

A-1

光触媒反応と超音波照射を併用した界面活性剤含有廃水の処理プロセス

鈴木康之（静大院理工）、Warsito、前澤昭禮、内田重男（静大工）

1. 緒言

環境中に放出される界面活性剤含有廃水の処理法として、光触媒反応を用いるものや、超音波を用いる方法が注目されている。

筆者らは、廃水中の界面活性剤は、光触媒反応では親水基が触媒に吸着^[1]、また超音波照射では主に疎水基がキャビティに入り^[2]、それぞれ分解されると結論付けた。しかしながら、光触媒、超音波いずれの方法も、単独プロセスではそれぞれ、界面活性を失わせるには十分であっても、無機化、即ち疎水基または親水基まで完全に分解することは難しい。また、光触媒反応では、触媒が水中に懸濁している「懸濁系光触媒」では反応後の触媒の回収が困難であり、また触媒回収が必要なガラス板などに担持した「固定化光触媒」では反応器内の触媒表面積を大きくすることが難しい等の問題が存在する。界面活性剤含有廃水の処理プロセスの実用化のためには、これらの問題を解決することが必要である。

そこで本報では、懸濁系光触媒を用いた分解反応過程に超音波照射を併用することにより、親水基も疎水基も分解させるだけでなく、その分解を促進させ、さらに超音波照射により触媒を凝集沈殿・再分散（リサイクル利用）させるプロセスの検討を行う。

2. 超音波照射による光触媒反応の促進

【実験方法】

モデル廃水として界面活性剤ポリオキシエチレンアルキルエーテル($C_{14}H_{29}O(CH_2CH_2O)_7H$ 以下

SS-70) 100 ppm 水溶液を 1000 mL、光触媒として TiO_2 粉末 (JRC-TiO4、以下 P25、日本エアロジル社) 50 mg を準備した。溶液に紫外線と超音波(200 kHz・200 W)を照射しながら、一定時間毎に溶液を採取し、溶液に残存する TOC の濃度を測定した。なお、実験装置、条件は既報^[3]と同様である。

【実験結果と考察】

攪拌速度を 100 rpm および 500 rpm としたときの TOC 濃度変化の測定結果を Fig.1 に示す。

光触媒分解単独（以下 Photo-Process）では、攪拌速度が速い場合、反応開始 6 時間後ほどから TOC の濃度の再減少が見られる。これは、触媒に吸着した中間生成物の離脱現象が速く進行するためで、攪拌により、触媒の流動性、触媒近傍の物

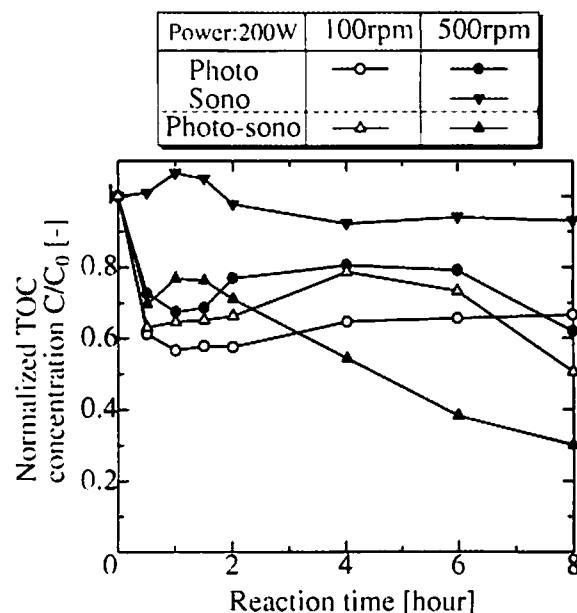


Fig.1 Comparisons of TOC concentration changes in three processes

Treating Process of Surfactant Containing Waste Water by Photo-catalytic Oxidation Combined with Ultrasonic Irradiation

Y. Suzuki: Dept. of Environ. Sci., Graduate School of Sci. and Eng., Shizuoka Univ.,
Warsito, A. Maezawa and S Uchida*: Dept. of Materials Sci. and Chem. Eng., Shizuoka Univ.

質移動が促進されるからであると推論される。

超音波照射単独(以下 Sono-Process)の場合、実験開始後8時間経っても1割程度しかTOC濃度は減少しない。この方法による界面活性剤の無機化は困難であるといえる。

超音波光触媒併用(以下 Photo-sono-process)の場合、攪拌速度100 rpmではPhoto-processの分解速度と比べ、TOC濃度減少の促進が観測された。Photo-processで、攪拌翼の回転数を増した場合と同様、超音波照射による攪拌の影響と考えられる。さらに攪拌速度500 rpmとすると、促進効果は顕著に観測された。攪拌速度を増すことによりエアレーション・バブルが細分化され、あるいはターピン翼近傍に流体力学的なキャビテーションが発生しミクロ気泡となる。これらが音響キャビテーションの核となる。さらに、キャビティ崩壊時に発生するエジェクト流によりミクロ的な攪拌現象が起き、触媒周辺の物質移動を促進し、ひいては光触媒反応を促進させると考えられる。

3. 超音波による光触媒のリサイクル

【実験方法】

触媒としてP25粒子($D_p = 3 \mu\text{m}$ 、見かけ比重0.13 g/mL)、凝集剤としてガラスビーズ(以下GB、 $D_p =$

33~44 μm の球形、重量比で触媒の4倍量)を用いた。まず、既報[4]に示した実験装置で、試料に26 kHz・130 Wの超音波を照射し、GBと触媒を凝集させた。

つぎに前節の促進実験と同様の装置を用い、この回収した触媒溶液に200 kHz・200 Wを照射し、GB粒子から触媒を再分散させ、初期濃度が100 ppmとなるようにSS-70を加え、紫外線を照射しSS-70を分解させた。一定時間ごとに溶液を採取し、界面活性剤濃度の経時変化を計測した。

【結果と考察】

Fig.2に測定した界面活性剤濃度を示す。

図中(A)および(B)は、比較のため、GBを添加せず超音波も照射しない、P25による光触媒単独分解の場合の濃度変化を示す。攪拌速度による影響は観測されなかった。再分散させた触媒による光分解の結果(図中(C)および(D))から、この状態の触媒も依然として十分な触媒活性を有していることがわかる。また、光触媒反応中に超音波(200 kHz・200 W)を照射した時の界面活性剤濃度を図中(E)に示す。超音波を併用すると分解が促進されるのは、既報[3]と同様の結果であった。

4. 結論

界面活性剤のような親水・疎水両方の性質を持った物質を完全に分解させるには、光触媒反応と超音波照射を併用したプロセスが有利であるといえる。

さらに、回収が困難な水中に懸濁した光触媒は、照射する超音波の周波数で凝集・沈殿→再分散をコントロールすることが可能で、このようにリサイクルした触媒にも光活性が同様にあることが確認できた。

5. 参考文献

- [1] A. Maezawa et al., Proc. of the 2nd Kyushu-Taipei Int'l. Congress on Chem. Eng., 347(1997)
- [2] Y. Suzuki et al., Chem. Eng. Tech., 507, 22(1999)
- [3] Y. Suzuki et al., Int'l J. of Photoenergy, 1(1999)
- [4] 鈴木ら 化工学会64年会(名古屋) L105(1999)

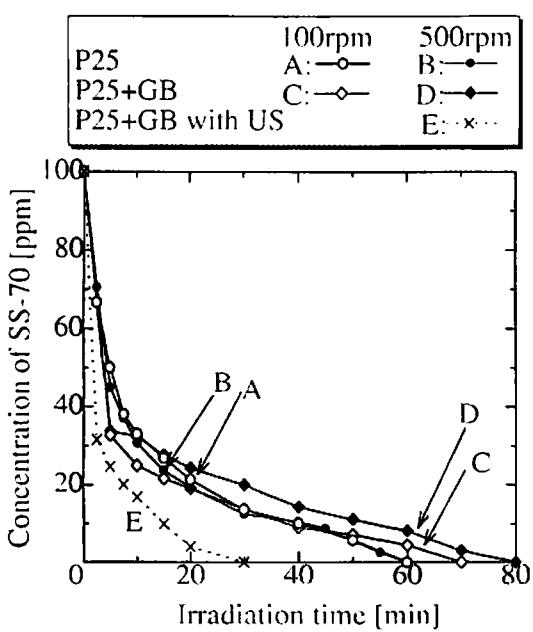


Fig.2 Changes of SS-70 concentration

A-2

超音波照射による機能性貴金属微粒子の調製と触媒活性

前田泰昭、水越克彰、坂東博、永田良雄（大府大工、大府大附研）

(はじめに) ナノメーターレベルの金属微粒子はその量子サイズ効果からバルクの金属とは異なった機能を有するため、粒子サイズのコントロール、2種以上の金属または無機材料からなる複合化が活発に研究されている。本報告では水への超音波照射によって生成するキャビティーの高温・高压特殊反応場において有機化合物から生成する還元性ラジカルの働きを調節し、従来の方法では調整することの困難であった、種々の複合微粒子を調製し、そのキャラクタリゼーションと触媒能の検討を目的として研究を行った。

(実験) 実験装置は図1に示すように、超音波照射には、多周波超音波発生器（海上社製4012型）およびチタン酸バリウム振動子(200 kHz, 65mm ϕ , 200W(6.0W/cm²))を用いた。貴金属イオン濃度は吸光光度計（島津UV-3100）で、微粒子の粒径は動的光散乱法（大塚DLS-700）で測定した。X線回析には理学RINT-1500(200kV)を用いた。

(結果) Pd(II)の水溶液を超音波照射した時の経時変化を図2に示す。約10分でパラジウムイオンの吸収はほぼ無くなり、超音波照射によって貴金属イオンの反応が起こっていることが明らかとなった。生成した微粒子の粒径は約10nmで、極めて粒径のばらつきは少なかった。微粒子の粒径は共存する界面活性剤の種類、濃度および貴金属イオン濃度を変えると5nmから110nmの範囲で調節できることが分かった。この

ようにして種々の貴金属微粒子を調製したところ表1に示すように、貴金属イオンの種類によってその還元速度は異なった。また、 γ 線照射と比べても、超音波照射によってかなり速く微粒子が生成することが分かった。

表1 超音波および γ 線照射による貴金属イオンの還元速度

Sample	Ultrasonic irradiation under Ar		γ -ray irradiation ^b under N ₂ O	
	Rate (μ M/min)		Rate (μ M/min)	
	none	SDS ^a	SDS ^a	SDS ^a
Pd(II)	~4	130		34
Au(III)	~4	83		11
Pt(II)	~0 ^c	19		10
Ag(I) ^d	~0	7		—

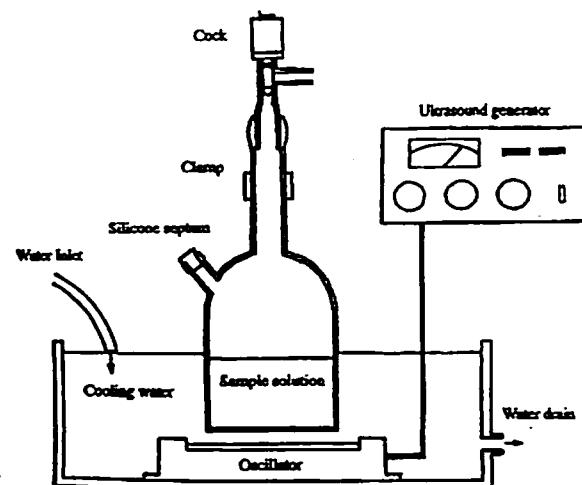


図1 微粒子調製装置

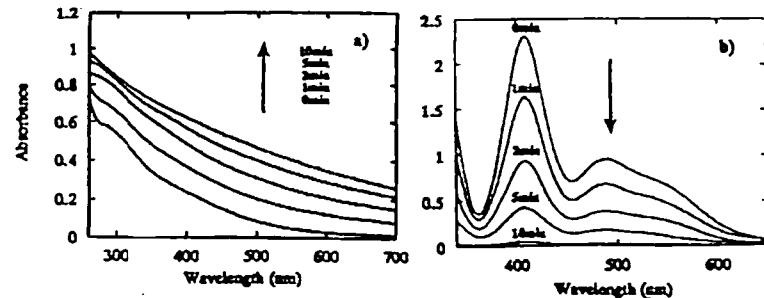


図2 SDS 共存下での Pd(II) のスペクトル

(a) NaI 未添加

(b) NaI 添加

(Au/Pd 2元合金微粒子の調製) Au(III)/Pd(II)・SDS 水溶液に対して超音波を照射したところ、溶液の色は淡黄色から Au 微粒子の生成をしめす赤紫色になり、その後 Pd 微粒子の生成を示す暗褐色を呈した。この水溶液の金属イオン濃度を調べたところ、図 3 に示すように、先に Au(III) イオンが還元された後、Pd(II) イオンが還元された。また、得られた微粒子の HRTEM 像及び EDX によるナノ領域の分析結果を図 4 に示す。解析結果より、コントラストの強い部分が Au で、その周りを Pd が取り囲むコア・シェル構造になっていることが判った。金属イオン濃度の合計が 1 mM の時、

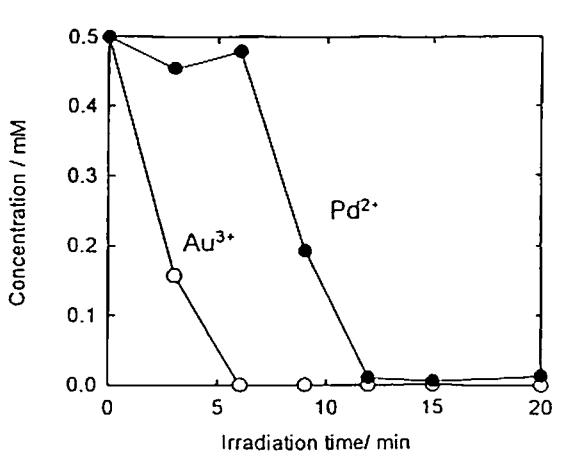


図 3 超音波照射による Au^{3+} と Pd^{2+} の経時変化

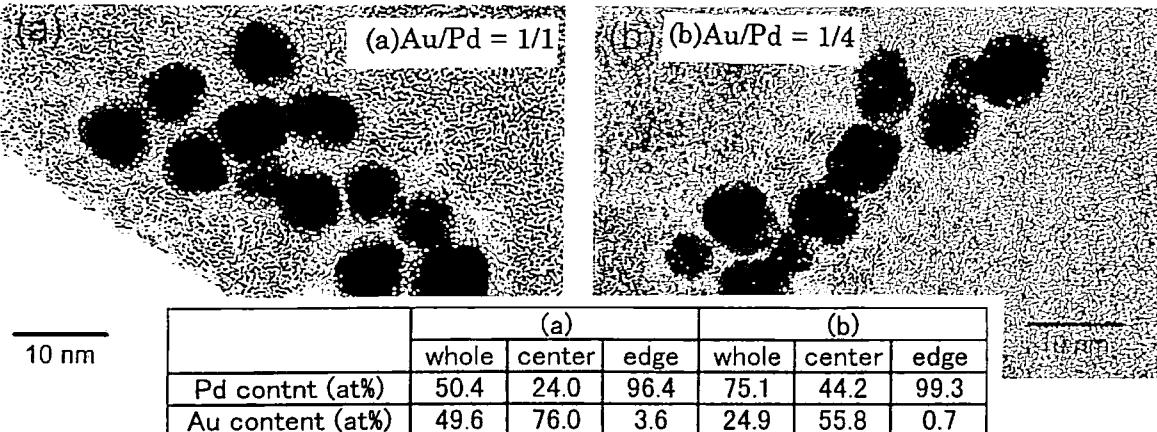


図 4 コア・シェル微粒子の HRTEM 写真と EDX の結果

粒径はほぼ 8 nm となった。このコア・シェル型微粒子の触媒能を調べた。図 5 に示すようにそれぞれの微粒子を混合した系よりもかなり還元反応触媒活性が高かった。

(Au/Pt 2元合金微粒子の調製)
NaAuCl₄、H₂PtCl₆ 及び界面活性剤、PEG-MS を含む水溶液に超音波を照射した。溶液の色は

淡黄色から Au 微粒子の生成を示す赤紫になり、その後 Pt 微粒子の生成を示す暗褐色になった。約 530 nm に現れるピークが Au 微粒子のスペクトルであり、約 260 nm にある Pt (IV) イオンのピークは次第に減少していった。またこれに NaI を添加して、微粒子を凝集・沈殿させフィルター分別除去した液中の各貴金属イオン濃度の時間変化を測定した。先に Au(III) イオン濃度が減少し Au(III) イオンの還元が完全に終わった後に Pt(IV) イオンの還元が始まった。このことから Au/Pt はコア・シェル構造を持つと期待される。Au/Pt 微粒子の X 線回析パターンは Au/Pt = 4/1 の時、広角度側で得られたピークは純粋な Au のピークの値とほぼ一致した。これより生成した微粒子は均一固溶体ではなくコア・シェル構造を持つことを示している。

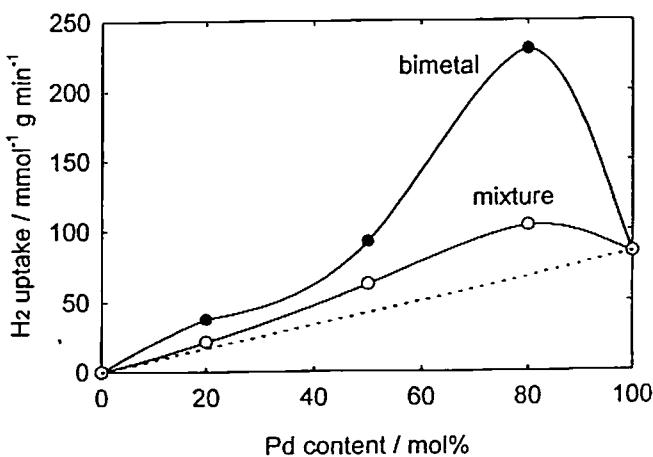


図 5 コア・シェル微粒子と混合微粒子の 4-ペンテン酸水素化能

約 530 nm に現れるピークが Au 微粒子のスペクトルであり、約 260 nm にある Pt (IV) イオンのピークは次第に減少していった。またこれに NaI を添加して、微粒子を凝集・沈殿させフィルター分別除去した液中の各貴金属イオン濃度の時間変化を測定した。先に Au(III) イオン濃度が減少し Au(III) イオンの還元が完全に終わった後に Pt(IV) イオンの還元が始まった。このことから Au/Pt はコア・シェル構造を持つと期待される。Au/Pt 微粒子の X 線回析パターンは Au/Pt = 4/1 の時、広角度側で得られたピークは純粋な Au のピークの値とほぼ一致した。これより生成した微粒子は均一固溶体ではなくコア・シェル構造を持つことを示している。

