T. Tsurumi and M. Daimon: *Jpn. J. Appl. Phys.* 32, 4095, (1993)
- 2) T. Morita, M. K. Kurosawa and T. Higuchi: *IEEE Trans. UFFC*, 45, (1998)
- 3) T. Kanda, T. Morita, M. K. Kurosawa and T. Higuchi: *Sensor and Actuators A*, 83, 66, (2000)
- 4) M. Ishikawa, M. Kurosawa, A. Endoh, S. Takeuchi: *Jpn. J. Appl. Phys.* 44, 4342, (2005)
- 5) H. Kitsunai, T. Suzuki, N. Kawashima, S. Takeuchi, E. Ohdaira, M. Ishikawa, M. Kurosawa; *IEEE Trans. UFFC, 50th Anniversary*, 2001, (2004)
- 6) A. Weissler, H. Cooper, S. Synder, *J. Am. Chem. Soc.* 72, 1769, (1950)

## 近距離場音波浮揚ユニットの大型化

### Enlargement of the levitation unit using the near-field acoustic levitation

高三 正己 (豊田自動織機) 小池 義和 (芝浦工大・工)

中村健太郎 (東工大・精研) 上羽 貞行 (東工大・精研)

Masaki Takasan (Toyota Industries Corp.), Yoshikazu Koike (Shibaura Institute of Technology), Kentaro Nakamura, and Sadayuki Ueha (Tokyo Institute of Technology)

#### 1. はじめに

近年、液晶やシリコンウェハーなどの板状物体を非接触で搬送するニーズが高まっている。特に、液晶のガラス基板では、基板サイズが大型化しており、一辺が 2m を越えるような基板サイズになってきている。このような大型の浮揚物体の非接触搬送を実現するために、橋本らにより近距離場音波浮揚現象を用いた非接触搬送装置が提案されている<sup>1)</sup>。この搬送装置では、たわみ進行波を励振させ、非接触搬送を実現しており、また、搬送装置の直列接続、並列接続により大型化を目指している<sup>2)</sup>。しかし、大面積の振動板に安定にたわみ進行波を励振し、完全非接触搬送を行うことは実用上困難である。本研究では、浮揚物体の中央部では定在波たわみ振動により浮揚力を与え、推力は浮揚物体の端部で接触を介して搬送する搬送装置(浮揚ユニットと呼ぶ)の実現を目指す。本報告では、長さ 3m の振動板を用いて、浮揚ユニットの大型化を試みた結果について述べる。

#### 2. 近距離場音波浮揚ユニットの大型化

近距離場音波浮揚ユニット(以下、浮揚ユニットと呼ぶ)の構成は、Fig.1 のように振動板の両端を、ジュラルミンのホーンにネジ止めしている。

従来、浮揚ユニットの長さ 1m 程度までは必要な振動特性が確保できているが、それ以上長くした場合、振動板の自重によるたわみや振動振幅の減衰が問題になることが懸念された。今回は振動板長さ 3m に対して、その影響を検討した。

Fig.1 のような構成で中間支持がない場合、ジュラルミンの長さ 1m、板厚 3 mm の振動板で、理論的に 20 mm の自重によるたわみが生じる。自重たわみを 5 mm 以下とするには、630 mm ピッチで支持する必要があるが、実際には、振動板とホーンを面接触するようにネジで締結するので、約 1 m ピッチまで支持可能であった。しかし、1 m 以上となると組み付けが困難なことや、低次モードの不要振動などが問題となった。

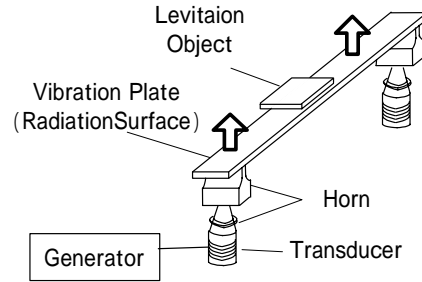


Fig.1 The structure of a levitation unit.

そこで振動板の振動の節位置をフェルトで点接触となるように、1m 間隔で支持する方法で、自重たわみを防止した。

3m の振動板を縞モードで駆動できる形状を FEM 解析によって求め、これについて振動振幅の距離減衰を実測した。この形状設計では、振動板の端部の長さ(L)を最適化し、端部長さ(L)を 39 mm (Fig.2) にすることで、全長で均一な振幅となる縞モードが得られた (Fig.3(a))。実測においても、解析と一致した縞モードが得られた (Fig.3(b))。また、共振周波数も解析値が 19.2 kHz に対して、実測では 19.4 kHz となり、ほぼ一致した。

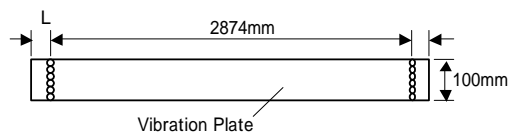
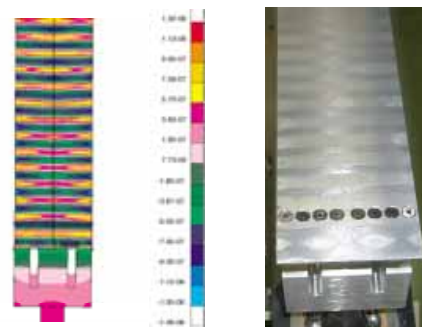


Fig.2 Dimensions of the vibration plate.



(a) Analysis

(b) Measurement

Fig.3 The vibration mode.

masaki.takasan@mail.toyota-shokki.co.jp

振動振幅の距離減衰は、振動板の長さ方向で 10 % 以下と小さかった (Fig.4)。Fig.4 は、振動振幅のピーク (腹部) のみをプロットしたグラフである。このとき、振動子への入力電力は 120 W であった。1 m 長さの振動板で同じ振動振幅の条件では 43W であったので、振動子への入力電力は、振動板の長さにはほぼ比例した。

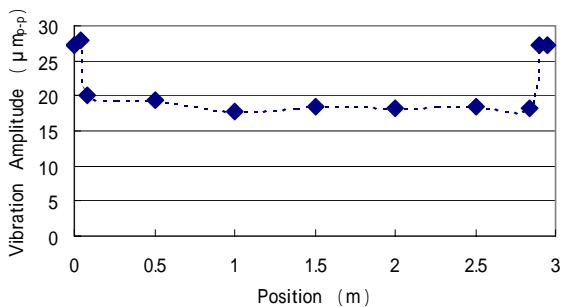


Fig4. Vibration amplitude distribution along the length direction.

### 3. 非接触支持方法の検討

振動板の自重たわみを点接触で支持することで 3m の振動板を励振可能なことを確認したが、クリーンルームなどでの使用を想定すると、接触なく発塵しないことが望ましい。そこで、非接触での支持方法を検討、評価した。

振動板の下面へも上面と同様に放射圧が発生することに着目すると、下面に板状の物体 (以下、反射板と呼ぶ) を配置することで、非接触支持できると考えた (Fig.5)。

反射板は、3m の振動板に対して、1m 間隔で配置し、反射板の大きさを 50 mm 角、70 mm 角、100 mm 角の 3 種について、振動振幅が  $20 \mu\text{m}_{p-p}$  の条件で得られる振動板と反射板のギャップを評価した。反射板は、板厚 3 mm のアクリルを用いた。反射板が 70 mm 角以上で  $50 \mu\text{m}$  以上のギャップが確保でき (Fig.6)、この条件では振動板と反射板の接触がなく、安定して非接触状態を保つことができた。ギャップが  $50 \mu\text{m}$  以下になっても非接触支持は可能であったが、浮揚ユニットの ON, OFF を繰り返した場合、OFF 時の接触で位置ずれが生じて、振動板と反射板が接触することがあった。振動板と反射板の接触がない場合、ギャップは反射板の面積にほぼ比例した (Fig.6) ので、反射板と振動板が平行な状態になっている。

また、振動特性、浮揚特性への影響として、反射板の直上の振動振幅、浮揚距離を測定したが、反射板のない場合に比べ、振動振幅と浮揚距離が約 10% 低下した (Fig.7)。振動子への入力電力も 123 W で、フェルトで接触支持した場合にくらべ、3 W 増加した。これは、振動板と反射板との間の音響損失によるものと思われる。

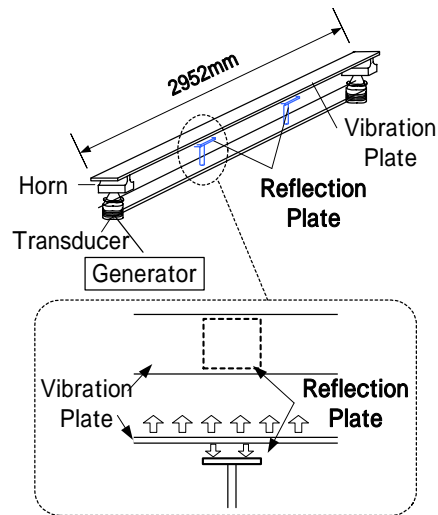


Fig.5 The structure of non-contact support.