単泡性超音波発光に於ける表面の効果

柳田 英雄、中林 誠一郎

埼玉大理

1. 目的 水中の單一気泡に超音波を照射すると青白く発光する。この現象はシングルバブル ソノルミネンス(SBSL)と呼ばれている。その発光のスペクトルは何の特性線も持たない連続スペクトルであり、黒体輻射のスペクトルと程々一致し、気泡の中心の温度は10000K~50000Kと推定されている。また、水温が低いほど発光強度が高い。パルス幅が40psから400psの短パルスである、などの特徴を持っている。SBSLの研究は、数年前からアメリカ等で精力的に行われ、現在では物理的な理論計算により、発光機構や実験結果などもある程度解明されている。本研究室では、この現象に化学的な要素を加え、気液界面の問題として仕事を進めている。

2. 方法 充分脱気した水を丸底フラスコに入れ、ファンクション・ジェネレーターとパワー・アンプによって2個のPZT振動子を駆動した。水は蒸留水を1時間沸騰させ十分に脱

調節し、気泡はシリンジによりフラスコ内に送った。音圧は電圧の調節により行った。気泡の発光強度はICCDカメラによって測定し、気泡の挙動は光散乱により観察した。表面の効果を見るため、界面活性剤、塩等を加え、溶液の濃度を変えながら発光強度を測定した。

3. 結果 水温を約20-22°C(室温)に保ち、振動数46kHzでSBSLを観察した。気泡は一定駆動電圧領域で発光した。SBSLは青白い発光で、超音波の腹の部分にトラップされた。発光強度は音圧の依存性が高く、音圧をあげるに従い、発光強度も増加した。また、水温を下げるほど発光強度が高まった。今回、アニ

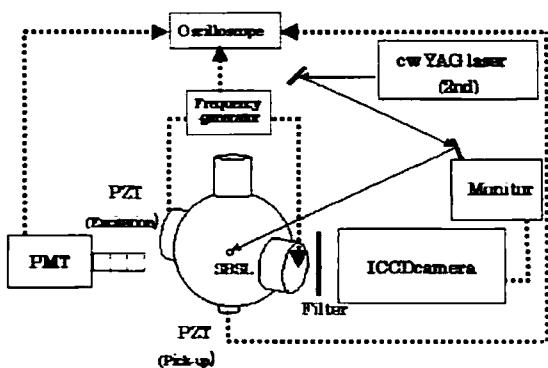


Fig.1 実験装置

気した後、室温にまで冷やしたもの用いた。フラスコ内に定常波ができるように振動数を

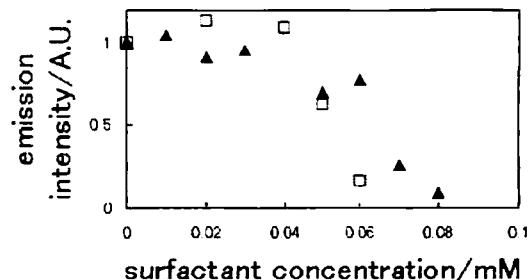


Fig.2 アニオン性界面活性剤 Sodium dodecyl sulfate (SDS) とカチオン性界面活性剤 1-Laurylpyridinium Chloride(1-LPC) の添加による SBSL の発光強度の変化

オン性界面活性剤 Sodium dodecyl sulfate (SDS) やカチオン性界面活性剤 1-Laurylpyridinium Chloride(1-LPC) の添加により、表面張力を低下させ、発光強度の変化や、光散乱によって気泡の挙動について観察した。どちらの水溶液も0.1mMほどで、発光

が消えた。しかしながら、この時でも気泡はトラップされていて、それは光散乱によって確認した。電荷の違いによる変化は観測されなかった。SDS 水溶液の表面張力は 0.1mM ではわずか 1%も変化しない。NaCl（無機塩）の添加によって表面張力を増加させ、発光強度の変化やその位置安定性等の検討も行ったが、0.1Mほど加えても劇的な変化は見られなかつた。つまり、塩を界面活性剤の 1000 倍添加しても SBSL には大きな変化がないと言える。さらに塩の濃度を上げ、1M NaCl 水溶液中で SBSL の発光強度を測定した。この時表面張力は 2.5%ほど増加している。結果、わずかではあるが発光強度が増加した。このことから界面活性剤を加えたときの発光強度の減少は、表面張力の変化以外の効果が考えられる。気液界面における界面活性剤の占有率は K. B. Eisenthal らの SHG による実験から、Carbon Chain が長くなるほど高くなるということが報告されている。そのため、界面活性剤の Carbon Chain を変化させ、濃度を変化させながら発光強度を測定した (Fig. 3)。Fig.3 は Sodium dodecyl sulfate (SDS)、Sodium hexyl sulfate (SHS)、Sodium methyl sulfate (SMS) 水溶液中で、濃度を変化させたときの SBSL の発光強度の変化をグラフにしたものである。SHS は SDS の 50 倍ほどの濃度で発光強度が減少し、SMS はその 1000 倍ほど加えても発光強度は減少しなかった。又、どの水溶液中でも濃度の低い所ではわずかに SBSL 発光強度が増加し、濃度を上げていくと減少した。これらの結果から、発光強度の減少は表面に配向した界面活性剤分子が SBSL の発光過程にある膨張圧縮過程や気液界面でのガス交換過程に影響を及ぼしたためだと考へている。

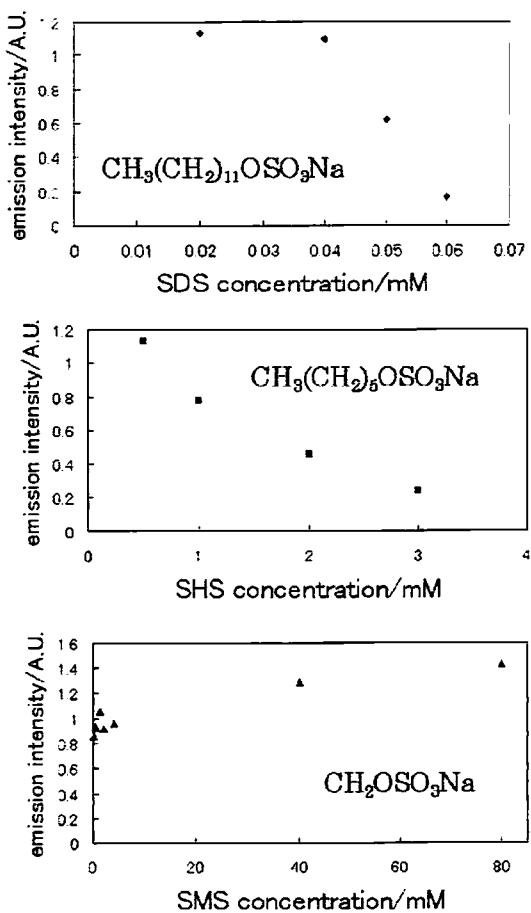


Fig.2 Sodium dodecyl sulfate (SDS)、Sodium hexyl sulfate (SHS)、Sodium methyl sulfate (SMS) 水溶液中で、濃度を変化させたときの SBSL の発光強度の変化

音響発光と音響化学発光の閾値の差

畠中 信一、安井 久一、三留 秀人（工技院・名工研）

1. 緒言

液体中の超音波照射によって生じた音響キャビテーションは、ある閾値を越えるとその圧壊時に発光し、音響発光と呼ばれている¹⁾。その発光は、液体中にルミノールを添加することにより、強度が著しく増大する。これは、ルミノールが化学反応して蛍光を発するためであり、音響化学発光と呼ばれて区別されている²⁾。音響発光と音響化学発光は、発光機構が異なる現象であるから、その閾値に差が生じると予想される。それを明らかにすることは、音場中のキャビテーション現象に由来する、音響化学反応場を理解する上で非常に重要である。本研究では、多泡性の音響発光および音響化学発光の発光強度を種々の実験条件を変えて測定し、結果を検討した。

2. 実験装置および方法³⁾

発振器からの連続正弦波信号を広帯域パワーアンプ(55 dB)で増幅し、恒温水槽下部のステンレス製振動板に固定されたボルト締めランジュバン型振動子(Φ45 mm)に印加し、超音波を照射した。恒温水槽は冷却装置からの冷却水を循環させて温度を一定に保持した。恒温水槽内の振動子直上にガラス製の直方体セル(内寸 50 mm × 50 mm × 145 mm、肉厚 5 mm)を設置し、中に脱イオン蒸留水またはルミノール水溶液を 250 ml(液深 100 mm)注入した。蒸留水を煮沸脱気およびバーリングにより、溶存ガスを調整し、DO メーターで溶存酸素量を測定した。ルミノール水溶液はあらかじめ調整しておいた 5 mM 炭酸ナトリウム-0.3 mM ルミノール水溶液を、同状態の蒸留水 249 ml に 1 ml 添加することにより作製した。容器中央部の液面にハイドロホンを配置し、キャビテーション発生の指標となる音圧の 2 次高調波成分を検知した。セル内の定在波音場が共振となる条件において、発振器の出力電圧を 0~500 mV_{pp}まで 5 mV_{pp}間隔で変化させて、発光

強度を測定した。発光強度はセル内の全ての位置における発光を短焦点距離の凸レンズによりフォトマルの入射窓に集光し、フォトマルからの出力電圧をデジタルボルトメータで測定した。

3. 実験結果および考察

Fig.1 に、発振周波数が 140 kHz、液温 20°Cにおける音響発光および音響化学発光の強度の発振器出力依存性を示す。図中に 2 次高調波成分のハイドロホン出力を任意のスケールで同時に示す。2 次高調波が最初に立ち上がり、続いて音響化学発光、最後に音響発光が後れて立ち上がり、閾値の高さはこの順番で大きくなる。これは、単泡性音響発光の気泡振動の音圧依存性から類推すると⁴⁾、以下のように解釈できる。音圧を次第に大きくしていくと、定在波音場中のキャビテーション閾値を越えた位置において、キャビテーション気泡が発生する。しかし、まだ音圧が低く、気泡を圧縮する力が弱いため、気泡の平衡半径は大きい。それらの気泡は、最大半径は小さく最小半径は大きいために、気泡の圧縮率が小さくなる。そのため、気泡の非線形振動による 2 次高調波成分は発生するが、気泡の断熱圧縮による温度の上昇はそれほど大きくないため、発光は生じない。音圧が大きくなるにつれて、次第に気泡の平衡半径は小さいものとなり、気泡の断熱圧縮率も次第に大きくなる。気泡内の温度が、水分子が分解される程度に上昇すると、それにより OH ラジカルが生じる。ルミノールによる音響化学発光は、ルミノールと OH ラジカルとの反応により光が放出されるため、この時点では発光は生じる。しかし、気泡自体が発光するためには、更なる高温が必要なため、閾値はより高くなる。音響発光の気泡内の温度が OH ラジカルの生じる温度より高いことは、多泡性音響発光のスペクトルに、励起した OH ラジカルの輝線が見られる⁵⁾ことにより推察できる。

Difference in Threshold between Sono- and Sonochemical Luminescence:

S. Hatanaka, K. Yasui, H. Mitomo, National Industrial Research Institute of Nagoya, AIST

Fig. 2 に音響発光および音響化学発光の発振器出力依存性に及ぼす温度の影響を示す。(a)は蒸留水による音響発光であり、(b)はルミノール水溶液による音響化学発光である。温度は気泡内の蒸気圧の指標として変化させた。ここで、注意しなければならないのは、温度の変化により音速も変化し、定在波音場の共振条件からはずれることである。図中の各温度は定在波音場が同程度の共振をしている条件を選び用いている。しかし、周波数を 140 kHz で一定としているため、共振モードはそれぞれの温度で異なる。条件が対応するのは、図 (a), (b) 中の同温度についてである。それぞれの温度について、音響発光と音響化学発光の閾値を比較すると、温度が高くなるにつれて音響化学発光の閾値と音響発光の閾値の間隔が大きくなっていることがわかる。その結果として、音響発光は温度が低いほど発光強度が大きくなっているのに対して、音響化学発光は温度が高いほど発光強度が大きくなっている。この結果は、単泡性音響発光の理論計算の結果⁹による類推より、以下のように解釈できる。蒸気圧が高いと、同じ平衡半径の気泡内により多くの水蒸気が含まれる。気泡内温度の上昇により、水分子は分解されるが、この反応は吸熱反応であるため、気泡内の温度は反応が多く起るほど下げられてしまう。音響化学発光は OH ラジカルによって発光するため、閾値に変化はないが、音響発光は気泡内の温度によるため、失った熱量分だけより高温になる必要がある。そのため、より大きな断熱圧縮比が得られる音圧まで閾値が高くなる。

音響発光と音響化学発光の閾値の差は、発光に寄与するキャビテーション気泡の気泡半径の差として解釈できる。よって、その閾値には、溶存気体の濃度が大きく影響する。溶存気体濃度によっては、Fig.2 における音響発光と音響化学発光の強度の温度依存性が逆になる現象は、より顕著になることも、逆に見られなくなることもあった。しかし、温度が高くなるにしたがって、音響発光と音響化学発光の閾値の差はより大きくなることに変化はない。

OH ラジカルが関与する反応と気泡内の温度が反応に影響するものでは、最適な音響化学反応場の条件は変化する。このとき、音響化学発光と音響発光はそれぞれの音響化学反応の指標になる。

4. 結言

蒸留水による音響発光とルミノール水溶液による音

響化学発光の閾値に差があることを示した。閾値の差は温度が高くなる程大きくなることを明らかにした。

参考文献

- 1) L. A. Crum : Phys. Today 47 (1994) 22.
- 2) 寒吉純一、菊池喜充、能本乙彦：超音波技術便覧 新訂版 (日刊工業新聞社, 1978), p. 1836
- 3) S. Hatanaka, H. Mitome, T. Tuziuti, T. Kozuka, M. Kuwabara, S. Asai: Jpn. J. Appl. Phys. 38 (1999) 3053
- 4) B. P. Barber, C. C. Wu, R. Lofstedt, P. H. Roberts and S. J. Puttermann, Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 1380.
- 5) T. J. Matula, R. A. Roy, P. D. Mourad, W. B. McNamara III and K. S. Suslick: Phys. Rev. Lett. 75 (1995) 2602.
- 6) K. Yasui: Phys. Rev. E, 58 (1998) 4560.

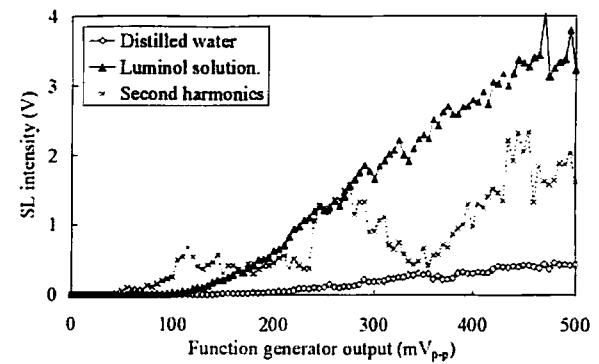
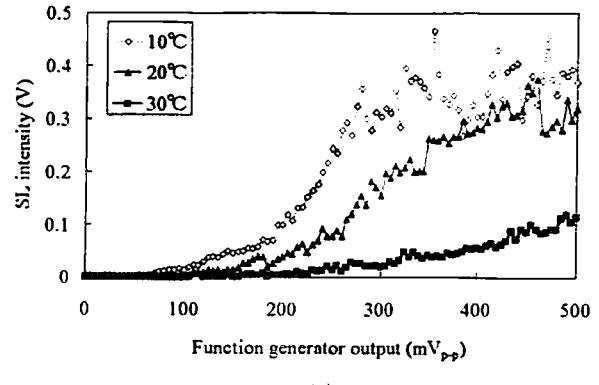
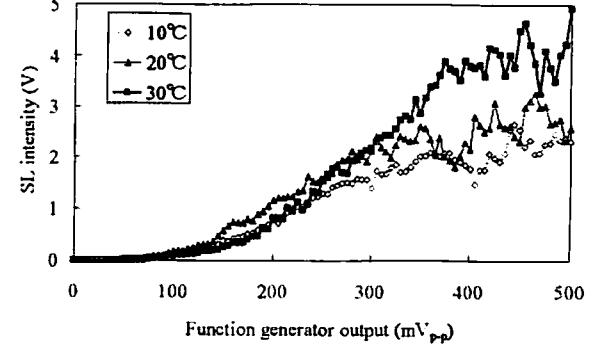


Fig. 1. Dependence of second harmonics, sono- and sonochemical luminescence on the function generator output at 140 kHz.



(a)



(b)

Fig. 2. Influence of temperature on intensity of sonoluminescence (a) and sonochemical luminescence (b) under resonant conditions at 140 kHz.