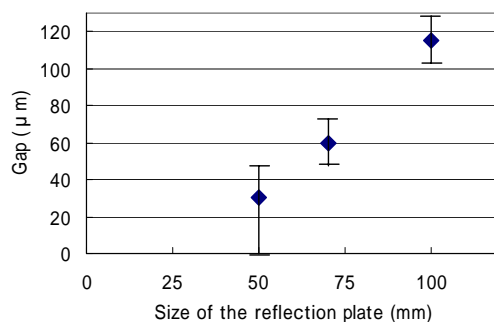


Fig.6 The gap versus the size of the reflection

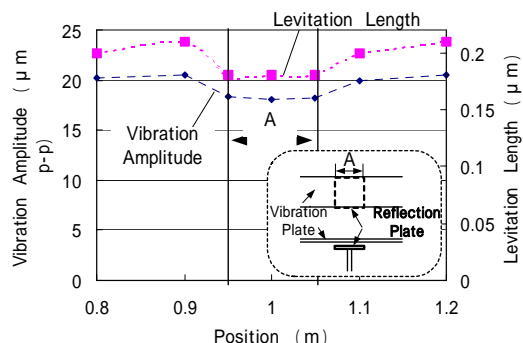


Fig.7 Vibration amplitude and levitation length distribution along the length direction.

### 4. まとめ

浮揚ユニットを 3 m まで長くしても振動特性が得られることが確認できた。また、振動板の長尺化にともなう自重たわみも、反射板を考案することにより、非接触での支持を可能にし、たわみを防止できた。また、反射板による振動、浮揚特性への悪影響はほとんどなく、実用的な大型の浮揚ユニットが実現できたと考える。

### 引用文献

1. Y. Hashimoto et al: J.Acoust.Soc.Am.,103(6), 3230 (1998)
2. Y. Hashimoto et al: Jpn.J.Appl.Phys.,36-5B, 3140 (1997)

## 受信信号のアンダーサンプル記録が 合成開口ソナーに及ぼす影響

Influences on a synthetic aperture sonar by undersampling of the echoes

澤隆雄（海洋機構） 鎌倉友男（電通大）

Takao Sawa(JAMSTEC), Tomoo Kamakura(UEC)

### 1. はじめに

ソナー送受波器が一直線上を進む理想的な条件であれば、合成開口ソナー（SAS：Synthetic Aperture Sonar）は従来ソナーより飛躍的に高い分解能となる。しかし直線的に進まなければその能力を十分に発揮する事ができない<sup>[1]</sup>。そのため波浪の影響が避けられない船舶などにSASを搭載するため、動揺振幅の限度<sup>[2]</sup>や動揺補正法<sup>[3]</sup>などを議論した多くの報告がある。筆者らは周期性を持つ動揺が観測結果に虚像を発生させ、また動揺情報の帯域を制限した動揺補正が可能であることを明らかにした<sup>[4,5]</sup>。しかし動揺補正を含む処理はコンピュータの負担を重くし、実用的な補正を行うためには演算処理量を少なくする必要がある。

これらを踏まえ、本研究では受信波をアンダーサンプルし、それを合成開口処理に用いる事で処理軽減を試みた。処理データには音響水槽で行った合成開口実験でのデータを用い、合成開口処理に及ぼす影響を確認した。

### 2. 水槽実験

音響水槽を用いて行ったSAS実験の概略図をFig.1に、実験パラメータをTable1に示す。送受波器は水槽上に設置したXYステージによって、一定速度で移動しながら目標への送受波をする。目標は直径7cmの発泡スチロール球で、送受波器とほぼ同深度に、レンジ位置約1mアジマス位置約1mに設置した。送受波器は水平方向に無指向性である。

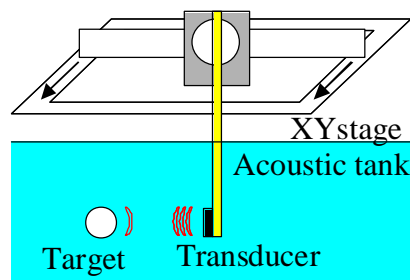


Fig.1 Overview of the experimental set-up.

Table 1 Test conditions

Platform velocity	0.15m/s
Pulse frequency $f$	50 -> 60kHz
Pulse width	0.5ms
Pulse repeat frequency	0.05s
Synthetic aperture length $L$	0.5m
Sound velocity $C$	1480m/s
Target range $R$	1.0m
Azimuth resolution $CR/2Lf$	About 27mm
A/D frequency	1Mhz

### 3. アンダーサンプル処理

本研究では受信波を一旦ADコンバータで高速サンプリングし、そのデータを一定間隔で間引き、同じ受信信号から複数のアンダーサンプルデータを生成した。合成開口プログラムの処理はアンダーサンプルの有無とは関係なく、最終的なサンプリング周波数のみの影響を受ける。今回は高速サンプリングデータを5、20、22データ毎にサンプリングしたが、この場合の記録周波数はそれぞれ200kHz、50kHz、45.45kHzに相当する。よって200kHzではオーバーサンプリング、50kHzと45.45kHzでアンダーサンプリングとなる。

### 4. 結果と考察

Fig.2, 3, 4はそれぞれサンプリング周波数が200、

sawa@jamstec.go.jp

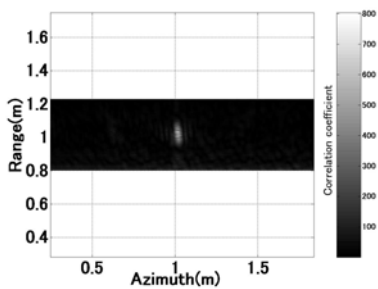


Fig.2 The image at 200kHz

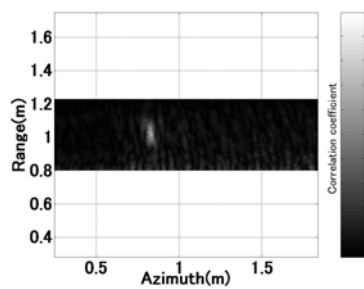


Fig.3 The image at 50kHz

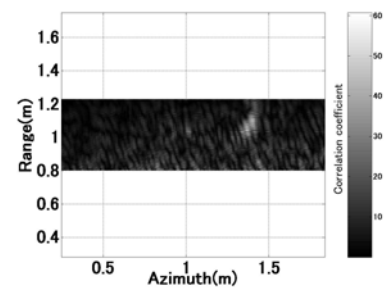


Fig.4 The image at 45.45kHz

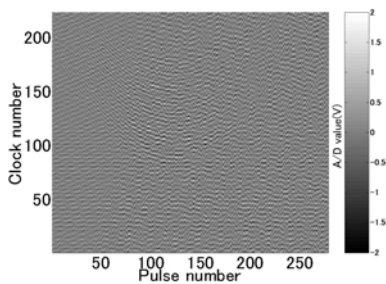


Fig.5 The sampling data at 200kHz

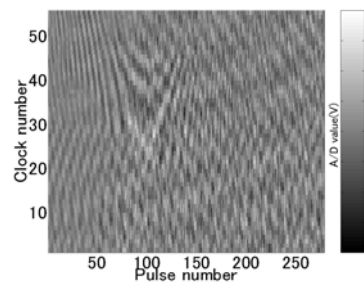


Fig.6 The sampling data at 50kHz

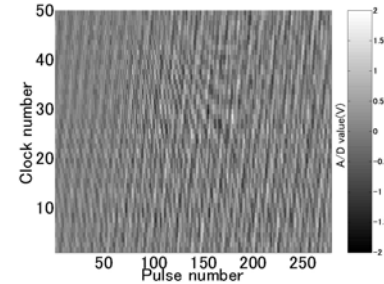


Fig.7 The sampling data at 45.45kHz

50、45.45kHz のデータを用いた合成開口処理で得られた画像である。画像は縦軸が観測点のレンジ位置、横軸がアジマス位置、濃淡がその点の反射波強度を表し、ちょうど真上から目標を見下ろした画像に相当する。いずれの画像でも目標を表す白い光点が確認できるが、Fig.2 では目標は設置位置に観測されるものの、Fig.3 ではアジマス位置が少し左にずれ、Fig.4 ではアジマス位置が大幅に右にずれ、さらにレンジ位置も少し上（奥）側に变化した。

このとき、それぞれの結果に対応するサンプリングデータがFig.5、6、7である。画像は縦軸がサンプリングデータを記録クロック順にならべたときの番号、横軸が送信パルスに対応する番号である。実験では目標は送受波器と同深度であるので、合成開口処理画像での目標位置と、サンプリングデータでの反射信号波形の位置は、およそ一致する。オーバーサンプリングに相当するFig.5では本来のレンジカーバチャー曲線が確認できる。しかしアンダーサンプリングであるFig.6では左にずれた位置に、Fig.7では大きく右に、かつ上にずれた位置にレンジカーバチャー曲線が現れており、これが処理結果にも反映されたと言える。シミュレーションではこのような結果はなかった事から、これらは外乱が原因で、送受波器の位置ずれとノイズの影響によると思われる。