A-5

ソノルミネッセンス気泡挙動のストロボ観察

小塚晃透、畠中信一、辻内 亨、安井久一、三留秀人（工技院・名工研）

1. 緒言

水中超音波によるキャビテーション現象は古くから知られており、気泡の圧潰時の局所的な力により船のスクリューが腐食される現象が有名である。また、近年キャビテーションによる気泡が圧潰する際の局所的な高温・高圧場における、ソノルミネッセンス[1]の発光現象や、ソノケミストリーによる化学的な作用に関する研究が盛んに行われている。これらの研究において、その原因である気泡の挙動を直接観察し理解することは、より効果的に音場を制御する上で必要である。本報告では、微小で高速に変化する単泡性ソノルミネッセンスによる気泡の挙動を放電式のストロボを用いて実験的に観察し、音圧と気泡径の関係を調べる。

2. ストロボによる観察

高速で周期的に変化する現象は、発光時間の短いパルス状の光を現象の周期に同期させて発光させることで、現象を静止して観察することが可能となる。単泡性ソノルミネッセンスによる気泡（シングルバブル）は、定在波音場中の同じ位置で膨張・収縮を繰り返すため、観察が可能である。Tianら[2]は、発光ダイオードによるパルス光を音波の周期に同期して気泡に照射し、複数回の発光による画像を重畠してCCDカメラによるシングルバブルの観察を行っている。本報告では、高輝度のストロボを用いて、1回の発光でその瞬間の気泡を撮影する。そのため、気泡が高速で移動した際にも観察可能である。CCDカメラの撮影間隔（30画面/秒）でストロボを発光させ、超音波の周波数を30の倍数とすると、静止した気泡を観察することができる。ストロボの発光のタイミングを変化させることで、周期的に変化する気泡のさまざまな状態を観察することができ、振動子の駆動周波数を30の倍数からわずかにずらすことで位相を連続的に変化させると、気泡の変化をスロー モーションで観察することができる。

図1に実験装置の概略を示す。ランジェバン型超音波振動子（本多電子製）を駆動し、超音波セル（内寸 56 × 56mm、液深 70mm）中の振動子と水面の間に定在波音場を生成する。この定在波音場中の音圧の腹に気泡を捕捉し、その挙動をストロボ（発光時

間 75nsec）と対面して設置したCCDカメラで影絵として撮影する（視野 0.53 × 0.4mm）。

3. 実験および結果

シングルバブルの生成実験は、一般的な手法[3]に従って行う。振動子の駆動周波数を 24.4805 kHz (30 の倍数 +0.5Hz) にしてストロボによる観察を行った。これは気泡の1周期の変化を2秒間（60画面）で観察するスロー モーションとなる。振動子印加電圧を 31.6Vpp ~ 10.2Vpp まで順次下げたところ、26.0Vpp 以上においてソノルミネッセンスによる発光現象が目視で観察され、CCDカメラによる撮影では、影絵であるはずの気泡の中心に明るい部分が確認された。図2は、振動子印加電圧 29.2Vpp 時の気泡の1周期分の挙動を、6画面（測定時間 0.2sec、実時間 4.1μsec、位相差 36°）毎に示している。気泡が膨張・収縮する様子がわかる。

図3は、振動子印加電圧が(a)29.2Vpp、(b)27.2Vpp、(c)24.6Vpp、(d)20.0Vpp の4つの場合について、2周期分の気泡径を計測した結果である。横軸は位相（時間に比例、720°は実時間 82μsec 相当）、縦軸が気泡の半径を示している。いずれの場合も気泡の膨張・収縮が見られるが、電圧が高い場合に気泡の最大径は大きく、最小径は小さいことがわかる。また、発光している(a)(b)は気泡の圧潰時に急激な径の減少が見られるが、発光していない(c)(d)は比較的緩やかに変化し、収縮後に再度径が大きくなるリバウンドが確認される。このことは、Barberら[4]による光散乱法の結果と一致する。

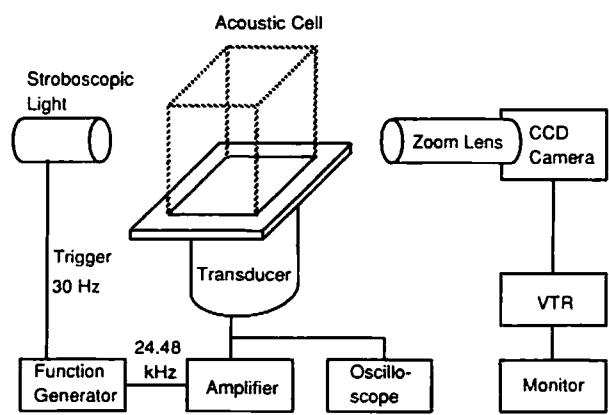


FIG.1. 実験装置

Observation of sonoluminescing bubble motion using a stroboscope:

T. Kozuka, S. Hatanaka, T. Tuziuti, K. Yasui and H. Mitome. National Industrial Research Institute of Nagoya, AIST

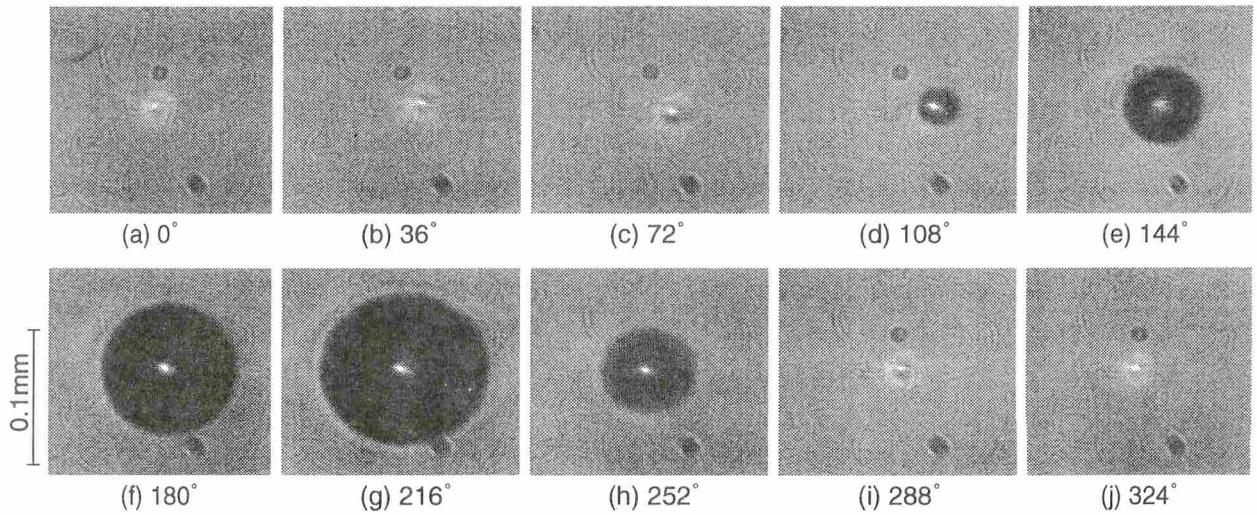


FIG.2. 位相変化時の気泡の変化

4. 考察

気泡の膨張・収縮を引き起こす超音波音場の変化を調べるために、媒質の密度変化を光学的に測定するシュリーレン法による音場観察を試みた。前節と同条件でのシュリーレン法による観察は、周波数が低いため困難であった。図4に45.51kHz、液深65mmにおいて、光源にストロボを用い、その発光のタイミングを180°変化させた際のシュリーレン像を示す。(a)と(b)を比較すると3箇所の明滅する部分（音圧の腹）があり、媒質の密度変化が確認される。気泡はこの密度変化に伴う圧力の変動を受けて、周期的な膨張・収縮が起こっていると考えられる。

5. 結言

本報告では、微小で高速なソノルミネッセンス気泡の挙動を、高輝度で発光時間の短いストロボ光源を用いて観察した。ストロボの発光のタイミングを緩やかに変化させることで、気泡の膨張・収縮の周期的な変化を観察した。気泡径の変化は音圧によって異なり、気泡の挙動が異なることにより、ソノルミネッセンスにおける発光現象の有無に影響があることが確認された。また、シュリーレン法での音場観察を行ったところ、気泡の膨張・収縮に対応する媒質の密度変化が確認された。これにより、媒質の密度変化と気泡の挙動、そしてソノルミネッセンスの発光現象との対応が明らかになった。

文献

- [1] 林, 鎌倉, "ソノルミネッセンスとは何か," 超音波テクノ, 11-2, pp.2-5, 1999.
- [2] Y. Tian, J. A. Ketterling and R. E. Apfel, "Direct observation of microbubble oscillations," J. Acoust. Soc. Am. 100-6, pp.3976-3978, 1996.

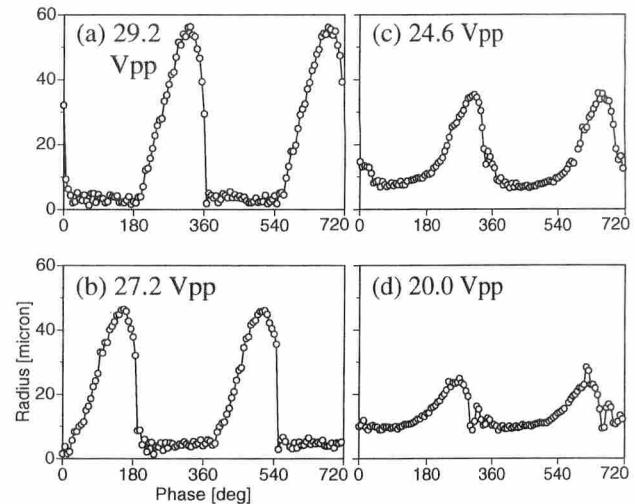
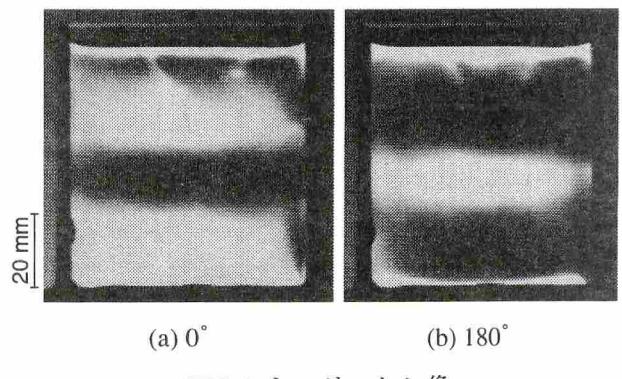


FIG.3. 電圧による気泡径の変化



(a) 0° (b) 180°

FIG.4. シュリーレン像

- [3] 遠藤, 長谷川, 三留, "単泡性ソノルミネッセンスの発生方法," 超音波テクノ, 11-3, pp.17-22, 1999.
- [4] B. P. Barber, C. C. Wu, R. Lofstedt, P. H. Roberts and S. J. Puttermann, "Sensitivity of sonoluminescence to experimental parameters," Phys. Rev. Lett. 72, pp.1380-1383, 1994.

B-1

液体表面積制御装置を持つリプロン光散乱用トラフ

小沢あつみ、村岡 梓、南澤 明子 (日女大理)

【はじめに】我々は液体表面のダイナミクスを解明するために、リプロン光散乱法装置を組み立て、液体表面に生じる熱的揺らぎであるリプロン（表面張力波）観測を行っている。今回、サンプルトラフの改良を試み、可動バリアで液体表面積を制御できる装置を作製し、このトラフの特性を検証した。またこれを用いて界面活性剤水溶液表面のスローダイナミクスの観測を行った。

【実験方法】今回作製したトラフを、図1に示す。試料汚染を避けるためテフロンコーティングし、オプティカルウインドウとして2cm径のガラス窓を底面に取り付け測定中は温度制御のためカバーで覆った。液体表面にはテフロン枠とバリアを設置してバリアを動かすことにより液体表面を清浄化し、またその面積を制御した。このバリアを掃引し終えた瞬間を測定開始時間の原点とした。リプロン光散乱法のブロック図は図2に示す。光源には出力 100mW、波長 532nm の Nd-YAG レーザを用い、このレーザ光を光ヘテロダイイン法によりローカル光と入射光に分け、これを液体表面に垂直入射させる。この時の交差角でリプロンの波数が決まる。また、液面ではリプロンにより散乱された散乱光のうちローカル光と同じ方向の散乱光がフォトダイオードに集光され、その出力はビート信号としてスペクトラムアナライザで周波数分析される。この測定法により、リプロンの周波数と波数が観測され、更にこの値を用いて分散公式より表面張力や粘性が得られる。図3は純水で得られた粘性と表面張力の温度依存性の結果である。実線は文献値で測定値はこれとほぼ一致した。

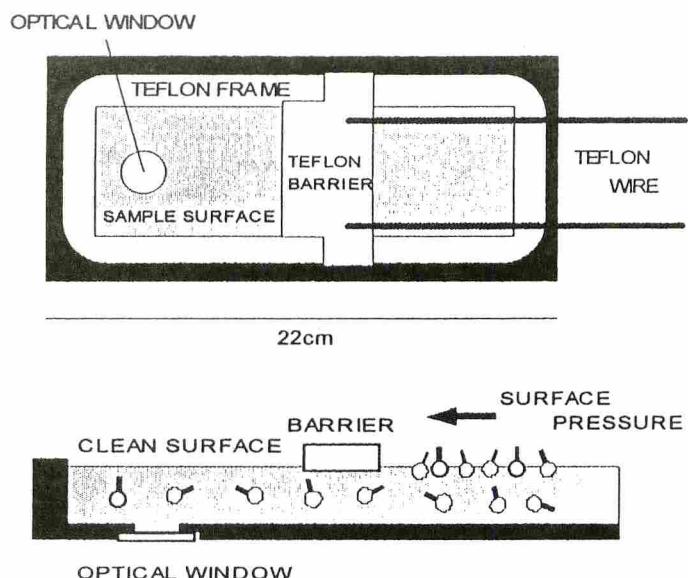


図1 トラフの全体図と断面図

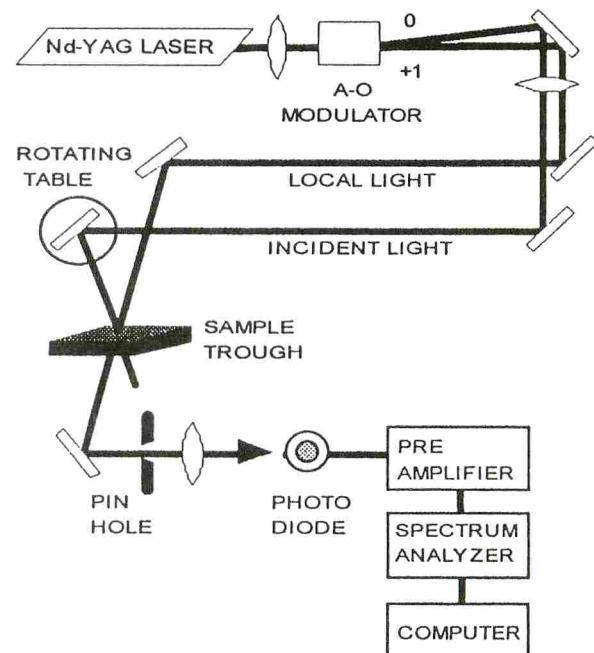


図2 リプロン光散乱法のブロック図

Surface-Area Controllable Ripplon Light Scattering Trough:

A.Ozawa, A.Muraoka and A.Minamisawa, Japan Women's Univ.

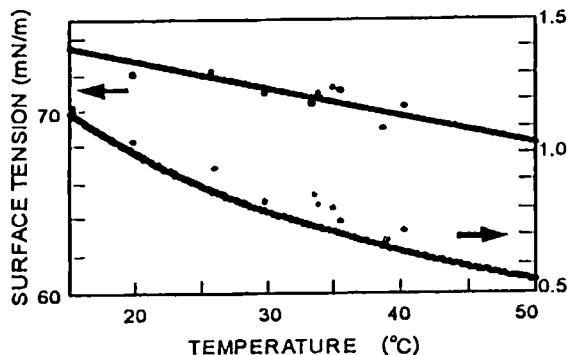


図3 粘性、表面張力の温度依存性（純水）

【結果】 試料は、C14TAB 界面活性剤水溶液を用いた。図4に3種類の濃度における表面張力の時間変化を示す。表面張力が平衡に達するまでに3時間という非常に長い時間を要していることがわかる。また、濃度が低いほど変化分も大きく、緩和時間が長いことがわかる。この表面張力の時間変化は温度を変えても同様な結果が得られ、また、測定面積にも依存しない。図5に緩和時間と濃度の関係を示す。この試料はある濃度でミセルという分子会合体を作ることが知られている。この時の濃度を CMC(Critical Micelle Concentration)という。今回観測した時間変化は CMC 以下の低濃度での現象である。図6は各濃度における表面張力の初期値（●）と3時間後の表面張力（○）を示す。初期値はバリア掃引直後で液面が清浄になっているため、ほぼ水の値に一致する。ギブスの吸着式よりこの濃度域では吸着量がある一定の最大値に達していることが予想される。このように非常に長い緩和時間生じた原因は表面とバルク相の濃度比が平衡に達するまでの分子の吸着速度に関係するものと考えられるがさらに検討中である。