送受波器の位置ずれは、十分高速にオーバーサン

プリングした場合であれば、信号が単にクロック番号方向にずれて記録されるだけである。しかしアンダーサンプルではそれと同時に位相もずれる。これは位置のずれとサンプリング周波数の関係によっては、局所的にレンジカーバチャー曲線に似た位相変化が発生する事を意味し、今回の結果はこれが表われたためと考えられる。同時に、サンプリング周波数の低下はそのままS/Nの低下でもあるため、位相情報が不鮮明となる事で、目標ずれも起きやすくなると考えられる。

## 謝辞

本研究は日本学術振興会平成 17 年度科学研究費補助金（若手研究(B)16760659）を受けて行った。

## 引用文献

- [1] 日本写真測量学会：合成開口ソナーハンドブック、朝倉書店、p.34。
- [2] 海洋音響学会合成開口ソナー部会：合成開口ソナー PP.18-19。
- [3] R.W.Sherif：Proc. the '96 IEEE symposium on AUV Technology pp.236-245(1996)。
- [4] 澤、中村：USE2004 講演論文集 Vol.25 pp.463-464 (2004)。
- [5] 澤、鎌倉：日本音響学会秋季講演発表会論文集 (2005)。

## 過渡応答解析による単極性パルス超音波の伝搬の検討

A study on propagation of unipolar ultrasound pulse by transient response analysis

佐藤武輝、井上浩 (秋田大)、村田健司 (日本油脂 (株))

Takeki Sato, Hiroshi Inoue (Akita Univ.), Kenji Murata (NOF Corp.)

## 1. はじめに

爆発等による衝撃波を受けたときの安全性、危険性を検討する上で、衝撃波の人体への作用、影響を明らかにする必要がある。筆者らは、その作用を、インパルス性超音波の媒質内伝搬特性から検討を進めている。本稿では、音響衝撃波と類似な性質を持つ立ち上がりの鋭いインパルス性超音波が損失媒体中を伝搬する特性をシミュレーションと実験で比較検討した。

## 2. シミュレーション解析と実験

## 2.1 過渡応答解析

単極性パルス超音波の伝搬特性として放射軸上の距離特性に着目した。1次元で周波数特性の検討が行い易く、短時間でシミュレーションができる、高速フーリエ変換と伝達関数を用いた過渡応答解析を行う。送波、受波器に関する伝達関数に、伝搬媒質の伝達関数を乗算し、測定系全体の伝達関数を求める [1]。単極性パルスを連続波成分の和と考え、任意の距離における各周波数の連続波の音圧を計算し、その和を求めて、単極性パルスの音圧を計算する。

送波、受波面が同じ大きさであるとして、音源の半径  $a$  の送波面から音波を送波し、距離  $x$  において受波面で得られる平均音圧  $\langle P \rangle$  は、Bass の近似式 ( $x > a$  の条件において) より式 (1) で表される [2]。

$$\begin{aligned} \langle P \rangle = & \rho c V_0 \exp(-jkx) \left[ 1 - \left( 1 - \frac{\xi^2}{2k^2 a^2} \right) \{ J_0(\xi) \right. \\ & \left. + j J_1(\xi) \} \exp(-j\xi) - \frac{\xi}{k^2 a^2} j J_1(\xi) \exp(-j\xi) \right] \quad (1) \\ \xi = & \frac{k}{2} (\sqrt{x^2 + 4a^2} - x) \end{aligned}$$

ここで、 $j = \sqrt{-1}$ 、波数  $k = 2\pi f/v$ 、 $v$  は音速である。また、初期音圧で正規化して連続波の正規化音圧が得られる。これは、音波の広がりによる損失を示すから、回折損失  $D(x, f)$  として定義する [3]。

$$D(x, f) = \frac{\langle P \rangle}{\rho c V_0} \quad (2)$$

次に、媒質の吸収係数を  $\alpha$  として平面波の音圧に減衰項を考慮した伝搬媒質の伝達関数は式 (3) となる。

$$H(f) = D(x, f) \exp(-\alpha x) \quad (3)$$

送波、受波器の伝達関数を  $H_t(f)$ 、 $H_r(f)$ 、入力波形のフーリエ変換を  $F(f)$  とすると、伝搬後の波形は以下の

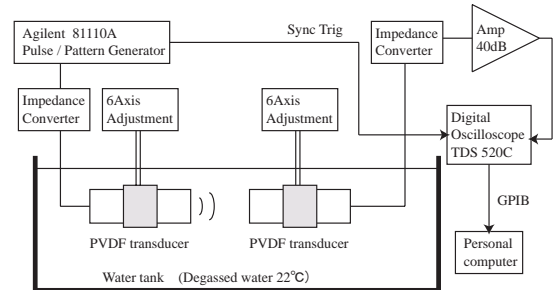


Fig. 1 Experimental system

ように表される [1]。

$$G(f) = F(f)H_t(f)H(f)H_r(f) \quad (4)$$

## 2.2 実験方法

実験系を Fig. 1 に示す。パルスジェネレータを用いてステップ電圧で PVDF (Polyvinylidene fluoride) トランスデューサを駆動し送波器から単極性パルス超音波を送波し、脱気水を伝搬したパルスを受波器で受波する [1, 4]。受波信号を等価時間サンプリングレート 4 GS/s でサンプリングし GPIB インターフェースより PC にデータを取り込んだ後、伝搬特性を測定する。なお、近距離で誘導ノイズが影響しない伝搬距離 (10 mm ~ 20 mm) を測定範囲とした。また、伝搬媒質には、脱気水と吸収が大きいグリセリンを用いた。

## 3. 結果と検討

前節で定義した周波数応答を逆フーリエ変換し過渡応答波形を求める。入力波形は PVDF トランスデューサを駆動する電圧波形 (等価サンプリングレート 4 GS/s) を用いた。音源の直径は  $2a = 1.95$  [mm] とし、伝搬媒質の定数は Table. I に示すとおりとした。

Fig. 2、3 に伝搬媒質を脱気水とした場合の、10、20 mm におけるシミュレーションと測定した波形を示す。距離による伝搬パルスの波形の形状変化がそれぞれ良く一致している。また、Fig. 4 に各波形の周波数スペクトルを示す。シミュレーションと実験の両方とも、低周波と高周波で距離に対する減少比が大きい。これは、低周波で回折による音波の広がりが、高周波で吸収によ

Table. I Analysis condition of propagation medium [5][6]

Propagation medium	water	glycerine
Sound velocity [m/s]	1500	1986
Absorption constant [ $10^{-15}$ s <sup>2</sup> /m]	25.3	2600

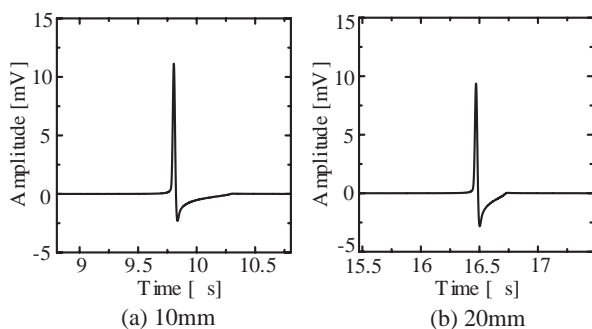


Fig. 2 Calculated wave (degassed water)

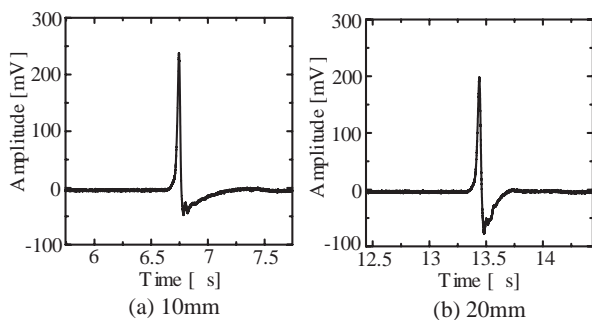


Fig. 3 Experimental wave (degassed water)

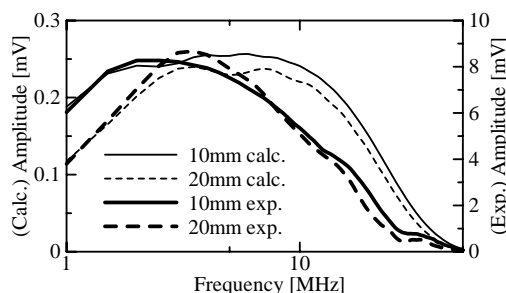


Fig. 4 Frequency spectrum (degassed water)

る減衰が原因である。波形が単極性から双極性に変化するの、音波の広がりにより低周波成分が減少し、直流成分が消滅するためであると考えられる。

脱気水とグリセリンにおける、シミュレーションと実験の伝搬特性を Fig. 5 に示す。縦軸は伝搬距離 10 mm における値でそれぞれ正規化を行った。Fig. 5(a) は伝搬パルスの波高値の距離特性であり、シミュレーションと実験は良く一致している。回折と吸収により減衰しているが、特にグリセリンの吸収が脱気水よりも大きいので振幅の減衰も大きい。Fig. 5(b)、(c) は、最大値の 10~90% の立ち上がり時間とパルス半値幅の距離特性である。媒質の吸収により、高周波成分が減少し立ち上がり立ち下がりが緩やかになり、双方とも増加傾向になっている。特に、グリセリンにおいては振幅と同様に、吸収が大きいことから脱気水よりも変化が大きい。シミュレーションと実験値が異なる原因としては、高周波では指向性が鋭く、放射軸上からの受波器のズレが影響したことが挙げられる。立ち上がり立ち下がりにより、パルス幅は 2 倍の測定誤差の影響が現れていると考えられる。

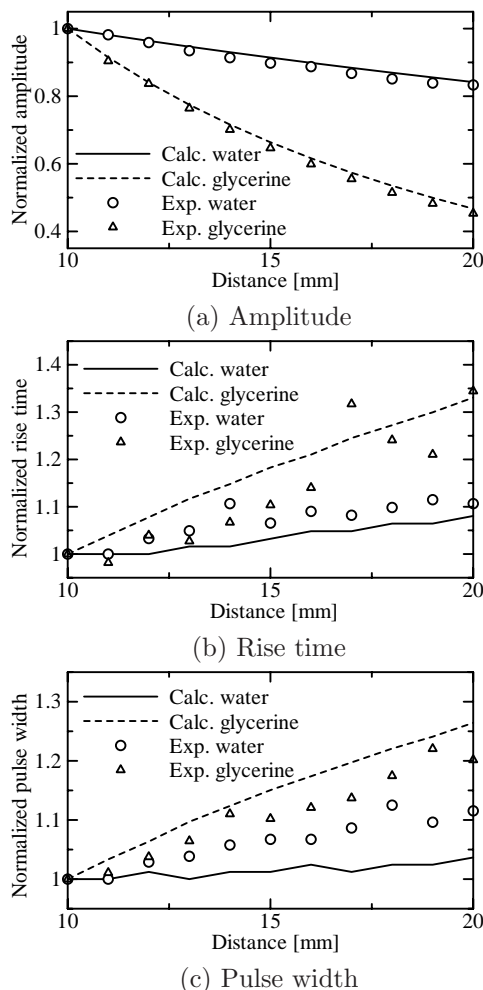


Fig. 5 Propagation characteristic

#### 4. おわりに

単極性パルス超音波は伝搬するに従い単極性から双極性へ変化、即ち負側の伸張波が成長することが明らかになった。衝撃波の人体への安全を考慮するためには負側の伸張波が極力小さいことが望ましいとされている [5]。吸収の大きい媒質においては振幅の減衰が大きく、高周波成分の減衰により立ち上がりがより緩やかになった。これより、衝撃波の単位時間における圧縮、引張作用は弱まると考えられる。

今後は、3次元の空間の伝搬、爆発による衝撃波程の振幅を有し非線形現象が顕著な場合の伝搬についても検討する必要がある。

#### 引用文献

- [1] H. Monma *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys, 39 Part 1 (5B), 3139-3143, 2000.
- [2] 根岸, 高木, “超音波技術,” 東京大学出版会, 1989.
- [3] A.S.Khimunin, Acustica, 27, 173-181, 1972.
- [4] Y. Yoshida *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys, 38 Part 1 (5B), 3101-3102, 1999.
- [5] 超音波便覧編集委員会, “超音波便覧,” 丸善, 1999.
- [6] 国立天文台, “理科年表,” 丸善, 2002.

# ウェーブ・デジタルフィルタの手法を用いた 弾性波動解析の定式化 Formulation for Analysis of Elastic Waves Using Technique of Wave Digital Filters

宇都宮 俊男、小田 亙 (防衛大学校 通信工学科)  
Toshio Utsunomiya and Wataru Oda (National Defense Academy, Dept. of Communications  
Engineering)

## 1. まえがき

物理系を叙述する偏微分方程式の中には、所謂ウェーブ・デジタルフィルタ(WDF)の手法を用いて、方程式を直接積分することにより、数値的に解くことができるものがある。この方法は、デジタル信号処理の手法を用いるので、空間変数および各物理変数が、各標本化時間毎に計算されることにより、過渡現象などの時間とともに変化する現象の計算に向いている。また、電力波を考えることにより、Eulerの方程式などの非線型の方程式にも適用することができる[1][2]。

本論文では、この方法を弾性波動に適用する。弾性波動の方程式は厳密には非線型であるが、ここでは線形近似の従来の方程式に本方法を適用することにした。

## 2. 基礎方程式

等方弾性体の運動方程式は、以下のようである。

$$r \frac{\partial n_1}{\partial t} = (I + 2m) \frac{\partial S_1}{\partial c_1} + I \frac{\partial S_2}{\partial c_1} + I \frac{\partial S_3}{\partial c_1} + m \frac{\partial S_6}{\partial c_2} + m \frac{\partial S_5}{\partial c_3} + r f_1 \quad (1)$$

$$r \frac{\partial n_2}{\partial t} = m \frac{\partial S_6}{\partial c_1} + I \frac{\partial S_1}{\partial c_2} + (I + 2m) \frac{\partial S_2}{\partial c_2} + I \frac{\partial S_3}{\partial c_2} + m \frac{\partial S_4}{\partial c_3} + r f_2 \quad (2)$$

$$r \frac{\partial n_3}{\partial t} = m \frac{\partial S_5}{\partial c_1} + m \frac{\partial S_4}{\partial c_2} + I \frac{\partial S_1}{\partial c_3} + I \frac{\partial S_2}{\partial c_3} + (I + 2m) \frac{\partial S_3}{\partial c_3} + r f_3 \quad (3)$$

ここで、 $\rho$  は密度、 $\mu$  はラメの定数、 $f_i$  は外力を表している[3]。変位  $u_i$  と歪テンソル  $e_{ij}$  の間には、

$$e_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial c_j} + \frac{\partial u_j}{\partial c_i} \right) \quad (4)$$

この(4)の関係があり、応力テンソルと歪テンソルには、対称性からそれぞれ、 $s_i$  ( $i = 1 \sim 6$ ) の6成分で表され、 $s_i$  と  $S_i$  の間にはフックの法則が成立つ[3]。

## 3. 方程式の変換

先ず、3次元空間に時間軸を加えた4次元空間を考え、全ての物理変数は4次元ベクトル  $t_i$  ( $i = 1$

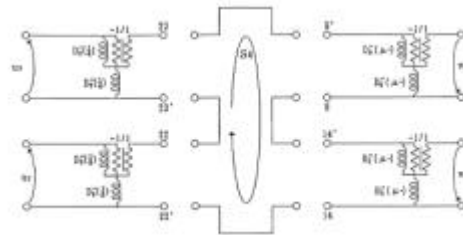


Fig. 1 Kirchhoff circuit for loop of  $v_1$ .

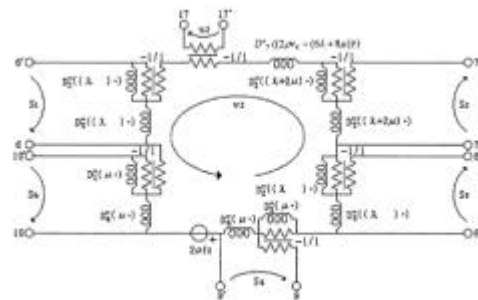


Fig. 2 Kirchhoff circuit for loop of  $v_2$ .

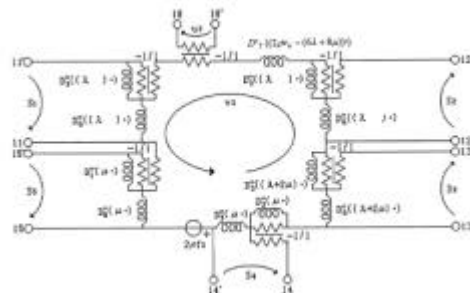


Fig. 3 Kirchhoff circuit for loop of  $v_3$ .

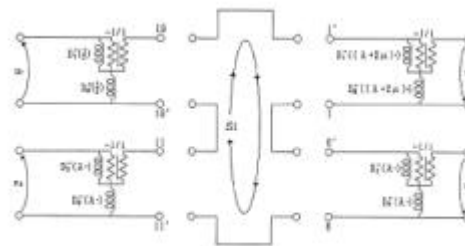


Fig. 4 Kirchhoff circuit for loop of  $S_1$ .