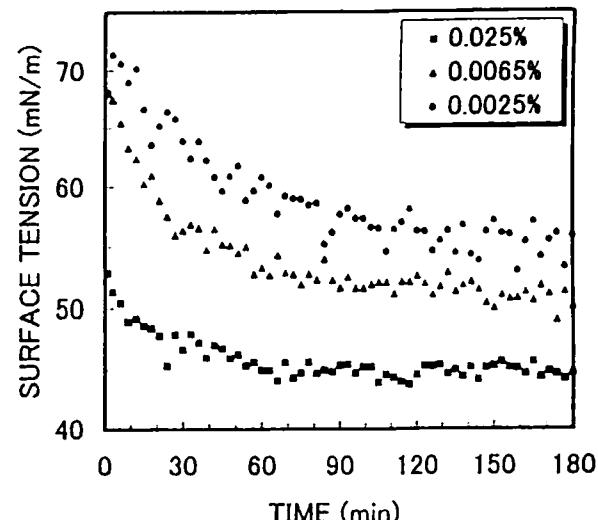


図4 濃度の違いによる表面張力の時間変化

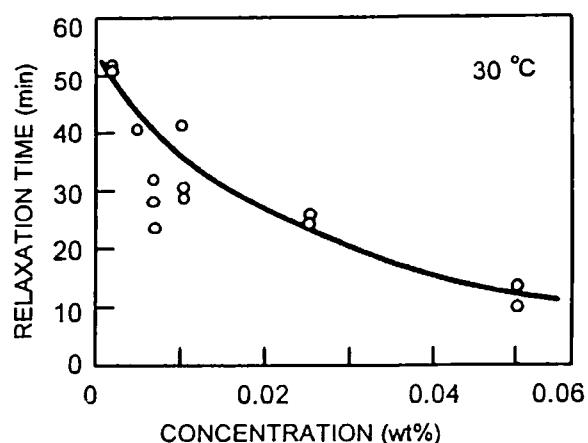


図5 緩和時間の濃度依存性

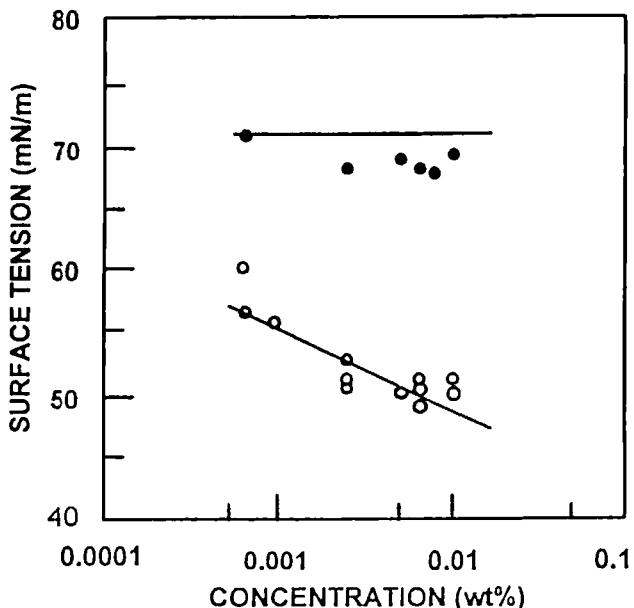


図6 表面張力の変化分の濃度依存性

B-2

ゼラチンゲルの広帯域超音波スペクトロスコピー

谷本亮介、崔 博坤 (明大理工)

1. はじめに

ゼラチンゲルの超音波吸収を0.2~3 MHzで測定した結果、吸収変化は単一緩和では表せないことを既に報告した。¹⁾ 今回新たに5~35MHzの吸収を光偏向法を用いて測定し、広帯域の吸収スペクトルから緩和機構の解明を試みた。

2. 実験

超音波による光偏向現象は古くから知られている。波長λの超音波の波面に平行にレーザ光を入射する。レーザビーム径がλより十分小さいとき、空間的に分布する屈折率変化の中を光が通過することになるので、レーザ光は偏向する。その偏向角θは

$$\sin\theta = - \frac{v\Delta}{\lambda} \cos\omega t \quad (1)$$

で与えられ、vはラマンナスパラメータ、Δは光の波長、ωは音波角周波数である。偏向角を測定することによってvを通じて音圧が求められる。

図1は装置のブロック図である²⁾。本実験では、水晶振動子をDCパルスで励起して高調波成分を多く含んだ超音波パルスを伝搬させる。超音波により偏向されたレーザビームは広帯域の2分割ホトダイオードで検出され、オシロスコープ(2GHz sampling)で観測する。さらにパソコン上でそのスペクトルを調べる。本検出法の大きな特徴は広い周波数帯域にあり、35MHzの超音波まで検出することができた。伝搬距離を変えながら各高調波スペクトル成分の変化を調べることにより、9~35MHzの吸収を一度に求めることができた。9MHz以下の検出も十分できるが、5cm程度の距離変化では音波振幅があまり変わらないので吸収は測定できなかつた。

ゼラチンはSigma社、タイプG2500のものを用了。ゼラチンパウダーを蒸留水に入れ、60℃に約1時間保って溶解したものを試料とする。測定濃度

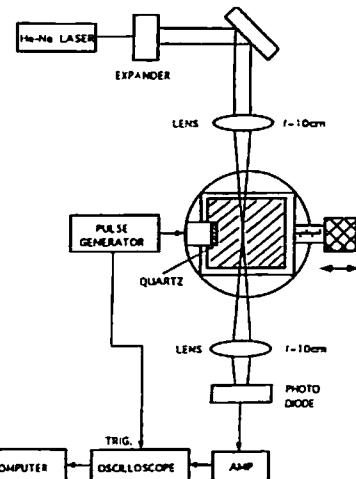


図1. 装置のブロック図

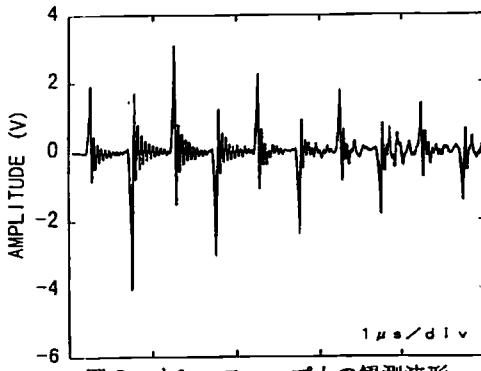


図2. オシロスコープ上の観測波形

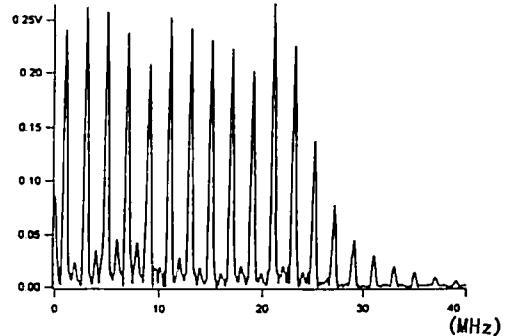


図3. 図2のスペクトル波形

は5wt%である。このときのゲル化温度は約25℃である。測定温度は15, 20, 30, 40℃の4点で、まずソル状態の40℃からはじめ、次に30℃(ソル), 20℃(ゲル), 15℃(ゲル)と温度を下げながら実験を行った。

3. 結果

図2, 3はオシロスコープ上に観測された波形とそのスペクトルを示している。水晶振動子の基本周波数は1 MHzであるので、1 μ s毎に大きなピークの繰り返しがあり、それに多くの高調波成分が重なっている。図2はエコーパルス列ではなく全体で一つのパルスを表していることに注意してほしい。

Fig.3から39次成分まで出ているのがわかる。ただ、検出感度は20MHz近くまでは周波数に比例して高くなってしまい、それ以上ではビーム径が入るより十分小さいという偏向の条件が怪しくなってくるので感度は下がるであろう。

吸収を求めるためには、Fig.3のスペクトルの全てのピーク値を伝搬距離を変えながら記録し、その傾きから吸収係数 α が得られる。その結果をFig.4に示す。0.2~3 MHzまでのデータはブラン・コンケーブ共鳴法で測定したものである。ゲル化した後の15, 20°Cの吸収値はソルでの値より大きく、傾きも異なっていることが見てとれる。

4. 緩和現象の解析

図4の結果から单一緩和でないことは簡単にわかる。そこで緩和時間分布関数のなかで最も一般的な Cole-Cole 分布関数を仮定し、fittingを試みた。

α/f^2 よりも波長あたりの吸収 α/λ で解析した方がパラメータを決めやすい。中心緩和時間を τ 、緩和時間分布の幅を β 、緩和強度を ε とすると、

$$\alpha/\lambda = \frac{\pi \varepsilon \sin(\pi\beta/2)}{(\omega\tau)^\beta + 2\cos(\pi\beta/2) + (\omega\tau)^{-\beta}} \quad (2)$$

と表される。図5に(2)式の緩和曲線をfittingした結果、また得られたパラメータをTable1に示す。古典吸収分として水の吸収を差し引いてある。低温でゲル化するとともに分布が広がり、緩和周波数は低周波側にシフトする。また、緩和強度は大きくなることがある。

緩和機構は、ゼラチン分子と溶媒である水との水和反応で説明できる。ゲル化に伴い、ゼラチン分子はランダムコイルからヘリックス状態に徐々に変化するが、ヘリックスの割合の指標となる旋光度と超音波吸収は相似的な変化をする。³⁾ ヘリックスが増加するにつれて水和水の量が増え、水和水と自由水との交換時間に相当する緩和時間は遅くなる。誘電

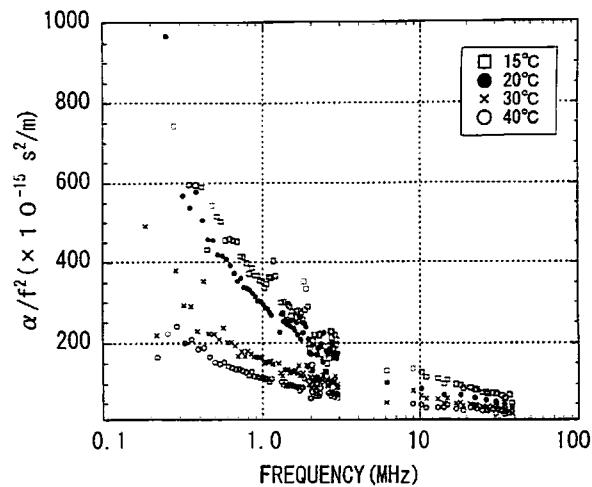


図4. ゼラチンゲル (15, 20°C)・ソル(30, 40°C)の超音波吸収スペクトル

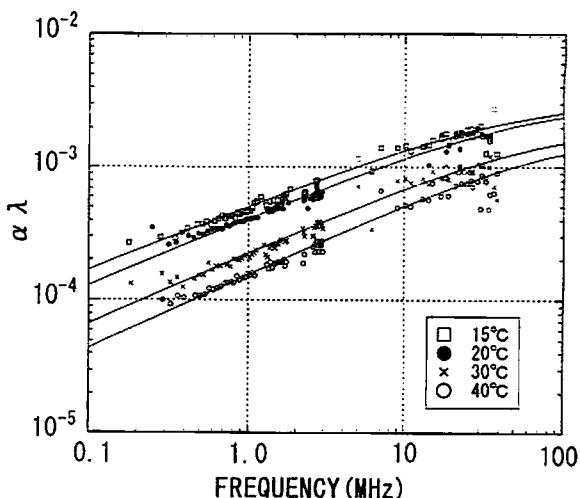


図5. ゼラチンの波長当たりの吸収。実線はCole-Cole 分布緩和曲線を示す。

表1. ゼラチンゲル・ソルの緩和パラメータ

温度(°C)	緩和周波数	緩和強度	β
15	190 MHz	4.3×10^{-3}	0.50
20	243 MHz	4.0×10^{-3}	0.52
30	412 MHz	2.6×10^{-3}	0.54
40	512 MHz	2.2×10^{-3}	0.56

緩和の測定でもGellan gum-waterゲルで同じような議論が行われている。⁴⁾

References

- 1) 山本晃央, 崔博坤, 日本音響学会誌53,(1997)4.
- 2) P.-K.Chi, J.Acoust.Soc.Jpn.(E)13,(1992)4.
- 3) J.R.Emery, J.Y.Chatellier, and D.Durand, J.Physique 47(1986)921.
- 4) S.Mashimo, N.Shinyashiki and Y.Matsumura, Carbohydrate Polymers, 30(1996)141.

高木 晋作、田中 肇 (東大生研)

1. はじめに

動的光散乱法は物性研究の強力な手段の一つに挙げられる。散乱光の周波数スペクトルから、拡散係数、音速など、ゆらぎのダイナミクスについての情報を得ることができる。このうち、Brillouin 散乱は媒質で熱的に励起された音響フォノンによる光散乱で、そのスペクトルから媒質の音速、および音波の寿命を知ることができる。

Brillouin 散乱を光学的に分光する際に最も一般的に用いられるのは Fabry-Perot 干渉計であるが、分解能の制約から GHz 以上の高周波フォノンに限られ、MHz オーダーの分解能を必要とする測定には不向きである。しかも、熱励起フォノンからの散乱信号が微弱なため、満足の行く精度でスペクトルを得るために長時間にわたって積算しなければならない。したがって、試料の固化、ガラスの Aging などの過程で数分から数時間のオーダーで経時変化をする場合、Brillouin 散乱でその変化を追跡するには、Fabry-Perot 干渉計よりも短時間で十分な精度が保証される分光法を用いることが望ましい。

われわれは、上述の高分解能、高 S/N の分光法として位相コヒーレント Brillouin 散乱法を用い、複雑液体の経時変化追跡を行った。

2. 実験

位相コヒーレント Brillouin 散乱法はわれわれがこれまでに開発してきたもので[1]、従来の動的光散乱測定法に優る利点をいくつか備えている。その一つに、従来の Brillouin 散乱が熱励起フォノンによって分光していたのに対し、位相コヒーレント Brillouin 散乱法ではレーザー光によってフォノンを共鳴的に励起している、という点が挙げられる。レーザー励起フォノンは熱励起フォノンをはるかに凌ぐ強度を持つので、散乱光信号の強度も増大し、その結果、S/N の高いスペクトルを短時間で得ることができる。これは、経時変化していく試料を測定する場合に、位相コヒーレント Brillouin 散乱法が有効であることを示している。

光でフォノンを励起する原理を簡単に説

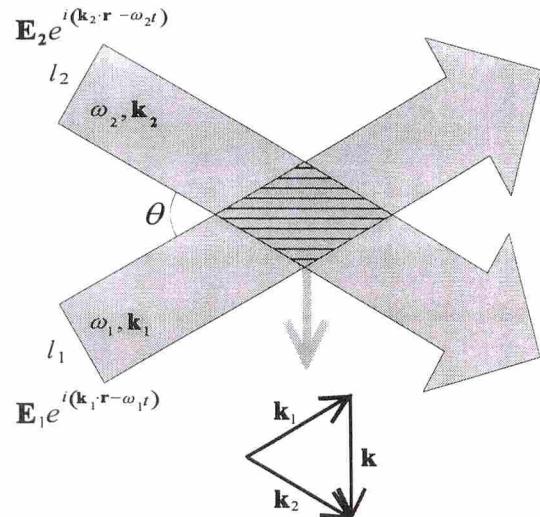


Fig. 1 レーザー光によるフォノン励起の原理。

Aging of complex fluids studied by phase-coherent Brillouin scattering method:
S. Takagi and H. Tanaka, IIS. Univ. of Tokyo

明する。Fig.1 のように、試料中で 2 本のレーザー光を交差させると、交差部分には光の干渉縞が形成される。この干渉縞はレーザーの差周波数に応じた位相速度で移動する。レーザーの周波数を掃引し、縞の位相速度が媒質の音速に一致すると、媒質中に音響フォノンが共鳴的に励起される。熱励起フォノンと異なり、レーザー励起フォノンは位相がコヒーレントである。そのため、散乱光の位相敏感検波により、位相コヒーレント Brillouin 散乱法で観測されるスペクトルは、実部と虚部からなる複素スペクトルとなる。分解能の限界は周波数可変レーザーの安定度で決まり、現在のところ、およそ 1MHz である。

実験に用いた試料はラポナイトと呼ばれるコロイド粒子の水溶液で、各粒子はおよそ直径 25nm、厚さ 1nm の円盤状をなしている。純水中ではラポナイト粒子同士の電気的結合で会合構造を作るため、純水ではなく pH = 10 に調整した NaOH 水溶液に 3.5 wt% の濃度で加え、10 分程かき混ぜて溶解させた後、孔径 $0.8\mu\text{m}$ のフィルターに通して光路長 10mm の方形ガラスセルに封入した。

ラポナイト水溶液は透明で、調整した直

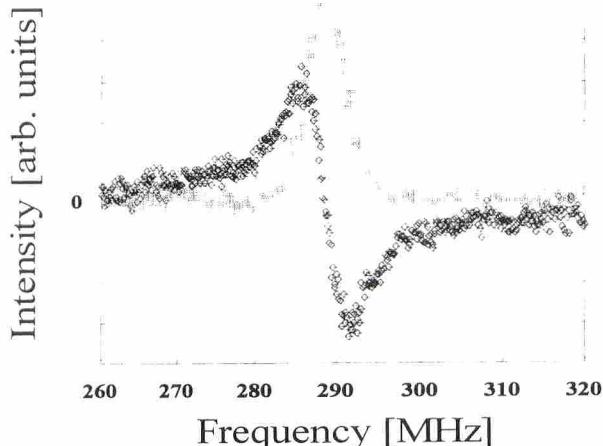


Fig. 2 ラポナイト水溶液の複素 Brillouin スペクトル。

後は通常の水と同様に粘性が低いが、粘性率が次第に上昇し、数時間後にはゲル状に変化する[2]。これは、ラポナイト粒子同士の電気的反発力を成因とするガラス (Wigner ガラス) の Aging と捕らえることができる一方で、粒子間ネットワークが構築されることによるゲル化とみなす研究者も多く、現在統一的な見解を得るに至っていない。

3. 結果、考察

ラポナイトに関する実験結果を Fig.2 に示す。分解能は 1MHz で、また各測定は 20 分の所要時間で 6 時間に渡って断続的に測定を続けた。全てのスペクトルはシフト周波数やスペクトル線幅を評価するのに十分な精度を有する複素スペクトルとして観測された。シフト周波数およびスペクトル線幅の顕著な時間依存性は現れず、ラポナイト水溶液は粘性が数時間で飛躍的に増大するにもかかわらず、ほぼ一定の音速、減衰率を保つことがわかった。音速は媒質の圧縮率と密度で決まるので、この結果は、ラポナイト粒子が水のずり粘性率を増大させていくが、その過程において圧縮率がほぼ変化しないことを示唆する。

現在、ラポナイト水溶液の音速の分散関係を測定しており、講演ではその結果も合わせて報告する。また、他の試料についても同様な経時変化の追跡を図っていきたい。

参考文献

- [1] H.Tanaka, T. Sonehara and S.Takagi, Phys. Rev. lett. **79**, 881(1997).
- [2] D. Boon, H. Tanaka, G. Wegdam, H. Kellay and J. Meunier, Europhys. Lett. **45**, 52(1998).

高分子溶液における超音波誘起複屈折に対する超音波放射圧の効果

松岡 辰郎、香田 忍、野村 浩康（名大院工）

1. はじめに

縦波超音波を異方性分子からなる液体や異方性分子（ゾルなどの巨大分子も含む）を溶質とする溶液に照射すると、分子が配向し、液体または溶液は光学的な複屈折をしめす。この現象は超音波誘起複屈折と呼ばれている。分子または粒子が配向する機構は、分子または粒子の配向緩和時間によって、縦波超音波による周期的な速度勾配によるもの（機構1）^{1,2}と超音波放射圧によるもの（機構2）^{3,4}に分類されている。機構1の場合、速度勾配は超音波振幅に比例するため、複屈折の強度は超音波強度（単位時間、単位面積当たりの超音波のエネルギー）の平方根に比例することになる。後者の場合は、複屈折強度は超音波強度に比例する。

これまでの研究により純液体では速度勾配によって^{1,2}、コロイドゾルや紐状ミセルでは超音波放射圧によって配向することが知られている^{3,4}。小さな分子であれば配向緩和時間は、超音波周期に対して小さいかまたは同程度なるため速度勾配に追随することができる。このときは、機構1で複屈折が生じる。コロイドゾルの様に配向緩和時間が超音波周期に比べ3桁以上大きい場合、配向運動は速度勾配に追随できないが、超音波放射圧は、時間に対して定常であるためこの様な場合、機構2によって粒子は配向する。

高分子は、セグメントが線状につながっているため、個々のセグメントが速度勾配に応答して配向するのか、放射圧による定常的なトルクで分子が配向するのかは、非常に興味深い。本研究では、単位モノマーにベンゼン環もち、高い複屈折能をもつと考えられるポリスチレン(PS)のトルエン溶液を試料として超音波誘起複屈折の測定をおこない、高分子の配向メカニズムについて考察する。

2. 実験

超音波誘起複屈折の測定は、既報のように $\lambda/4$ 板を用いない方法（方法1）²と $\lambda/4$ 板を用いる方法（方法2）^{3,4}の双方でおこなった。

方法1、2それぞれにおいて透過光量変化 ΔI と複屈折による複屈折量 Δn の間には、それぞれの式(1)、(2)の関係式がある。^{2,4}

$$\Delta n_{\text{rms}} = \frac{\lambda}{\pi d} \sqrt{\frac{\Delta I}{I_0}} \quad (1)$$

$$\Delta n = \frac{\lambda}{4\pi\beta d} \frac{\Delta I_+ - \Delta I_-}{I_0} \quad (2)$$

ここで λ は真空中の光の波長 (632.8nm)、 d は光路長(16mm)、 I_0 は偏光子と検光子が平行のときの透過光量である。方法2では、検光子を消光角から角度 $\pm\beta$ だけずらして測定をおこなっており、式(2)の ΔI の添字の符号は、 β の正負に対応したものである。式(1)、(2)においては $|\delta| \ll \beta \ll 1$ を仮定している。機構1による複屈折は、超音波の位相変化に応じて空間的にも時間的にも周期的に変化するため、レーザービーム径 (1mm)、光検出器のカットオフ周波数(1MHz)から考えて方法2においては平均化されて0となる。したがって、方法2では、定常的な複屈折のみ、すなわち機構2による複屈折のみが測定出できる。方法1では、root mean squareを測定することになるので双方の寄与が入ったものとなる。我々の装置での複屈折の検出限界は方法1では 5×10^{-8} 程度、方法2では 1×10^{-11} 程度である。

また、広い超音波強度で測定を行うために、信号源としてRFパルスジェネレータ (MATEC 6600、プラグイン760、10-90MHz) を使用した。

ポリスチレン(PS)はSCIENTIFIC POLYMER PRODUCTS 製、 M_w 250,000のものを用いた。トルエンは和光、スペクトルグレードのものを用いた。

3. 結果と考察

方法1、方法2のいずれでも超音波誘起複屈折信号が検出された。Fig.1に方法2での信号の一例を示す。複屈折信号の立ち上がりおよび減衰時間は、超音波パルスの立ち上がりおよび減衰時間 5μsとほぼ一致した。方法1でも同様に複屈折信号の立ち上がりおよび減衰時間は、超音波パルスの立ち上がりおよび減衰時間と一致した。方法2では複屈折の符号を決定できるが、符号は正となつた。

Fig.2に超音波周波数25 MHzにおける超音波誘起複屈折の強度依存性を示す。方法1での複屈

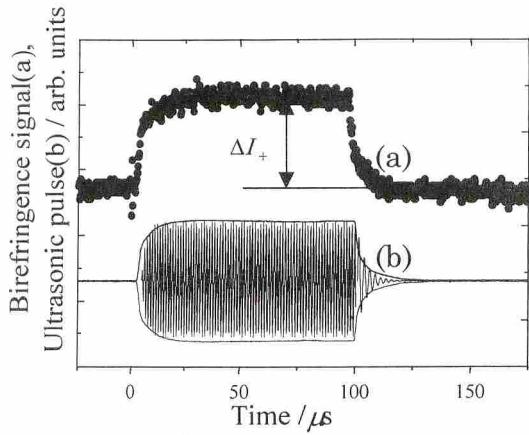


Fig.1 Birefringence signal using a quarter wave plate.(25MHz, 25°C)

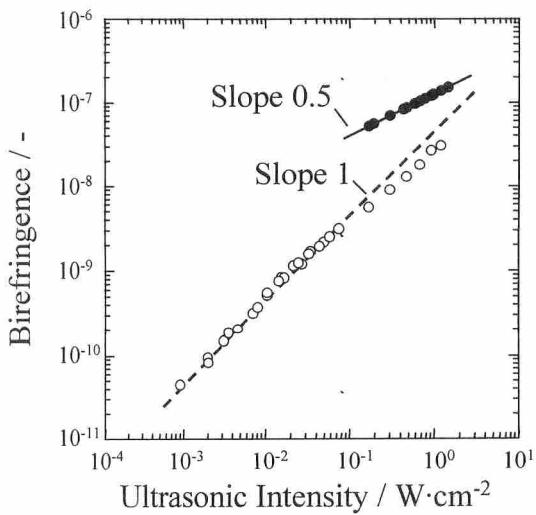


Fig 2. Ultrasonic intensity dependence of birefringence in toluene solution of polystyrene (25MHz, 25°C). (○:with quarter wave plate, ●:without quarter waveplate)

折は、超音波強度の平方根に比例し、方法2での複屈折量は、ほぼ超音波強度に比例した。方法2で検出された複屈折は信号1で検出された信号に比べ、もっとも差が小さいところで $1/6$ 程度である。したがって、方法1での複屈折信号は速度勾配による寄与によるものだと考えられる。

方法2による実験はポリスチレンスルホン酸ナトリウム水溶液でも行い、超音波強度に比例する複屈折信号を検出した。

Peterlinは、超音波による速度勾配によってセグメントの配向密度が変化し、複屈折が誘起されるという理論を構築している⁵。Jerrardらは方法1に相当する方法でポリスチレン、ポリイソブチレン溶液で1-6MHzの周波数範囲で超音波誘起複屈折の実験を行い、超音波複屈折量が超音

波強度の平方根に比例するという結果を得ている¹。これらから高分子溶液での超音波誘起複屈折は速度勾配で生じるとされていたが、超音波放射圧による複屈折も同時に存在する事が確認された。

References

- 1) H. G. Jerrard, Ultrasonics, **2**, 74 (1964).
- 2) T. Matsuoka, K. Yasuda, S. Koda, H. Nomura, J. Chem. Phys., **111**, 1580 (1999) and references therein.
- 3) H. D. Ou-Yang, R. A. MacPhail and K. D. Kivelson, Phys. Rev. **A33-1**, 611 (1986).
- 4) 松岡、安田、香田、野村, 応用物理, **67**, 318 (1998), and references therein..
- 5) A. Peterlin, Rec. Trav. Chim. **69**, 14 (1950).
- 6) N. C. Hilyard and H. G. Jerrard, J. Appl. Phys. **33**, 3470 (1962)

B-5

尿素 $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$ をドープしたチオ尿素 $\text{CS}(\text{NH}_2)_2$ のブリルアン散乱

電通大 量子・物質工学科

高木康成

チオ尿素 $\text{CS}(\text{NH}_2)_2$ は 30 数度の広い範囲に渡って不整合相が存在し、その中に整合相があるという非常に複雑な構造相転移を有する。しかし、この結晶の構造相転移の機構はまだ明らかではない。一方、この結晶は大きな熱的記憶効果を有し、その原因は不純物の混入していることによると考えられている。そこで、これらのことと解明するために、今回、分子構造式は類似し、しかも相転移はしない尿素 $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$ をチオ尿素にドープさせた混晶を育成することを試み、かつそれらの混晶の尿素混入具合を確かめるべく、化学分析、誘電率、及びブリルアン散乱を行った。更にブリルアンスペクトル (C_{33}) の温度依存性を測定した。

1) 混晶の尿素混入率

a) 化学分析 : S の重量分析の結果、混入率 $x(\text{mol}\%)$ は 0.4, 0.5, 0.8, 1.1 及び 8 と得られた。以降これを基準にする。

b) 誘電率 : 図 1 にそれぞれの x における誘電率(周波数 100kHz)の温度依存性が測定された。 x よる大きな相異が見られた : T_g でのピークの減少、 T_c でのトビの逆転及び T_{im} のピークの増大。各転移温度(T_i, T_g, T_c, T_{im})の x 依存性を図 2 に示す。 $x = 1.1$ まではほぼ比例して変化しているが、 $x = 8$ はズレを示した。

2) ブリルアン散乱

a) 室温でのブリルアン周波数 ($\Delta\nu$)

各弾性定数(C_{22} :●, C_{33} :△, C_{11} :■, C_{55} :◇, C_{44} :▼, C_{66} :+)に相当する $\Delta\nu$ の x 依存性を

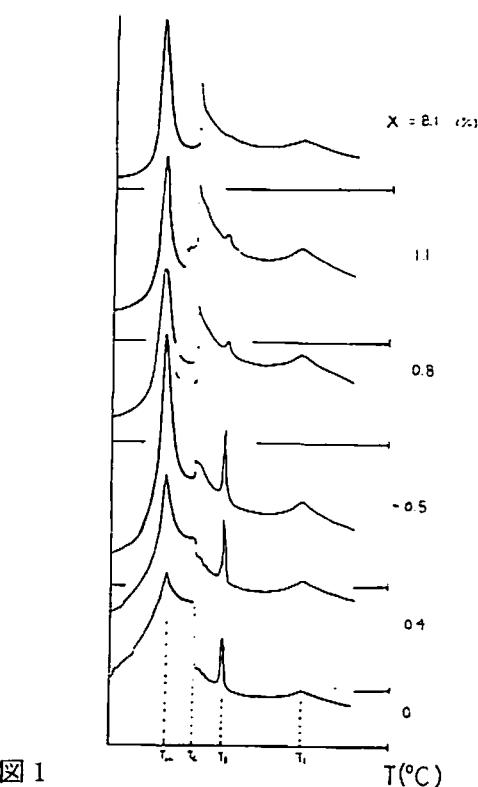


図 1

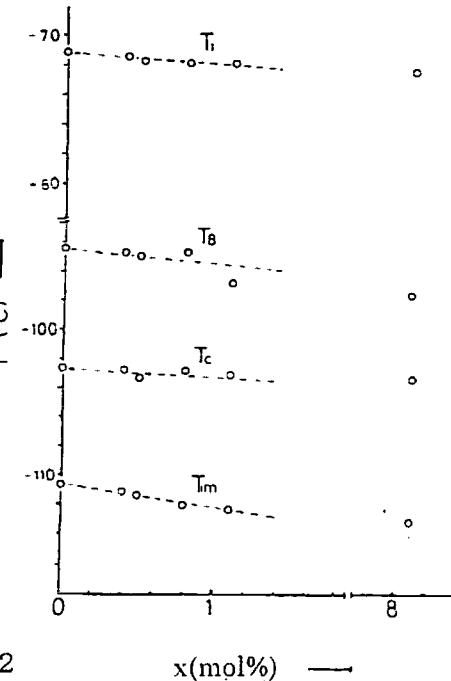


図 2

測定した(図3)。 x を増すと1%まではすべての $\Delta\nu$ が減少したが、 $x=1.1$ の $\Delta\nu$ は明らかにわずかに高めにズレを示した。このことから $x=8$ はとても無理な値と推察できる、また尿素の混入により液晶は軟らかくなる傾向を持つことが分かった。

b) 温度依存性

$x=1.1$ の液晶における z 軸方向に伝播する縦波音響フォノン(L-mode)のブリルアンスペクトル(C_{33})の温度変化が測定された(図4)。1回目の測定(○)は室温から温度を降下させると T_i でチオ尿素と同様に $\Delta\nu$ は減少した。不整合相に入って、180 Kで突然トビを示した。それで5度程度温度をあげて再度下降して測定しても(▲)もう元には戻らなかった。更に室温まで

戻して2回目の測定しても(●)、最初の状態(○)には戻らず、▲につながった。この2回目の結果の方がチオ尿素の場合と転移温度 T_i, T_c も $\Delta\nu$ も殆ど一致した。

これらの結果は何を意味するのか。 $x=1$ の液晶の場合には、尿素がルーズにチオ尿素の中に混ざっていて、温度降下による体積縮小に伴い、たまたま不整合相の180度あたりで抜けて出て来たのではないかと推測する。

3) 結論

確かに液晶は育成出来たが、尿素のドープ量はせいぜい $x < 1$ で、その範囲で柔らかくなっている、それ以上だと液晶とはいえない。それで、相転移への影響は少ない。

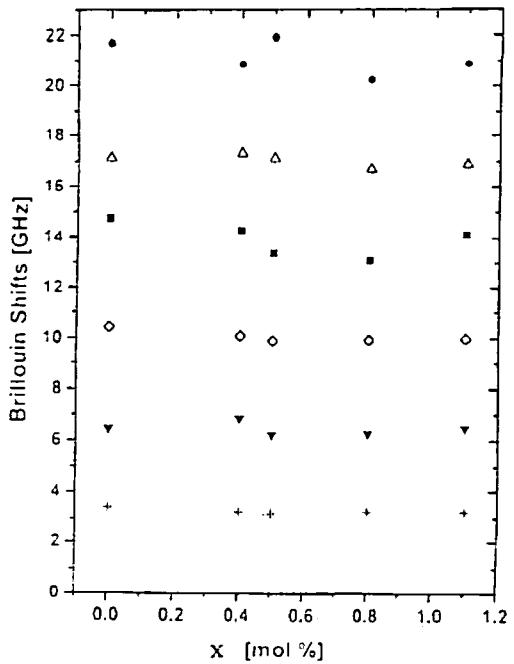


図3

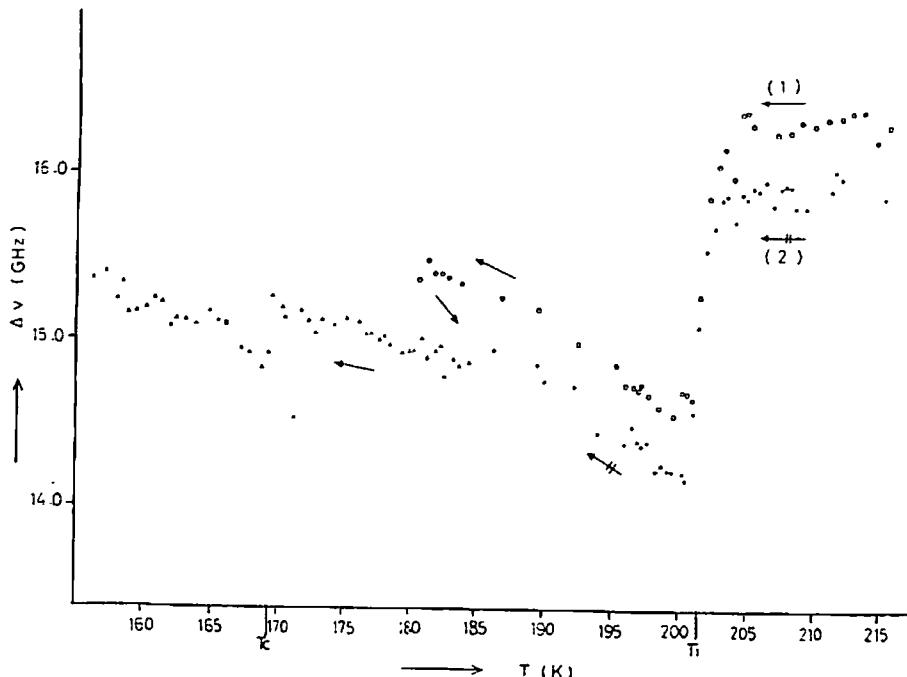


図4

C-1

3次元弾性表面波導波路のビーム伝搬解析

小柴 正則 齋藤 晋聖 (北大大学院・工学研究科)

1 はじめに

弾性表面波(SAW)のエネルギーを基板の深さ方向のみならず、伝搬方向に対して横方向にも閉じ込めたSAW導波路は、SAWデバイス用として単独で用いられるばかりでなく、光導波路と組み合わせた形でも頻繁に利用される。ここでは、伝搬方向に構造が緩やかに変化する導波路内のSAWの空間的な発展の様子を調べることが可能な有限要素法(FEM)に基づく3次元ビーム伝搬法(BPM)の開発を、筆者らの知る限り初めて行っている。

2 本文

任意形状の断面(xy面)をもつSAW導波路において、電位 ϕ と結合した粒子変位 $u = [u_x \ u_y \ u_z]^T$ (T は転置)に関する基本方程式は

$$\nabla_s \cdot ([c] \nabla_s u + [e]^T \nabla \phi) + \omega^2 \rho u = 0 \quad (1)$$

$$\nabla \cdot ([\epsilon] \nabla \phi - [e] \nabla_s u) = 0 \quad (2)$$

のように与えられる。ここに $[c]$, $[e]$, $[\epsilon]$ はそれぞれ弹性定数テンソル、圧電定数テンソル、誘電率テンソル、 ρ は媒質密度、 ω はSAWの角周波数であり、 ∇_s はAuldによって定義された演算子[1]である。式(1), (2)において、 z 方向の参考伝搬定数を β とし、緩慢変化包絡線近似を仮定して $u_x = \tilde{u}_x \exp(-j\beta z)$, $u_y = \tilde{u}_y \exp(-j\beta z)$, $u_z = \tilde{u}_z \exp(-j\beta z)$, $\phi = \tilde{\phi} \exp(-j\beta z)$ とおき、さらに弹性定数 c_{ij} 、圧電定数 e_{ij} 、誘電率 ϵ_{ij} の z 方向変化は十分緩やかであるとして $\partial c_{ij}/\partial z \approx 0$, $\partial e_{ij}/\partial z \approx 0$, $\partial \epsilon_{ij}/\partial z \approx 0$ とすると、ビーム伝搬解析の基本式が得られる。