～ 4 )の函数であるとする。  $t_i$ に関する微分演算子を  $D_i$ とし、座標変換を行って  $D''_i$ を得る。さらに補助演算子  $D''_i (i = 1 \sim 7)$ を導入すると[4]、(1)～(3)式は、

$$D''_7 \left( 2rn_{41} \right) + (I + 2m) \left( D''_4 - D''_1 \right) \delta_1 + I \left( D''_4 - D''_1 \right) \delta_2 + I \left( D''_4 - D''_1 \right) \delta_3 + m \left( D''_6 - D''_3 \right) \delta_5 + m \left( D''_5 - D''_2 \right) \delta_6 = 2rf_1 \quad (5)$$

$$D''_7 \left( 2rn_{42} \right) + I \left( D''_5 - D''_2 \right) \delta_1 + (I + 2m) \left( D''_5 - D''_2 \right) \delta_2 + I \left( D''_5 - D''_2 \right) \delta_3 + m \left( D''_6 - D''_3 \right) \delta_4 + m \left( D''_4 - D''_1 \right) \delta_6 = 2rf_2 \quad (6)$$

$$D''_7 \left( 2rn_{43} \right) + I \left( D''_6 - D''_3 \right) \delta_1 + (I + 2m) \left( D''_6 - D''_3 \right) \delta_3 + m \left( D''_6 - D''_3 \right) \delta_2 + m \left( D''_5 - D''_2 \right) \delta_4 + m \left( D''_4 - D''_1 \right) \delta_5 = 2rf_3 \quad (7)$$

となる。

#### 4. 等価キルヒホッフ回路

微分オペレータをインダクタンス  $D$ で置き換え、方程式中の物理量を電流とみなすと、キルヒホッフの第二法則が適用でき、電気回路に書き下すことができる。これを等価キルヒホッフ回路と呼ぶ( Fig. 1 ~ Fig. 6 )。

#### 5. ウェイブフロー・グラフ

得られたキルヒホッフ回路は、古典回路網であるので、よく知られた WDF の手順に従って、デジタル領域に変換される[5]。

WDF の回路要素は直列アダプタによって結合され、WDF 構造へと導かれる。これらは、シグナルフロー・ダイアグラム的一种であるウェイブフロー・グラフによって表される( Fig. 7)。それはアルゴリズムそのものであるので、直ちに数値計算のアルゴリズムへと変換が可能である。

#### 6. まとめ

ウェイブ・デジタルフィルタの手法を弾性波動の方程式に適用することにより、方程式を数値アルゴリズムを表すウェイブフロー・グラフが得られるよう離散領域における定式化を行った。

#### < 参考文献 >

- [1]A.Fettweis, AEU, vol46, pp.209-218, 1992.
- [2]T.Utsunomiya, Progress of Theoretical Physics, Supplement No.138, pp.741-743, 2000.
- [3]柴山乾夫, 「弾性表面波工学」電子通信学会(昭58)。
- [4]A.Fettweis and G.Nitsche, Multidimensional Systems and Signal Processing, vol.2, pp.127-159, 1991.
- [5]A.Fettweis, Proc.IEEE, vol.74, pp.270-327,1986

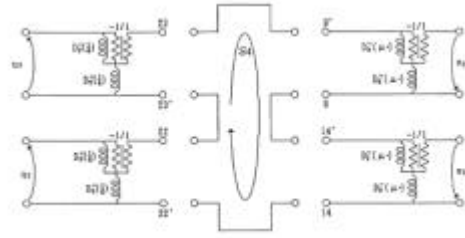


Fig. 5 Kirchhoff circuit for loop of  $S_4$ .

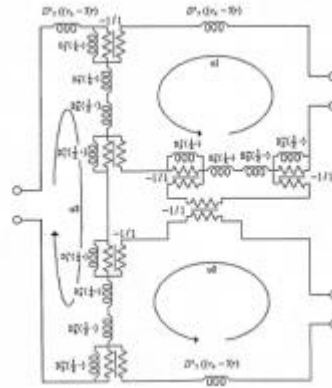


Fig. 6 Kirchhoff circuit for loops of  $u_1, u_2$  and  $u_3$ .

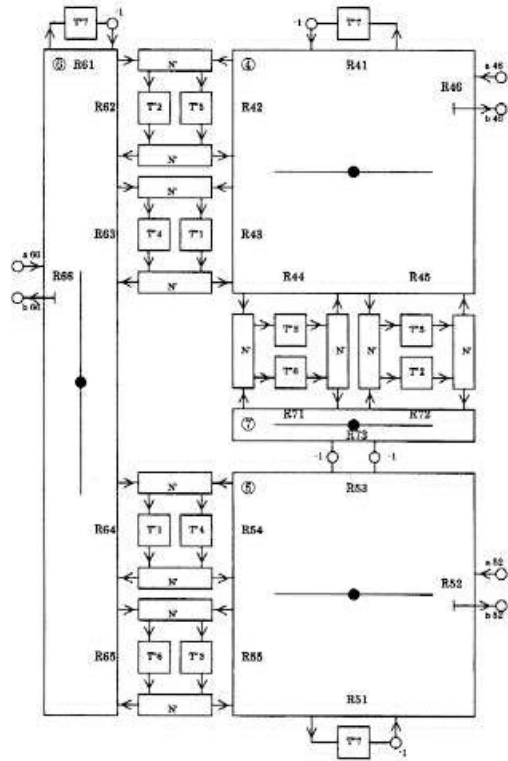


Fig. 7 Wave-flow graph for loops of  $u_1, u_2$  and  $u_3$ .

# インパルス超音波を用いた小型超音波音速センサ

## Miniature Ultrasonic Velocity Sensor with Impulsive Ultrasound

浅田隆昭、森田成一、古谷未央（村田製作所）  
Takaaki Asada, Seiichi Morita and Mio Furuya (Murata Manufacturing)

### 1. はじめに

等しい音響特性インピーダンスを持つ圧電活性部とバックリング部を一体構成した圧電トランスデューサを、圧電活性部を音波が伝播するに要する時間の2倍程度のパルス幅を持つ電圧パルスで励振することにより、正弦波一波状のインパルス超音波を発生することが可能である<sup>1)</sup>。圧電セラミック積層技術を用いてトランスデューサを構成し、これを超音波パルスの送受波に用いることにより、数ミリメートル程度と短い伝播距離でも精度の良い音速センサを実現できる<sup>2)</sup>。しかし、トランスデューサであるセラミックが直接被測定溶液に触れるためにその劣化や電極の腐食等の懸念があり、実用化のためには長期信頼性の確保が課題である。本報告では、左記の問題を解決するため、樹脂矩形管の外側にトランスデューサを配し、管壁を通して超音波を管内部の液体媒質に伝播させる構造を提案する。さらに、駆動制御回路を一体化したセンサモジュールについて紹介する。

### 2. 樹脂矩形管構造センサモジュール

Fig.1 は樹脂製矩形管を用いた音響系のレイアウトを示す。樹脂による管壁の厚みは、インパルス音波の直接波と、境界面での反射波を時間的に分離できるように設定してある。圧電セラミックと樹脂とは、エポキシ系接着剤で接着しており、接着材の厚みは音波の波長に比べて十分薄くした。管壁と圧電素子または非測定溶液との間では音響特性インピーダンスの違いによる反射が生じる。Fig.2 はこの系での送受波器間音圧透過係数を管壁の音響特性インピーダンスの関数としてプロットしたものである。なお、圧電素子部のインピーダンスは30.8MRayl、非測定溶液は水(1.48MRayl)とし

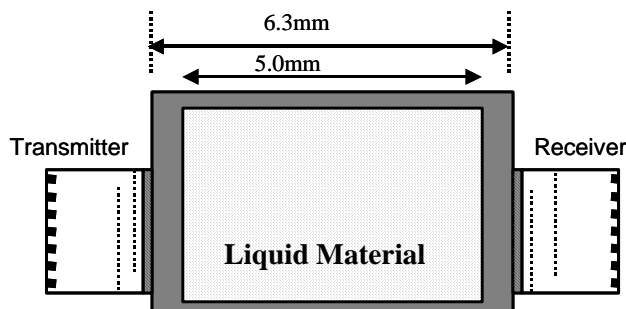


Fig. 1 Acoustic layout for the velocity sensor.

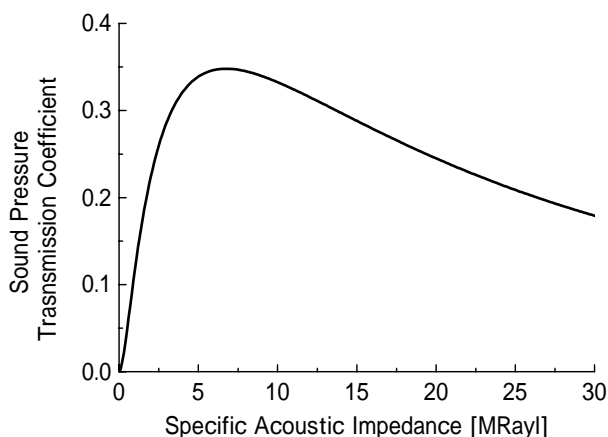


Fig. 2 Sound pressure transmission coefficient as a function of specific acoustic impedance of the tube wall material.