ここで、この基本式の z に関する2階微分を無視し、導波路断面(xy面)を三角形アイソパラメトリック2次要素を用いて分割し、基本式にFEMを適用すると

$$([L] - 2j\beta[M]) \frac{d\{X\}}{dz} + ([\tilde{K}] - j\beta[L] - \beta^2[M])\{X\} = \{0\} \quad (3)$$

$$[\tilde{K}] = [K] + [K]_T \quad (4)$$

$$\{X\} = \begin{bmatrix} \{u_x\} \\ \{u_y\} \\ \{u_z\} \\ \{\phi\} \end{bmatrix} \quad (5)$$

を得る。ここに $\{u_x\}$, $\{u_y\}$, $\{u_z\}$ はそれぞれ、 x , y , z 方向の節点粒子変位ベクトル； $\{\phi\}$ は節点電位ベクト

ルであり、 $\{0\}$ は零ベクトルである。また、 $[K]$, $[L]$, $[M]$ は有限要素行列。 $[K]_T$ は透明境界条件(TBC)に関する行列である。

式(3)の z 方向に後退差分法を適用すると

$$[A]_i \{X\}_{i+1} = [B]_i \{X\}_i \quad (6)$$

$$[A]_i = ([L]_i - 2j\beta_i [M]_i) + \Delta z ([\tilde{K}]_i - j\beta_i [L]_i - \beta_i^2 [M]_i) \quad (7)$$

$$[B]_i = ([L]_i - 2j\beta_i [M]_i) \quad (8)$$

を得る。ここに Δz は伝搬方向の刻み幅であり、添字 i , $i+1$ はそれぞれ i 番目, $(i+1)$ 番目の伝搬ステップに関する量であることを表す。なお、参照伝搬定数 β_i は計算の各ステップごとに

$$\beta_i = \text{Re} \left[\frac{-jb_i + \sqrt{-b_i^2 + 4a_i c_i}}{2a_i} \right] \quad (9)$$

により更新される。ここで

$$a_i = \{X\}_i^\dagger [M]_i \{X\}_i \quad (10)$$

$$b_i = \{X\}_i^\dagger [L]_i \{X\}_i \quad (11)$$

$$c_i = \{X\}_i^\dagger [\tilde{K}]_i \{X\}_i \quad (12)$$

であり、 \dagger は複素共役転置を意味する。

3 適用事例

図1に示すような $\Delta v/v$ 導波路型のレイリー波収束器[2]におけるレイリー波の伝搬を考える。基板は $Y-Z$ LiNbO₃で、導波領域は厚さ $0.03\mu\text{m}$ の金薄膜によって構成されている。また、テーパ部の入口、出口の幅をそれぞれ $W_1 = 1.2\text{ mm}$ (SAW-IDTの開口長), $W_2 = 220\mu\text{m}$ 、長さを $L = 9.36\text{ mm}$ とし、動作周波数を $f = 54\text{ MHz}$ とする。

図2, 3に、それぞれ規格化音響パワー、規格化音響パワー密度を示す。ここで、幅 $W_1 = 1.2\text{ mm}$ の $\Delta v/v$ 導波路の基本モードをテーパに入射している。テーパ部では放射量は少ないが、テーパの出口付近で多くの放射が生じ、最終的におよそ27%のパワーが放射により失われていることがわかる。これらの結果は、実験結果[2]と比較的良く一致している。また、図4に深さ方向の粒子変位 u_y の伝搬波形を示す。導波路幅が狭くなるにつれてSAWが収束し、幅 $220\mu\text{m}$ の $\Delta v/v$ 導波路の基本モードに近づいていく様子が確認できる。

4 むすび

3次元 SAW 導波路解析のための FE-BPM の開発を行い、 $\Delta v/v$ 導波路型のレイリー波収束器の評価を行った。本手法と光導波路解析との組み合わせによる光・SAW 結合デバイスの評価は今後の課題である。

参考文献

- [1] B. A. Auld, *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, vol. MTT-17, pp. 800-811, Nov. 1969.
- [2] M. K. Roy, *IEEE Trans. Son. Ultrason.*, vol. SU-23, pp. 276-279, July 1976.

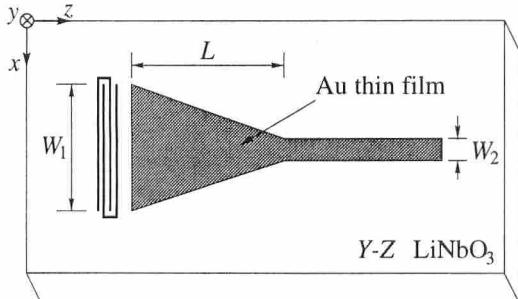


図1 $\Delta v/v$ 導波路型レイリー波収束器

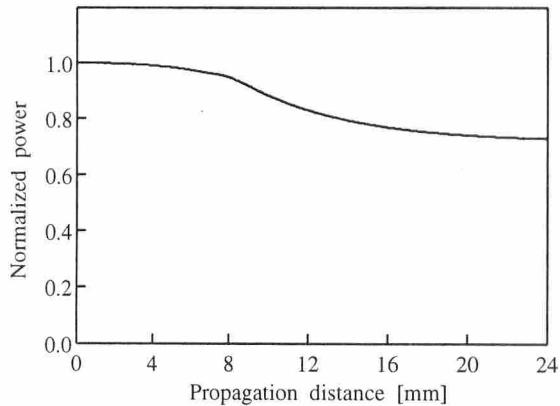


図2 規格化音響パワー

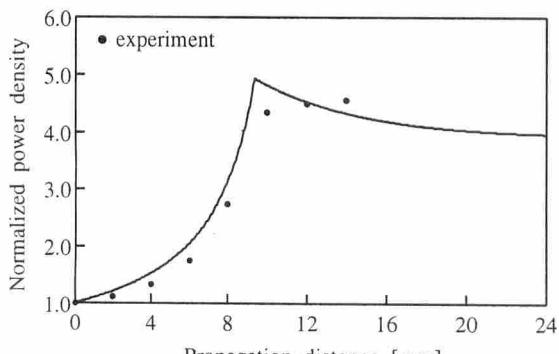


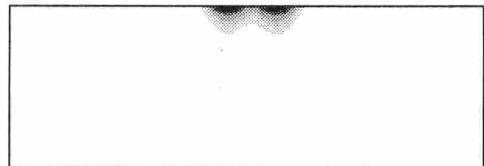
図3 規格化音響パワー密度



(a) $z = 0$ mm



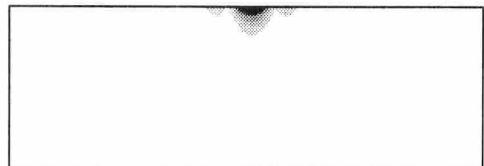
(b) $z = 3.12$ mm



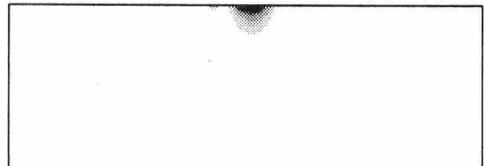
(c) $z = 6.24$ mm



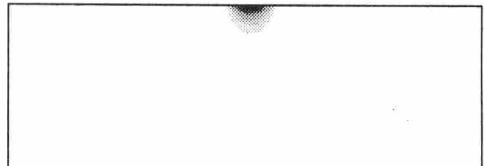
(d) $z = 9.36$ mm



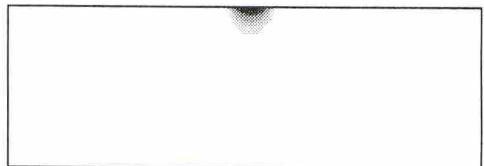
(e) $z = 12.48$ mm



(f) $z = 15.60$ mm



(g) $z = 18.96$ mm



(h) $z = 21.84$ mm

図4 伝搬波形 $|u_y|$

AlGaAs/LiNbO₃ 構造をもつ SAW 素子の光応答特性

青木裕介、須田隆也、洪哲雲、兼城千波、黄啓新、宝川幸司
(神奈川工科大学 ハイテクリサーチセンター)

1. はじめに

近年の移動体通信の発展により、高周波電子部品として利用されている弾性表面波 (surface acoustic wave; SAW) デバイスの果たす役割は大きい。これまで、半導体デバイスと結合した SAW デバイスの作製には、半導体の圧電性を利用して行われてきたが、半導体自身の電気機械結係数 (K^2) が小さいために、キャリアの生成に対して大きな伝搬効率を望むことはできなかった。ところが、ELO (epitaxial lift off) 技術により、半導体膜を K^2 の大きな弾性体材料と半導体材料を結合させることが可能になった^{1,2)}。これによって、各種機能素子の複合化及び応用が期待される。

本報告では、半導体素子と弾性体材料を結合させた SAW 素子の基本的特性を理解し、電荷移送や位相器への応用のために、オーミック/ショットキー接合を有する AlGaAs 薄膜を LiNbO₃-SAW 素子と結合させたデバイスを作製し、非線形特性及び光応答特性を調べた。

2. デバイス構造と基本特性

Table 1 にデバイスの電極構造をまとめる。SAW の弾性体材料としては YZ カット LiNbO₃ 基板を用いている。化合物半導体を用いる利点として、電子の移動度が大きいことや光エネルギーによりキャリアを生成することができる事が挙げられる。光によるキャリアの生成を効率よく行うために、ショットキー電極の設計パターンを $5 \mu\text{m}$ のすだれ状電極とした。こうした電極パターンでは光に曝される半導体の表面積が広いため、表面付近に生成されたキャリアは SAW で伝搬することができる。

Fig.1 にこのデバイスにおけるオーミックー/ショットキー電極間の電流-電圧特性を示す。

Table 1 デバイス構成

SAW YZ cut- LiNbO ₃	IDT 対数 波長 電極幅 交差幅	25 対 $20 \mu\text{m}$ シングル $5 \mu\text{m}$ $500 \mu\text{m}$
GaAs layer	ohmic	$N_d = 3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 40 nm
	Schottky	$N_d = 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 120 nm 電極幅 シングル $5 \mu\text{m}$ すだれ状電極
GaAs-SAW 結合	伝搬路	1 mm

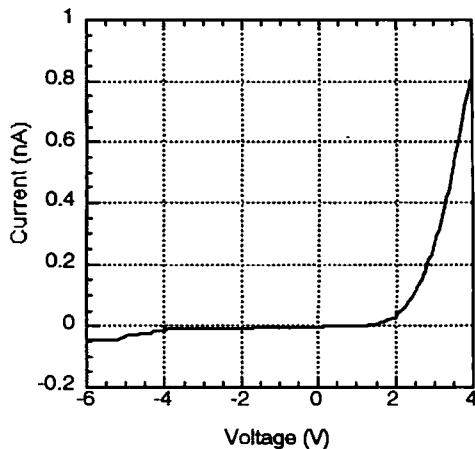


Fig.1 Ohmic-Schottky 間の電流-電圧特性

この図からもわかるように、このデバイスでは、ショットキー電極にかなりの順方向バイアスを印加しなければ、順方向電流は流れない。これは、活性層のみの整流特性から、活性領域の不純物密度が設計値よりも約2桁少ないキャリアの分布が予測され、活性層全域が空乏化によるものと考えられる。

本デバイスではキャリアの不活性化により、大きな効率は望めないものの、非線形効果を確認するために左右のIDT電極から弾性表面波を励起し、そのコンボリューション効果を確認し

た。Fig. 2に半導体電極からのコンボリューション出力波形を示す。弾性体と半導体との結合素子においてもキャリアの活性化をはければ、効率の良いコンポルバとしての機能デバイスの可能性がある。

3. 光応答特性

測定系をFig. 3に示す。ネットワークアナライザを用いて、中心周波数(158.1MHz)での振幅・位相変化をショットキーゲート電圧及び光強度に対してモニターした。光源として赤色LEDを用い、光电流を一定に保ったまま、試料と光源の距離を変えることにより、照射強度を変化させている。

光強度に対するSAWの振幅・位相変化をFig. 4及び5に示す。これらの結果から、光強度により、振幅損失は大きく、位相は遅れることがわかる。光によるキャリアの生成がSAWの伝搬特性に影響を与えていることがわかる。ところがゲート電圧に対しては、顕著な変化はみられない。これは、先に述べたように、活性層が全空乏しているために、バイアスをかけていても、ほとんどの電界が空乏層にかかってしまうために、バイアス電圧による伝搬特性の違いは見られないものと考えられる。

4. 結び

光応答特性特性は半導体内部の空乏化によらず、光照射によるキャリアの生成により、SAWの位相器としての動作が確認された。活性層が空乏化していなければ、ゲート電圧によるキャリアの制御も可能なため、デバイス構造の検討により、効率の良い位相器あるいは光信号処理回路としての応用が期待される。

謝辞

本研究の一部は「ハイテクリサーチセンター第三プロジェクト」の助成により行われたものである。

[参考文献]

- 1) K. Hohkawa, et al ; Jpn. J. Appl. Phys., **35** (1996) pp. 3015-3019
- 2) M. Rotter, et al ; Appl. Phys. Lett., **70** (1997) pp. 2097-2099

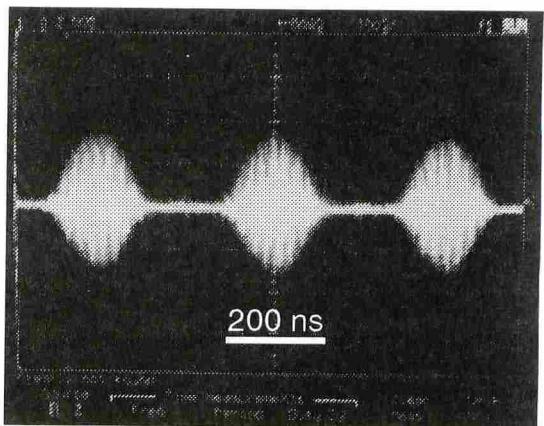


Fig.2 コンボリューション効果

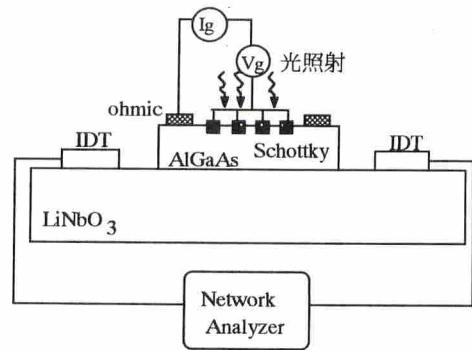


Fig.3 測定系

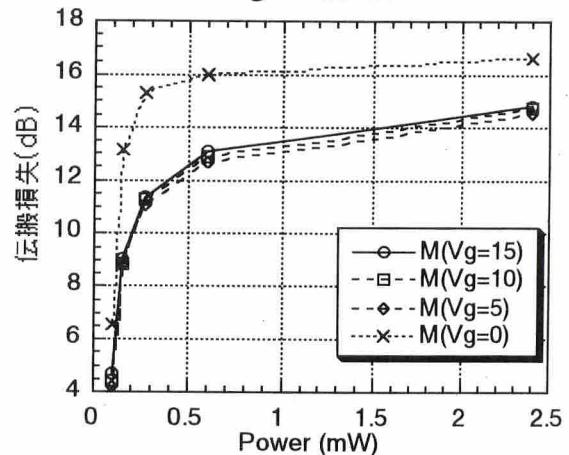


Fig.4 光応答による伝搬損失

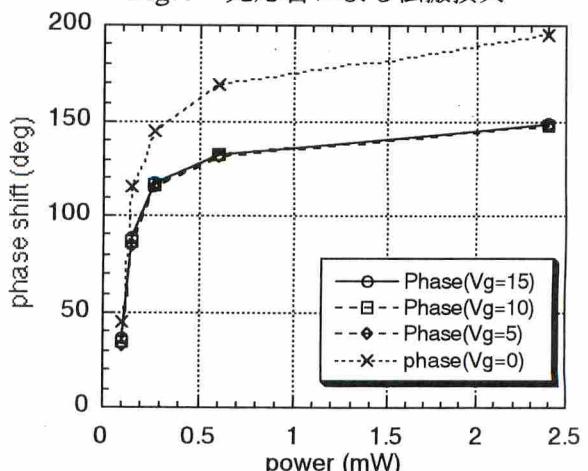


Fig.5 光応答による位相シフト

50° Y-25° X ランガサイト基板のモード結合パラメータの実験的解析

簡 春雲 豊後明裕 若林敬一 宇田 聰 (三菱マテリアル)

1. はじめに

パワーフロー角が 0° の基板は SAW デバイス設計上有利に働く。50° Y-25° X ランガサイト基板のパワーフロー角はほぼ 0° であることが著者らの実験によって確認されている[1]。ランガサイト基板のモード結合パラメータについて、振動法或は有限要素法を用いて解析的に求めた研究がいくつか発表されているが[2-3]、解析結果の精度は材料定数の測定精度に強く依存する。現段階で公表されている多くの材料定数はいずれも十分高い精度を有するとは言えないため、これらから得られた解析値は SAW デバイスの設計パラメータとして必ずしも十分な精度を持つとは言えない。また、モード結合パラメータの解析において、伝搬経路が無限長、伝搬幅が無限大という条件が課されているため、実際の有限サイズの SAW デバイスのエッジ効果は解析結果に反映されない。本稿では、より高い精度のモード結合パラメータを求める目的に、50° Y-25° X ランガサイト基板上に SAW フィルタを作製し、実験から基板のモード結合パラメータを求めたので、ここに報告する。