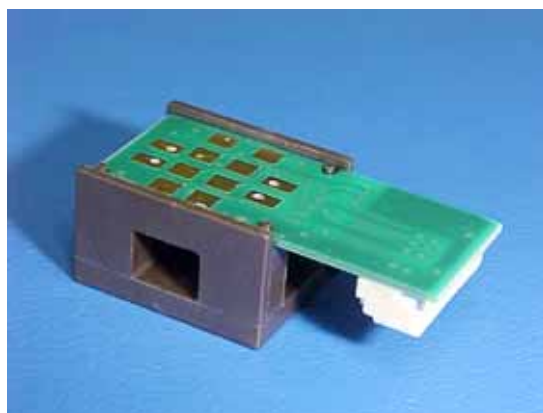


Fig. 3 Photograph of the presented ultrasonic velocity sensor module.

て計算を行った。音響特性インピーダンスが6.8MRayl 付近で透過係数が最大となっており、管壁が無い場合に比べて約2倍になる。今回用いた樹脂のインピーダンスは5.43MRaylであり、ほぼピークに近い音圧透過係数になっている。Fig.3に本センサの外観写真を示す。樹脂製の矩形管に圧電素子を接着するほか、圧電素子の駆動信号を発生し、かつ超音波の遅延時間に比例する直流電圧を出力する駆動制御用集積回路が搭載された基板が一体化されている。パルス幅83nsecの駆動信号で超音波インパルスを発生させる。液体媒質(水)を透過し、受波側トランスデューサで観測された音圧波形をFig.4に示す。正負に振れる正弦波一波状のインパルス波形が確認できる。集積回路ではこの信号を増幅し、正の半サイクルから負の半サイクルに移る部分のゼロクロスを検知し、これをもとに遅延時間を検出する。

### 3. 各種液体媒質の測定例

本センサを用いて各種溶液の音速を測定した。測定値は25の水の音速で校正しており、樹脂矩形管の熱膨張による変化分は補正してある。Fig.5はメタノール水溶液、Fig.6はグルコース(ブドウ糖)水溶液、Fig.7は食塩水溶液の音速を、各温度に対してプロットしたものである。音速の相対精度は $10^{-4}$ あるため、メタノールやグルコースの場合は1%程度以下、食塩の場合には0.3%程度の濃度差でも十分弁別可能である様子がわかる。

### 4. まとめ

超音波インパルストランスデューサを用い、長期信頼性の確保が可能なセンサモジュールについて、その構成および各種溶液の音速測定例を示した。

#### 謝辞

本センサモジュールの開発・実用化にご協力頂いた、(株)村田製作所の皆様、関係諸氏に深く感謝いたします。

#### 参考文献

1. 浅田ほか：日本音響学会講演論文集，(2005秋発行予定).
2. T. Asada and S. Morita：Proc. ICA2004 (2004) III-2247.
3. 浅田ほか：電気関係学会関西支部連合大会 S11-3(2004).

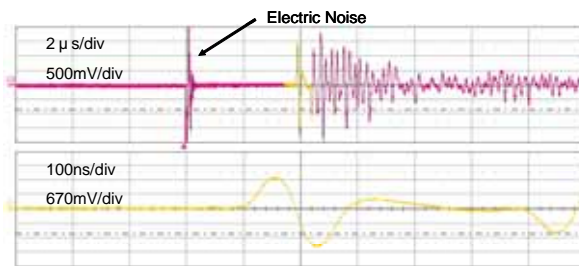


Fig. 4 Observed waveform of the received acoustic signal amplified 20 times by a pre-amplifier. (lower trace; enlarged)

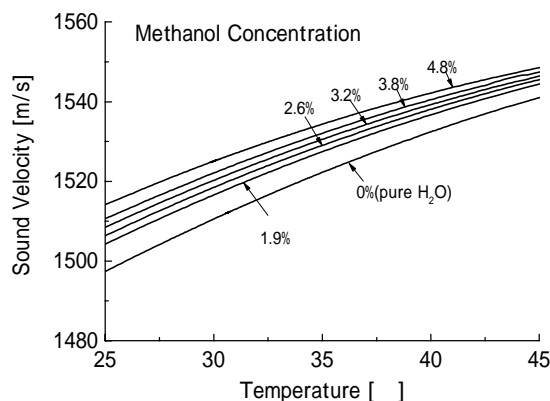


Fig. 5 Observed sound velocity for methanol-water solution.

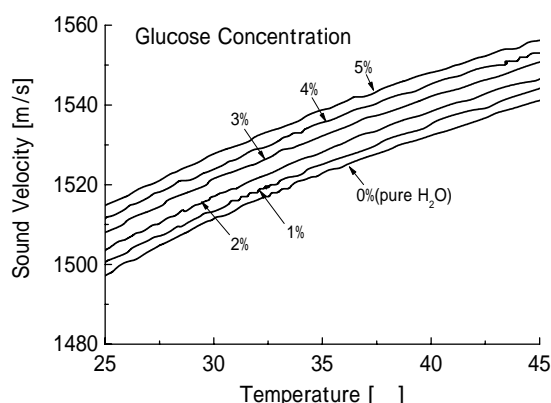


Fig. 6 Observed sound velocity for glucose-water solution

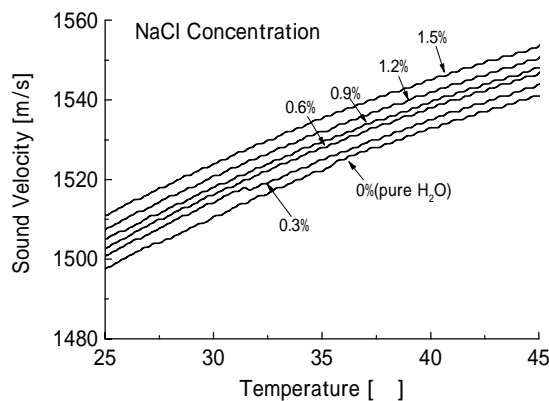


Fig. 6 Observed sound velocity for NaCl solution.

# ソニック結晶における単一欠陥配列 の音響導波特性の数値解析

Numerical analysis of an acoustic wave-guide  
composed of an array of single defects in a sonic crystal

○ 宮下 豊勝 (龍谷大・理工)

Toyokatsu Miyashita (Dept. Electronics and Informatics, Ryukoku Uni.)

## 1. はじめに

我々は、ソニック結晶を構成する散乱体配列を部分的に線状に取り除いて形成した音波の導波路について数値計算シミュレーションならびに実験的考察を行ってきた [1]。特に、アクリル樹脂円柱の空气中2次元配列によるソニック結晶、ならびにアルミニウム円柱の空气中2次元配列によるスラブ型ソニック結晶と音響導波路について考察している。期待した曲がり導波路の伝搬と、平行配置結合導波路におけるモード結合を得ている。しかし、一般に導波路の両端における反射が大きい。また、導波路側面の周期構造による Bragg 反射に起因して、バンドギャップ全域にわたるような伝搬特性が得られにくいという実用上不都合な問題に遭遇している。

この報告においては、人工結晶のフル・バンドギャップ中における単一欠陥 (散乱体一個の欠如) の共振モードを基本とする導波ならびにモード結合に新しく注目する。これはフォトニック結晶において知られている現象であり [2]、音響分野においては、水中鋼鉄円柱配列からなるフォノン結晶において考察されている [3]。我々は、ソニック結晶導波路の上記の問題を解決してくれる有力な現象あると考え、単一欠陥配列により構成した種々のソニック結晶音響伝搬路の音波伝搬特性を弾性波 FDTD 法を用いて考察し、期待する特性が得られることが確かめられたので報告する。

## 2. 単一欠陥配列の透過率周波数特性

周期配列している散乱体を一個取り去ってできる単一欠陥 (single defect) は、フル・バンドギャップの周波数において共振器を形成し、その良く閉じ込められた共振モードの音場は、その周りにエバネッセント場を伴って分布する。それに対して、連続して線状に散乱体を取り除いた線欠陥 (line defect) は導波路を作る [1]。その中間的な散乱体の除去の仕方により、単一欠陥を周期的に点々と並べると、それらのエバネッセント波の結合により、少し広がった共振周波数で伝搬モードが発生することが期待される。

そこで、Fig. 1 に示すようなアクリル樹脂円柱の  $11 \times 11$  配列の中央に単一欠陥を散乱体1個おきに並べた2次元構造を考察した。数値解析は弾性波 FDTD 法を用い、空間の標本化間隔  $\Delta x = \Delta y$

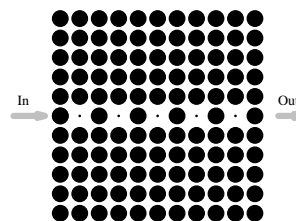


Fig. 1: A wave-guide made of an array of single-defects (1).