2. 実験

図 1 に示す 2 種類の電極パターンを用いて Split 電極と Single 電極構造のモード結合パラメータを実験的に求めた。電極周期が $14.4 \mu\text{m}$ 、電極交差幅が $792 \mu\text{m}$ 、アルミ電極膜厚が 2000 \AA である。図 1(a)中の Split 電極対数が 128、同

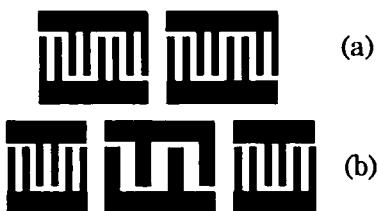


図 1 実験用電極パターン

表 1 モード結合パラメータの実験結果

IDT Type	η	$\kappa_{11} \cdot \lambda$	$ \kappa_{12} \cdot \lambda$	$2\phi(^{\circ})$	$(\zeta \cdot \lambda)^2 / (\omega Cs)$	C(pF)
Split	Exp.	0.45	0.02000	0	0	304.79
	Cal.	0.50	0.01051	0	0.00185	356.70
Single (NSPUDT)	Exp.	0.46	0.01335	0.00767	91.3	0.00263
	Cal.	0.50	0.00489	0.01290	103.1	0.00255

図(b)中では Single 電極の方向性(NSPUDT)を測定するため、両サイドに 32 対の Split 電極を設置した。中央の Single 電極の対数は 128 である。使用したランガサイトウェハは当社製 3 インチのものである。チップ上の電極パターンのメタライゼーション比が 0.45~0.46 である。パターン両サイドに吸音材を塗布し、マイクロプローブでチップ毎の特性を測定した。

3. 測定結果の解析

図 2 に示す等価回路を用いて実験結果を Fitting した。図中の SAW 部分の特性について

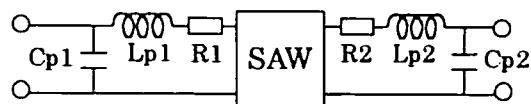


図 2 チップの等価回路

はモード結合理論を用いてシミュレーションを行った。Cp1~2 及び Lp1~2 はそれぞれバスバー、ワイヤなどによる浮遊容量と浮遊インダクタを表し、R1~2 は電極及びバスバー等の抵抗に相当する。Split 電極の場合、図 1(a)のチップで測定した S11、S12 と S22 のデータに Fitting を施しモード結合パラメータを求めた。Single 電極の場合、図 1(b)のチップで測定した正方向及び逆方向の S11、S12 と S22 のデータから同じ方法でモード結合パラメータを算出した。但し、後者の場合では、両サイドの Split 電極のパラメータは前者で求めたものを使用した。結果を表 1 にまとめる。表中、 η がメタライゼーション比である。Fitting 状況を図 3 に示す。実験値に対し、Fitting がうまくされている。Fitting 計算で得られた電極及びバスバー等の等価抵抗が 3Ω 程度で、浮遊容量と浮遊インダクタがそれぞれ 1pF と 1nH 以下である。

表 1 中、同時に有限要素法[4]で求めた解析結

果[5]を示している。変換係数 κ について、解析値と本実験値とがほぼ一致しているが、モード間結合係数 κ_{12} の絶対値と位相角 2ϕ 、静電容量 C については、解析値は実験値に比べ大きくなっている。特に、 κ_{11} については、解析値と実験値との差が倍以上もある。前述したように、解析値の精度は材料定数の精度に強く依存している。特に、 κ_{11} は自由表面音速の大きさに計算結果が大きく左右される。しかも、解析方法では有限サイズによるエッジ効果が考慮されていない。これらの理由で、解析値と実験値との間で大きな差ができたのではないかと考える。

4. むすび

$50^\circ Y - 25^\circ X$ ランガサイト基板における Split 電極と Single 電極構造のモード結合パラメータを実験的に解析し、比較的高精度のモード結合パラメータが得られた。

なお、方向性反転電極 TCS-RDT および EWD-RDT のモード結合パラメータについて当日報告する予定である。

参考文献

- [1] 簡 春雲、豊後明裕、山口邦生、篠原義典、宇田 聰：日本音響学会 平成 10 年度秋季研究発表会講演論文集 p.1189-1190
- [2] M. Takeuchi, T. Sakamoto, M. Tanaka: Jpn. J. Appl. Phys., 38(1999)p.3244-3247
- [3] K. Inagawa, K. Hasegawa, M. Koshiba: Jpn. J. Appl. Phys., 38(1999)p.3248-3253
- [4] 長谷川弘治、稻川清、小柴正則：信学論(C-I)、J82-C-I(1999) to be published.
- [5] 長谷川弘治：私信

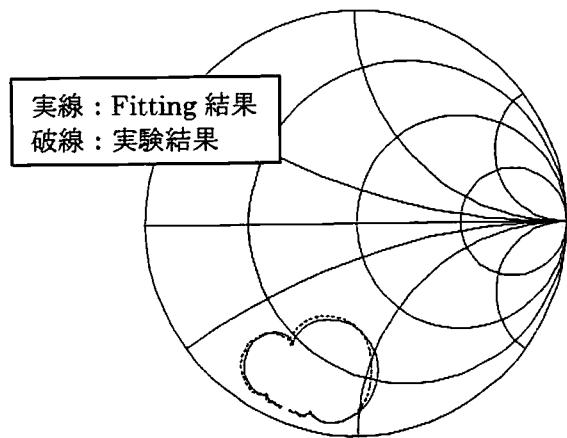


図 3(b) Single 電極(NSPUDT)側の反射係数(正方向)

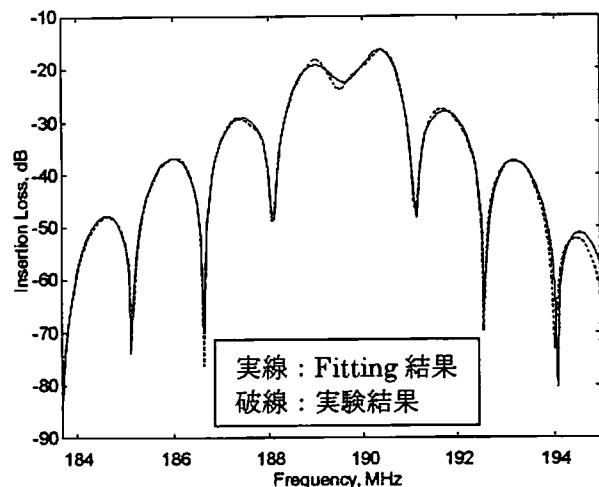


図 3(c) Single 電極(NSPUDT)の逆方向周波数特性

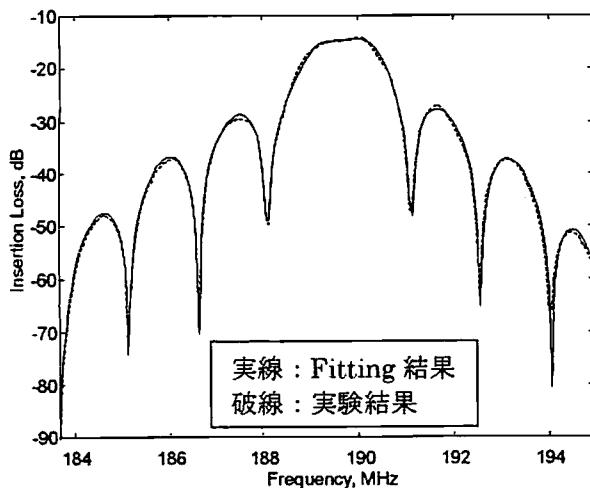


図 3(a) Single 電極(NSPUDT)の正方向周波数特性

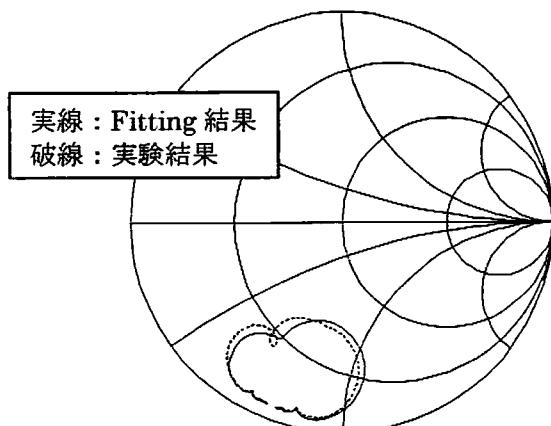


図 3(d) Single 電極(NSPUDT)側の反射係数(逆方向)

C-4

直線集束ビーム超音波顕微鏡による SAWデバイス用LiNbO₃, LiTaO₃単結晶基板の評価・選別

櫛引淳一 大橋雄二 小野雄 (東北大院・工)

1. まえがき

強誘電体であるLiNbO₃, LiTaO₃単結晶は、弹性表面波(SAW)デバイスとして利用されている。高性能なSAWデバイスの実現には、彈性的均質性の高い単結晶基板が要求される[1]。このため基板面内や基板間、結晶間のわずかな弹性特性の変化を捉え、結晶育成条件や基板加工プロセスにフィードバックできる極めて高い測定精度の材料解析・評価装置が求められている。そこで著者らは、直線集束ビーム(LFB)超音波顕微鏡[2]システムによる材料評価法を提案している。本システムは、水／試料境界を伝搬する漏洩弹性表面波(LSAW)の位相速度・伝搬減衰を、非破壊・非接触的に高精度に定量計測し、材料の特性を解析・評価するものである。最新のシステムでは、実用的応用を想定して開発を進め、多数のウェハ試料に対する高精度かつ効率的な測定を実現した[3]。さらに、ウェハのような薄い基板に対する精密測定においては、基板の裏面からの反射波の影響による測定値の見掛け上の変化が問題となるため、その影響の除去法を提案した[4, 5]。

本報では、最新のLFB超音波顕微鏡システムを用いて、SAWデバイス用の128°YX-LiNbO₃およびX-112°Y LiTaO₃の市販単結晶基板の評価・選別を行なう。

2. 測定システム

LFB超音波顕微鏡システムの測定原理は文献[2]に詳しい。基板面内、基板間、結晶間の系統的な弹性特性の変化の抽出を行うには、数多くの基板に対する測定を効率良く行う必要がある。そこで本システムには、恒温チャンバーが導入され、また、試料搬送装置、恒温純水給排水装置、および自動傾斜ステージを備え、安定化した温度環境を崩すことなく、高精度な測定を効率的に行うことができる。本システムによる一固定点におけるLSAW速度の測定再現性は、±0.0015%が達成されている[3]。

3. 評価・選別の手順

LFB超音波顕微鏡を市販のウェハのような薄い試料に適用する場合、試料厚さ h が(1)式を満足しないとき試料裏面反射波の影響により測定誤差が生じる場合がある。

$$h > V_r \cdot PW / 2 \quad (1)$$

ここで、 V_r は試料中の綫波音速、 PW は測定に用いるRFパルス幅である。200 MHz帯の測定において通常用いられているRFパルス幅は $PW=500$ nsである。ほとんどのSAWデバイス用ウェハは厚さ0.5 mm未満であり、裏面反射波の影響を考慮しなくてはならないと考えられる。

裏面反射波の測定値への影響の一例として、128°Y-cut LiNbO₃の(1)式を満足しない厚さ約0.5 mmの試料と、(1)式を満足する厚さ約3 mmの試料、それぞれに対してX軸伝搬のLSAW速度の周波数依存性を測定した結果をFig. 1に示す。裏面反射波の影響により点線の結果には見られなかった周期的な見掛け上の変化が実線の結果には見られる。正しい材料評価を行うために、裏面反射波の影響を考慮した適切な測定手順にしたがう必要がある。まず試料厚さを把握し裏面反射波の影響の有無を判断する。それにより、通常の測定手順で行なうか、文献[4]で提案されている裏面反射波の影響の除去法（パルス幅を狭める、試料裏面の粗面化、移動平均法）を用いるか判別する。移動平均法を用いる場合、通常測定時のパルス幅でLSAW速度の周波数依存性を測定し、その移動平均を行ない測定値を得る。測定点が多

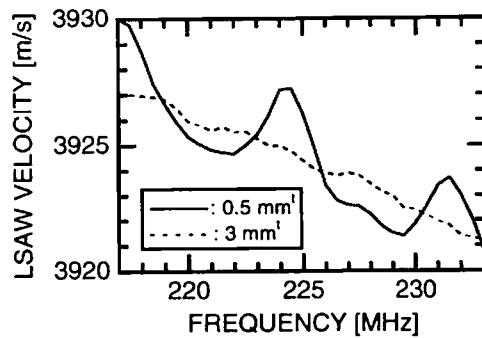


Fig. 1 Frequency dependences of LSAW velocity for 128°YX-LiNbO₃ substrates.

い場合は、さらに文献[5]に示される補正法を適用し効率的な測定を行う。上記のようにして得られた測定値に対して、標準試料を用いた絶対校正[6]を行なうことで最終的なLSAW速度の真値を得る。

4. SAWデバイス用単結晶基板の評価・選別

試料として、SAWデバイス用の3 inchの128°Y-cut LiNbO₃および4 inchのX-cut LiTaO₃の市販単結晶基板 ((株)山寿セラミックス製、1989年製造)を取り上げる。結晶はCzochralski(CZ)法により育成されており、1本の結晶を引き上げた後、減少した分の原料を坩堝に充填(チャージ)して、引き続き次の結晶を引き上げるという一連の工程が踏まれている。128°Y軸引き上げのLiNbO₃単結晶(長さ約115 mm)を4本、X軸引き上げのLiTaO₃単結晶(長さ約60 mm)を7本準備した。ウェハ試料は各結晶の上部、中部、下部より取り出しており、128°Y-cut LiNbO₃ウェハは上から5、55、105 mm、X-cut LiTaO₃ウェハは上から8、30、45 mmの各位位置のもので、厚さがそれぞれ約0.5 mm、約0.37 mmである。また、各ウェハの裏面は、LiNbO₃ウェハは#600、LiTaO₃ウェハは#180の研磨材で粗面化されている。

測定位置は、径方向の±20 mmの範囲を10 mm毎の5点とし、128°Y-cut LiNbO₃ウェハに対してはX軸伝搬、X-cut LiTaO₃ウェハに対しては112.2°Y軸伝搬のLSAW速度を測定した。ただし、RFパルス幅を500 nsとして測定した。いずれのウェハに対しても裏面反射波の影響が存在するので、3節の評価・選別の手順にしたがって、LSAW速度の周波数依存性に対し移動平均処理を施し[5]、さらに絶対校正[6]を行なったものを測定値とした。

Fig. 2に、X-112°Y LiTaO₃のチャージ回数1, 4, 7の結晶におけるウェハ面内分布の結果を示す。Charge 1の結晶の中部のウェハ面内において、2.53 m/s(0.077%)の比較的大きな分布が捉えられた。この変化は、ボーリング処理上の不備による影響を反映したものであることが考えられる[7]。その他の結晶のウェハにおいては面内の速度分布は最大0.41 m/s(0.012%)であった。128°YX-LiNbO₃基板においては、全てのウェハに対して面内の速度分布は0.35 m/s(0.009%)以内であった。

Fig. 3に、各ウェハ面上の5点のLSAW速度の平均値を求めた結果を示す。どちらの単結晶においても、各結晶内の上部から下部にかけて、また、チャージ回数が増すにつれて、LSAW速度が上昇する傾向があることがわかる。128°YX-LiNbO₃基板に対しては、各結晶の上部から下部ま

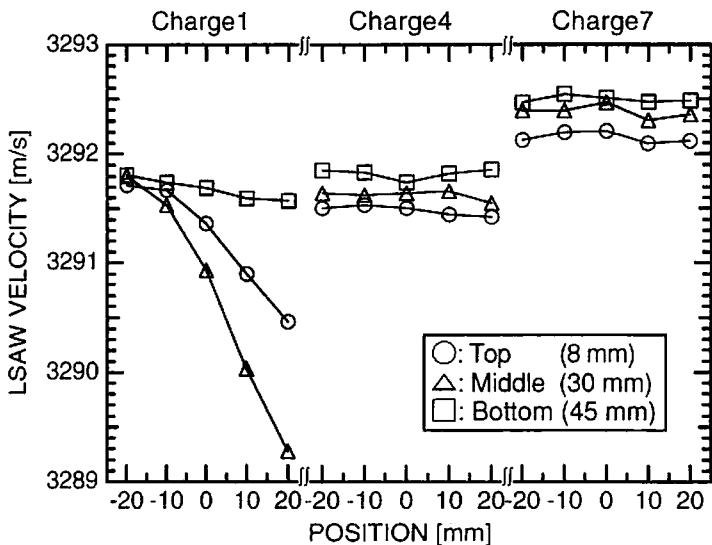


Fig. 2 Distributions of LSAW velocity for X-112°Y LiTaO₃ wafers.