で表した格子間隔は  $a = 50\Delta x$ 、散乱体半径は  $r = 20\Delta x$  で、従って充填率は 0.503 である。

計算で得られた透過率周波数特性を Fig. 2 に、欠陥の無い完全な  $11 \times 11$  配列のソニック結晶の透過率周波数特性と共に示す。規格化周波数で 0.54 ~ 0.59 にわたり、導波路の両端におけるインピーダンス不整合も無い、かつ伝搬損失の無い透過を示している。この単一欠陥配列の通過帯は、母体のソニック結晶のフル・バンドギャップ内に存在しているから、良く閉じ込められて伝搬損失の無い伝搬を示すことは期待したことである。

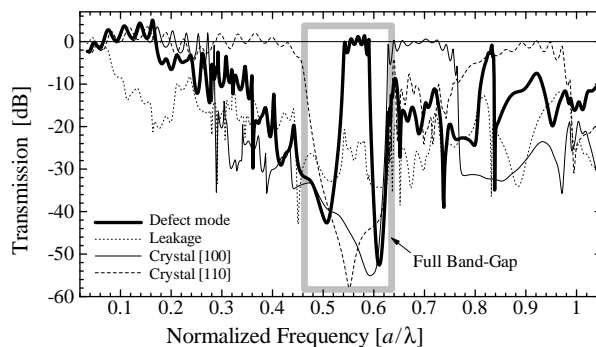


Fig. 2: Transmission of the wave-guide made of an array of single-defects (1).

周りを散乱体の中に囲まれて始めて単一欠陥が存在するのであるから、上記の配列を考えるのが自然である。導波路の端におけるインピーダンス整合を確かめるため、散乱体の有る無しを逆にした Fig. 3 に示す単一欠陥配列を比較として解析した。得られた透過率周波数特性を Fig. 4 に示す。導波路の両端における窪みは単一欠陥にもならず、インピーダンス整合にも逆効果であり、約

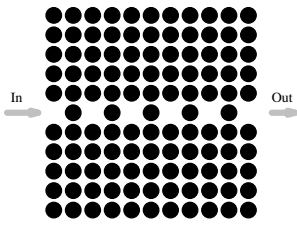


Fig. 3: A wave-guide made of an array of single-defects (2).

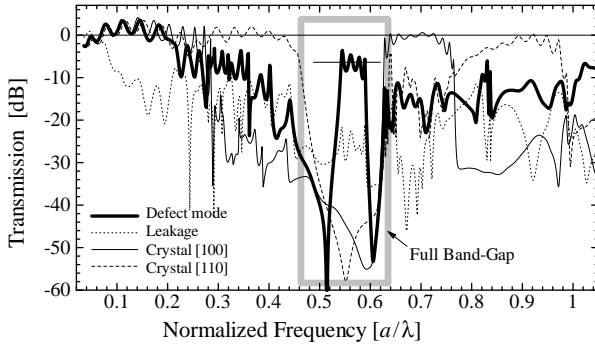


Fig. 4: Transmission of the wave-guide made of an array of single-defects (2).

6 dB の損失となることがわかる。

### 3. 直角曲がり導波路

従来の線欠陥導波路においては、その周りを囲む人工結晶のフル・バンドギャップ特性により音場が閉じ込められ、急峻な直角曲がり導波路が実現できていたのに対して、単一欠陥配列においては、隣り合う単一欠陥の共振モードのエバネッセント場の重なりにより音場が結合するから、単一欠陥を中心とした急峻な導波路曲がりは全く自然に実現できる。なぜならば、エバネッセント場は単一欠陥の周りに等方的に存在するからである。サイズが  $15 \times 11$  のアクリル樹脂円柱配列から成るソニック結晶中に、1つおきの散乱体を取り除いて直角曲がり導波路を形成し、その音波伝搬姿態を弾性波 FDTD 法で計算した例を **Fig. 5** に示す。

格子間隔の約 2 倍の幅の音波を左から入射し、直角に曲がって下方に伝搬し、結晶外へ放射する

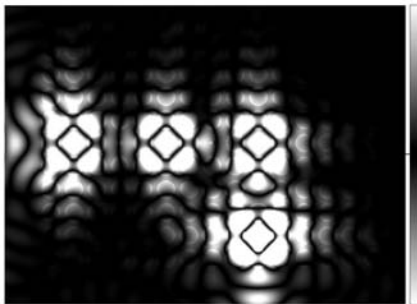


Fig. 5: Acoustic waves (sound pressure) travelling along a wave-guide bend.

伝搬を考察している。図の右にグレイ・スケールで示すように、音圧の空間分布を絶対値の大きさに応じて明るい灰色で表している。隣り合う白色の部分には位相が  $\pi$ [rad.] だけ異なっている。直線部においても曲がり部においても、音波が導波路に沿って良く閉じ込められて全く自然に伝搬していることがわかる。また、導波路入り口ならびに出口における反射は非常に小さく、良くインピーダンス整合していることも示されている。

### 4. 結合導波路

平行して配置した 2 列の単一欠陥配列導波路間のモード結合も、単一欠陥の間のモード結合の組み合わせと考えると、結合導波路の間隔に依存して大きな結合が起こる仕組みが予想される。**Fig. 6** に数値計算結果を示す。左から入射した音

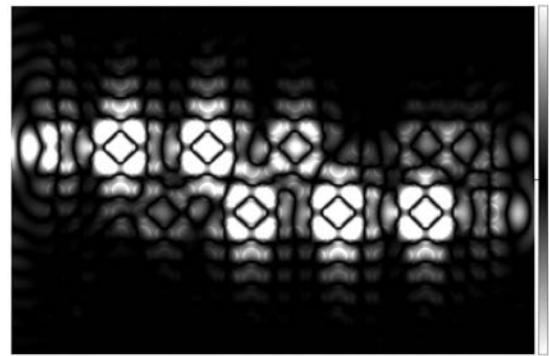


Fig. 6: Coupled unidirectionally travelling acoustic waves (sound pressure) in a parallel adjacent wave-guide.

波が上の直線導波路を右方向に伝搬する間に、それと平行して配置した下側の導波路に同方向に進む進行波を励振し、約 50% 程度の大きい結合率を呈している。

### 5. おわりに

さらに、単一欠陥配列導波路を両端に持つ線欠陥導波路の伝搬特性、ならびに並行する単一欠陥配列導波路と線欠陥導波路の一方向結合等についても、期待する結果を得ている。まずは、単一欠陥が持つ閉じ込め共振モードのエバネッセント場を介した結合という捉え方から考えられる導波路の期待される特性を、弾性波 FDTD 法により計算される音圧分布から確かめた。定量的な把握と、実験的実現を引き続き行う計画である。

### 文献

- [1] T. Miyashita, Meas. Sci. Technol. vol.16, No.5, pp.R47-R63, May 2005.
- [2] S. G. Johnson and J. D. Joannopoulos, *Photonic Crystals, The Road from Theory to Practice*, Kluwer Academic Publishers, Boston 2002.
- [3] A. Khelif, P.A. Deymier, B. Djafari-Rouhani, J.O. Vasseur, and L. Dobrzynski, J. Appl. Phys., vol.94, pp.1308-1311, 2003.

E-Mail: miya@rins.ryukoku.ac.jp

## 新光学用圧電結晶 $\text{LiKB}_4\text{O}_7$ 単結晶の育成と 基礎的光学評価

### Growth and characterization of a new optical piezoelectric single crystal for wavelength conversion: $\text{LiKB}_4\text{O}_7$

福田真行、池田 攻、小松隆一(山口大 工)、藤田 茂(九州大 総合理工)

Masayuki Fukuda, Ko Ikeda, Ryuichi Komatsu (Yamaguchi Univ.) and Shigeru Fujino (Kyushu Univ.)

#### 1. はじめに

紫外レーザーの応用の広がりとともに全固体紫外レーザーが注目されている。このレーザーは Nd:YAG レーザー等の安定な赤外固体レーザーと非線形光学結晶を組み合わせ、波長変換技術により紫外光を発生させるものである。全固体紫外レーザーの開発では、 $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ <sup>1)</sup>、 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ <sup>2)</sup>、 $\text{BaB}_2\text{O}_4$ <sup>3)</sup> など既存の紫外非線形光学結晶では、高レーザー耐力性、耐湿性、非線形光学定数などの特性が十分ではなく、産業用途の紫外固体レーザー用非線形光学結晶としては問題が多い。その為、新しい非線形光学結晶の開発が重要なキーポイントとなる。従って優れた特性を示す非線形(圧電)光学結晶の探索が重要な研究ターゲットとなっている。<sup>(4-5)</sup> また紫外レーザー等の紫外領域光の応用展開に伴って、紫外領域でのレンズ、プリズム等の受動素子材料も要望されるようになってきている。我々は、これらの研究動向に注目し、紫外領域まで透過できる圧電ほう酸塩結晶の探索、育成を行い、今までに  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ <sup>2)</sup> の紫外波長変換特性、 $\text{LiRbB}_4\text{O}_7$ <sup>6)</sup>、 $\text{LiKB}_4\text{O}_7$ <sup>7)</sup> 等の新圧電物質、波長変換による真空紫外 125nm 光を発生できる  $\text{SrB}_4\text{O}_7$ <sup>8)</sup> 等を報告した。

本研究の  $\text{LiKB}_4\text{O}_7$  は 4 年前に報告された非線形光学結晶だが、単結晶育成の報告はない。しかし同形の  $\text{LiRbB}_4\text{O}_7$  は十分な機械的特性、化学的安定性を持ち、吸収端は 187nm であるので、 $\text{LiKB}_4\text{O}_7$  も短い吸収端、高い波長変換特性を示すと考えられる。本研究では、新しい圧電結晶である  $\text{LiKB}_4\text{O}_7$  単結晶の Cz 法による育成と基礎的光学評価を目的とした。またほう酸塩結晶中に He-Ne 等のレーザー光を照射すると、レーザー光が散乱するミクロンサイズの散乱体が存在することが報告されている。この散乱体は原料中に含まれている水分が原因のポイドであり、紫外領域での透過率を低下させ、光損傷しきい値、変換効率を低下させる。

e-mail : [r-komats@yamaguchi-u.ac.jp](mailto:r-komats@yamaguchi-u.ac.jp)

本研究ではこの散乱体フリーの単結晶育成についても検討した。

#### 2. 実験方法

原料は 3N の  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 、 $\text{K}_2\text{CO}_3$ 、 $\text{B}_2\text{O}_3$  を用いた。これらの原料をモル比 1:1:4 で混合、熔融した。Fig.1 に育成装置を示す。結晶の育成条件は結晶回転速度を 10 25r.p.m., 育成速度を 0.10 0.30mm/hr.で行った。また散乱体フリー結晶を育成するために、無水化学量論組成原料の作製及び乾燥ガスを流しながら育成を行った。育成された結晶は粉末 X 線回折(XRD)、偏光顕微鏡観察、透過率測定を行った。さらに散乱体を評価するために、育成結晶から直方体を作製し、この試料にレーザー光(630nm)を照射し、上部から顕微鏡で散乱光の検

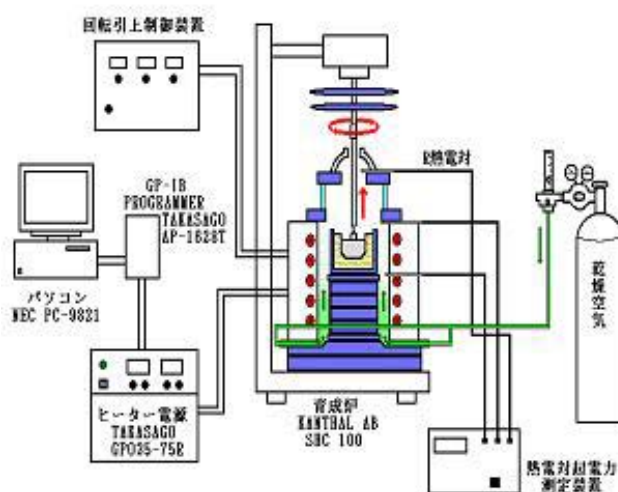


Fig. 1 Schematic diagram of Cz furnace

#### 3. 結果と考察

育成速度を 0.3mm/hr. で  $\text{LiKB}_4\text{O}_7$  単結晶を育成した。育成結晶は XRD 測定より、 $\text{LiKB}_4\text{O}_7$  であることが分かった。しかし育成結晶は全体的に白濁していた。この結晶の薄片を作製し光学顕微鏡で

観察した結果、白濁はセル成長によって結晶内に取り込まれた気泡であった。よってセル成長の抑止条件を基に温度勾配を大きくし、育成速度を遅くして育成を行った。育成速度を 0.1mm/h、乾燥空気 0.25l/min. で育成した結晶を Fig.2 に示す。



Fig.2 As-grown LiKB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> single crystal

育成結晶はクラックや気泡の混入はなく、高品質な LiKB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 単結晶が育成できた。この育成結晶の薄片を作製し偏光顕微鏡で観察すると、不純物の混入はなく、単相であることが分かった。このような高品質結晶の育成には、乾燥空気を流す効果が大きいと推定される。さらに厚さ約 1,2mm の薄片を作成し紫外線から赤外線領域での透過率測定を行った。Fig.3 に紫外線領域での透過率測定結果を示す。

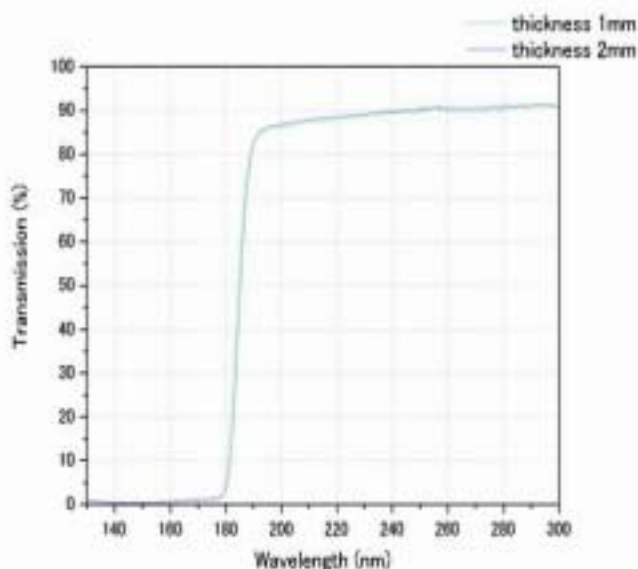


Fig.3 Transmission of LiKB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> crystal in UV region.

LiKB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 単結晶は、カットオフ波長が 180nm であることが判った。また試料の厚みを変えても透過率

が変化しなかったため、育成結晶は高品質であることが判った。可視 赤外領域での透過率測定から、この結晶は 3500nm まで透過することが判った。散乱体の検討結果を Fig.4 に示す。

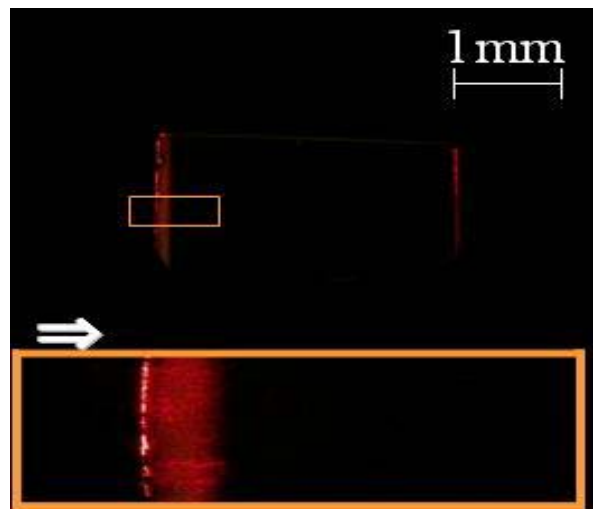


Fig.4 Microphotograph of polished sample by means of scatters-detect laser apparatus

Fig.4 から散乱体は観察されなかった。ほう酸塩結晶では多くの場合散乱体が観察されるので、散乱体フリー結晶が育成できる条件を見出したことは、他のほう酸塩結晶育成にも応用可能と推定される。

#### 4. まとめ

原料と育成条件の最適化及び乾燥空気を育成中に流すことで、散乱体フリーな高品質 LiKB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 単結晶が育成できた。今後は屈折率の測定、SHG の発生実験を行なう予定である。

#### 引用文献

1. Y.Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai: Jpn.J.Appl.Phys. **34L** (1995) 296.
2. R. Komatsu et al.: Appl. Phys. Lett. 70(26), 30 June, 3492 - 3494, 1997.
3. C.Chen, B.C. Wu, A.D. Jiang and G.M. You: Sci. Sinica **B28** (1985) 235.
4. シリーズ: 結晶成長のダイナミクス 5 巻 メルト成長のダイナミクス 宮澤信太郎編 共立出版 P123-171.
5. W. W. Duley: *UV lasers*, (Cambridge University Press, Cambridge,1996) P.19.
6. R. Komatsu, Y. Ono, T. Kajitani, F. Rotermund and V. Petrov : J. Crystal Growth. 257 (2003) 165.
7. Yasuhiro Ono et al. : J.Crystal Growth, Vol. 229 (2001) 472.
8. R. Komatsu, H. Kawano, Z. Oumar, K. Shinoda and V. Petrov: J. Crystal Growth 275(2005) 843.