でのLSAW速度上昇は0.44~0.81 m/s(0.011~0.021%)であり、全てのウェハ間の最大速度差は1.41 m/s(0.036%)である。X-112°Y LiTaO₃基板に対しては、Charge 1のウェハを除くと、各結晶の上部から下部までのLSAW速度上昇は0.04~0.34 m/s(0.001~0.010%)であり、ウェハ間で最大速度差は1.14 m/s(0.035%)であった。

Fig. 4は、各LiTaO₃単結晶の最上部と最下部のウェハに対して、示差熱分析(DTA)法により測定したキュリー温度と、Fig. 3に示した上部、下部の各ウェハ面内のLSAW速度の平均値とを対応させた結果である。LSAW速度とキュリー温度との間の比例関係が捉えられている。多少のばらつきがあるのは、LSAW速度の測定誤差が±0.1 m/sであるのに対し、キュリー温度の測定誤差が±1°Cと大きいためと考えられる。Fig. 4の実線は、○および●の結果に対する近似直線で、傾きは0.40 (m/s)/°Cであった。この結果から、Fig. 3に見られるLSAW速度の変化は、根本的には化学組成比の変化を反映したものであると考えられる。文献[8]における128°YX-LiNbO₃基板に対する化学組成比とLSAW速度の関係(0.0269 Li₂O-mol%/(m/s))を用いると、1.41 m/sのLSAW速度変化は0.038 Li₂O-mol%の分布に対応する。同様に、X-112°Y LiTaO₃基板に対しては、文献[9]とFig. 4の近似直線の傾きを用いて求めた、化学組成比とLSAW速度の間の関係(0.0658 Li₂O-mol%/(m/s))から、1.14 m/sのLSAW速度変化は0.075 Li₂O-mol%の分布に対応する。どちらの結晶に対しても、結晶の上部から下部にかけて、また、チャージ回数が増すにつれて、Li₂O濃度が高くなっていると考える。

今回取り上げた試料は今から約10年前に製造されたもので、当時で許容される結晶内あるいはウェハ面内のSAW速度のばらつきは、フィルタ用としては±0.1%以内、共振器用としては±0.04%以内である[1]。今回の測定結果からは、X-112°Y LiTaO₃のCharge 1の結晶を除いて、ウェハ面内、結晶内、結晶間、いずれにおいても0.04%未満のLSAW速度分布があるので、特に問題のない基板であると考えられる。一方、X-112°Y LiTaO₃のCharge 1の結晶においては、ポーリング操作時の問題に起因すると考えられる0.077%の比較的大きなLSAW速度分布が見られ、基板作製プロセスにおける問題点を検出した。

5. あとがき

最新のLSAW超音波顕微鏡システムを用いて、多数のウェハ試料に対する評価・選別のデモンストレーションを行った。本システムを市販のSAWデバイス用LiNbO₃, LiTaO₃単

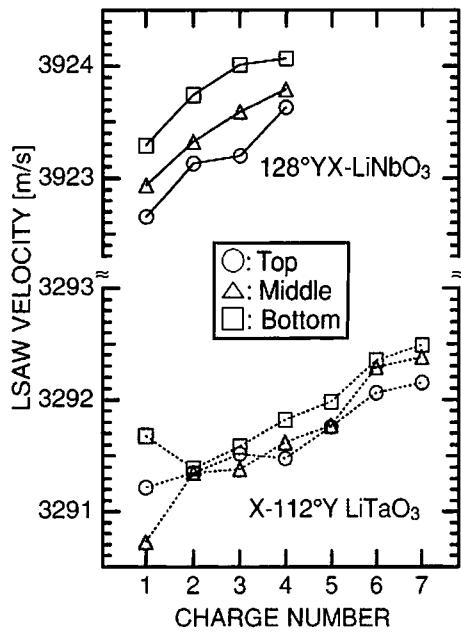


Fig. 3 Relationship between the charge number of crystal growth and averaged LSAW velocity for each wafer.

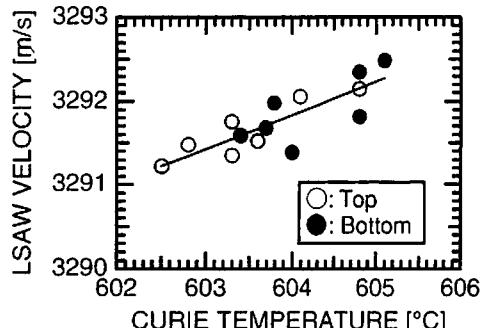


Fig. 4 Relationship between the curie temperatures and LSAW velocities for X-112°Y LiTaO₃. Solid line shows the approximated line.

結晶基板に対して適用した結果、結晶間、ウェハ間の系統的な弾性的変化を捉え、また、従来法では検出が困難な結晶内の不均一を高精度に検出した。本システムにより、ウェハの選別を行うだけでなく、基板間のわずかな弾性特性の違いを調べ、結晶育成条件にフィードバックすることにより、より均質な結晶の育成が可能になると見える。今後、本システムは様々な材料に対する有用な評価技術として、材料科学分野および産業分野において広く活用されることが多いに期待される。

謝辞 試料を提供し、キュリー温度の測定にご協力頂いた(株)山寿セラミックスの笠俣武治氏に感謝致します。本研究の一部は、文部省科学研究費補助金、日本学術振興会未来開拓学術研究推進事業研究プロジェクト「新圧電单結晶・薄膜材料の探索と次世代高精度情報システム用高機能弹性波デバイスの研究」、ならびに三菱財团研究助成金の援助による。

参考文献 [1] K. Yamada et al., IEEE Ultrason. Symp. Proc., 243 (1984). [2] J. Kushibiki et al., IEEE Trans. Sonics and Ultrason., SU-32, 189 (1985). [3] 柳引他, "SAWデバイス用LiNbO₃, LiTaO₃単結晶の超音波マイクロヘッカロビー," 電子情報通信学会論文誌(in press). [4] 柳引他, 信学技報, US98-21, 39 (1998). [5] 大橋他, 信学技報, US98-22, 47 (1998). [6] J. Kushibiki et al., IEEE Trans. UFFC, 45, 421 (1998). [7] J. Kushibiki et al., Appl. Phys. Lett., 58, 893 (1991). [8] J. Kushibiki et al., Appl. Phys. Lett., 58, 2622 (1991). [9] M. Sato et al., Jpn. J. Appl. Phys., 28, 111 (1989).

擬似ラーメモード水晶振動子

清水康敬、室田真男(東京工業大学)、
川島宏文、横山幸雄、久保田忠義(ピエデック技術研究所)

1 はじめに

ラーメモード水晶振動子について、中村ら^[1]は、(T,E)型d形式の圧電基本式と運動方程式から周波数方程式の一般解を導出している。また、川島らは、2軸回転ラーメモード圧電振動子のカット角依存性、周波数定数、周波数温度特性および水晶振動子の電気的諸特性を明らかにした^{[2][3]}。

しかし、中村と川島らによって導出された周波数方程式は、幅と長さ方向の弾性スチフネス定数の温度係数と膨張係数が異なるときには周波数温度特性の解析には適用できなかった。

そこで、本論文では、まず(S,E)型e形式の圧電基本式とエネルギー法によりY板の周波数方程式を導出した。そして、擬似ラーメモードの励振を可能とするカット角(ϕ_y/θ_y)との関係を求めた。

2 周波数方程式の導出

図1に、Y板のラーメモード水晶振動子とその座標系を示す。振動子の幅 $2z_0$ 、長さ $2x_0$ 、厚み $2y_0$ とする。IEEE表示では(YXlt)(ϕ_y/θ_y)で表される。励振電極は振動子の表裏面に設けられ、その寸法は $2ze, 2xe$ とする。

今、幅 $2z_0$ と長さ $2x_0$ が厚み $2y_0$ より十分大きいとすると、ラグランジュアン L は、 x, z 軸方向の変位 u, w を用いて、次式で与えられる。

$$L = \frac{1}{2} \left[\rho \int_{-z_0}^{z_0} \int_{-y_0}^{y_0} \int_{-x_0}^{x_0} \left\{ \left(\frac{\partial u}{\partial t} \right)^2 + \left(\frac{\partial w}{\partial t} \right)^2 \right\} dx dy dz - \int_{-z_0}^{z_0} \int_{-y_0}^{y_0} \int_{-x_0}^{x_0} (T_1 S_1 + T_3 S_3 + T_5 S_5) dx dy dz \right] \quad (1)$$

ここで、 ρ は材料の密度、 t は時間である。一方、境界条件は次式で示される。

$$T_1 = T_5 = 0 \quad (x = \pm z_0), \quad T_3 = T_5 = 0 \quad (z = \pm y_0) \quad (2)$$

次に、変位 u, w を次式で表す。

$$u = A_y \sin \xi_y^{(1)} \cos \xi_y^{(3)} z \cos \omega t \\ w = -A_y \cos \xi_y^{(1)} \sin \xi_y^{(3)} z \cos \omega t \quad (3)$$

ここで、 $A_y, \xi_y^{(1)}, \xi_y^{(3)}$ は定数で、 ω は角周波数である。式(2)と(3)の関係から、次式が得られる。

$$\xi_y^{(1)} = \frac{m_y \pi}{2x_0} \quad (m_y : \text{整数}), \quad \xi_y^{(3)} = \frac{n_y \pi}{2z_0} \quad (n_y : \text{整数}) \quad (4)$$

式(3)と式(4)を式(1)に代入し $\frac{\partial L}{\partial A_y} = 0$ の関係から

共振周波数 f は次式となる。

$$f = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{1}{2\rho}} \sqrt{c_{11} \left(\frac{m_y}{2x_0} \right)^2 - 2c_{13} \left(\frac{m_y}{2x_0} \right) \left(\frac{n_y}{2z_0} \right) + c_{33} \left(\frac{n_y}{2z_0} \right)^2} \quad (\because c_{13} = c_{31}) \quad (5)$$

ただし、ラーメモード水晶振動子は、幅($2z_0$)と長さ($2x_0$)の比が整数のときに実現できる。これを満足するには、次の関係が成立することが必要である。

$$c_{11} = c_{33} \quad (6)$$

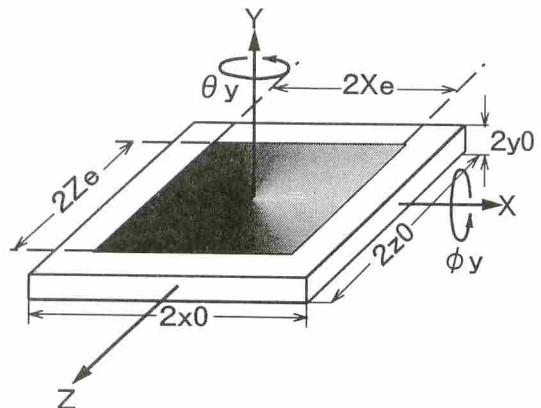


図1: Y板ラーメモード水晶振動子とその座標系

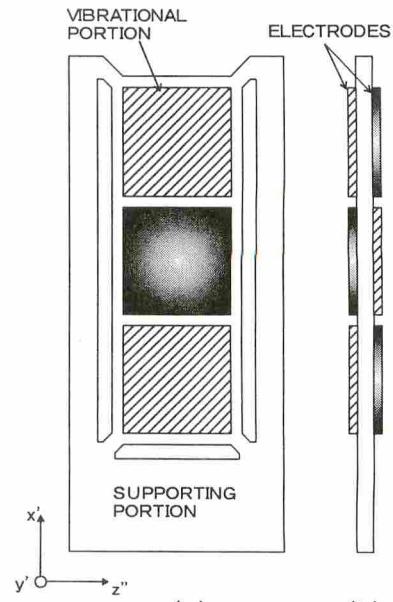


図2: エッティング法によって作製された長方形板の擬似ラーメモード水晶振動子(a)と励振電極構成(b)

3 振動子形状と励振電極構成

本論文では、エッチング法によって形成された水晶振動子で実験を行った。図2に、エッチング法によって形成された長方形板(幅 $2z_0$ =長さ $6x_0$)の擬似高次ラーメモード($m_y = 3, n_y = 1$)水晶振動子(a)と励振電極構成(b)を示す。

4 結果と検討

4.1 周波数温度係数

温度が変化しても純ラーメモード振動になるには、幅方向と長さ方向の膨張係数と弾性スチフネス定数の温度特性が等しくなることが必要である。水晶は $\theta_y = 45^\circ$ のとき、 $\phi_y = 0^\circ \sim 180^\circ$ で等しくなる。

図3は、Y板系純・擬似ラーメモード水晶振動子の1次温度係数が $\alpha = 0$ になるときのカット角 θ_y と ϕ_y との関係である。図4は、図3の条件のときの2次温度係数 β とカット角 θ_y との関係である。 θ_y が 45° から離れるにつれて β の絶対値は小さくなり、周波数温度特性が改善される。

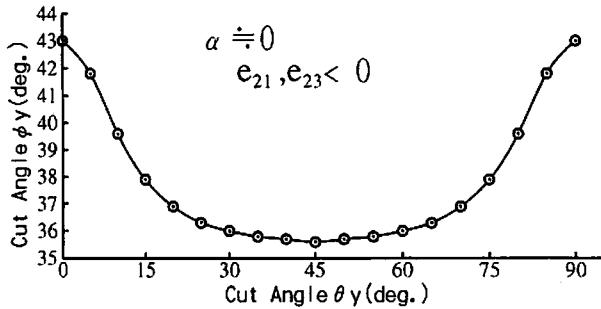


図3: Y板系純・擬似ラーメモード水晶振動子の $\alpha = 0$ になるときのカット角 θ_y とカット角 ϕ_y との関係

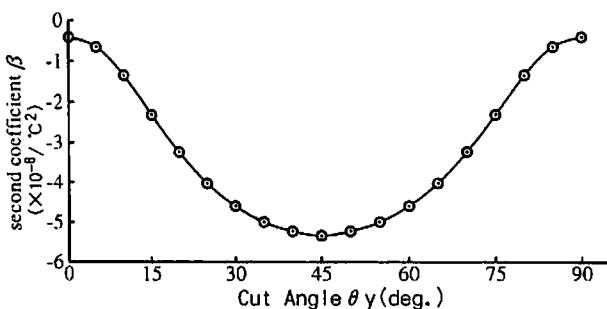


図4: 2次温度係数 β とカット角 θ_y との関係

4.2 周波数温度特性

図5は、長さ $2x_0 = 1.2mm$ 、厚み $2y_0 = 55\mu m$ 、 $Rxz = 3$ で、カット角 $\phi_y = 35.8^\circ$ (計算値と実験値)を有する長方形板($m_y = 3, n_y = 1$)純ラーメモード水晶振動子の周波数温度特性と、カット角 $\phi_y = 38^\circ, \theta_y = 75^\circ$ のときの周波数温度特性を示す。純ラーメモード水晶振動子のとき、2次温度係数は $\beta = -5.3 \times 10^{-8}/\text{°C}^2$ となる。一方、擬似ラーメモード水晶振動子の場合は $\beta = -2.3 \times 10^{-8}/\text{°C}^2$ (計算値)、 $\beta = -2.42 \times 10^{-8}/\text{°C}^2$ (実験値)となる。実験値の方が若干大きいが、擬似ラーメモードは周波数温度特性を改善されていることが分かる。

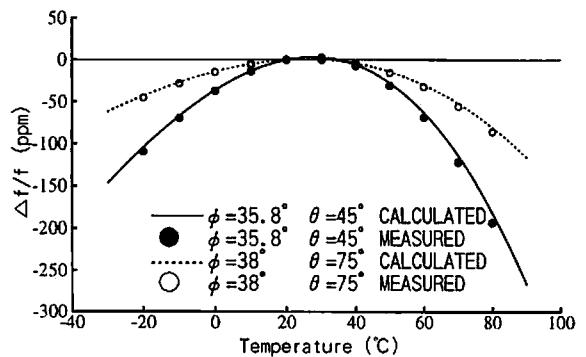


図5: ラーメモード水晶振動子の周波数温度特性

5 むすび

本論文では、擬似ラーメモード水晶振動子の励振条件及び周波数温度特性について検討を行った。その結果、Y板系の擬似ラーメモード水晶振動子は純ラーメモード水晶振動子より温度特性に優れることを示した。今後は擬似ラーメモード水晶振動子の支持部形状の最適化を図りたい。

参考文献

- [1] 中村信良, 熊坂克典：“LiNbO₃結晶を用いた Lamé モード圧電振動子”, 信学論(C-1), J78-C-1, No.11, pp.494-499, 1995.
- [2] 川島宏文, 松山勝：“2軸回転ラーメモード圧電振動子のエネルギー法による解析”, 信学論(A), Vol.J79-A, No.6, 1996.
- [3] 川島宏文, 横山幸雄, 久保田忠義：“擬似ラーメモード圧電振動子”, EMシンポジウム, pp.13-17, 1999.

SBSL 気泡内におけるアルゴン精留説に関する一検討

浅井 孝公、渡辺 好章（同志社大・工）

1. はじめに

我々はこれまで単泡性ソノルミネッセンス(SBSL)の、水中空気飽和度が音圧と発光強度の関係にどのように影響するかについて観測を続けてきた。これらの観測結果のうち、水中空気飽和度がある範囲においては、音圧と発光強度の間にヒステリシス的なループが観測された。本報告では、このようなループの存在は、1997年にD. Lohseらが提唱したアルゴン精留説¹⁾の実験的証拠と成り得るものと考え、検討を試みる。

なおアルゴン精留説とは、空気の溶けた水中的SBSL気泡内では、圧縮時の高温・高圧によって空気成分中のN₂とO₂は化学反応を起こし(約9,000°C以上で反応)、NO等となって水中へ溶け出すため、SBSL気泡内は化学反応しないAr(希ガス)で占められた気泡になっているという説である。

2. 実験方法

実験系をFig.1に示す。音源にはランジュバン型振動子を用い、これにアクリル製円筒容器を接着し、その中に25°Cの純水を高さ32mm程度入れた。水中の溶存空気量の測定には、これを直接測る機器が無いため、その代用として溶存酸素メータ(堀場製作所、OM-14)を用いて酸素量を測定した。また、実験中は水中の溶存空気量の増加をできるだけ防ぐために、OHPフィルムで水面にフタをした。

Fig.1の実験系において、無発光の気泡を最初にトラップしておき、各駆動電圧(音圧)における発光強度(PMTの出力)の定常値を駆動電圧を上昇方向に順に変化させて測定した。発光強度が約80mVに達したら、折り返し発光が消滅するまで駆動電圧を下降させ、同様に測定した。

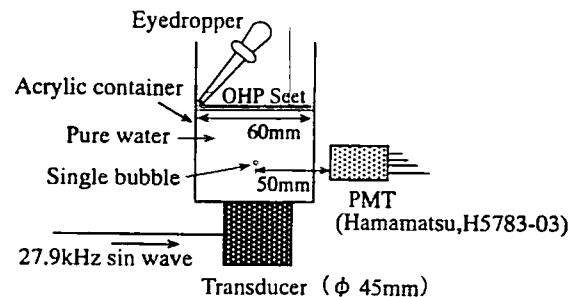


Fig.1 SBSL experimental system.

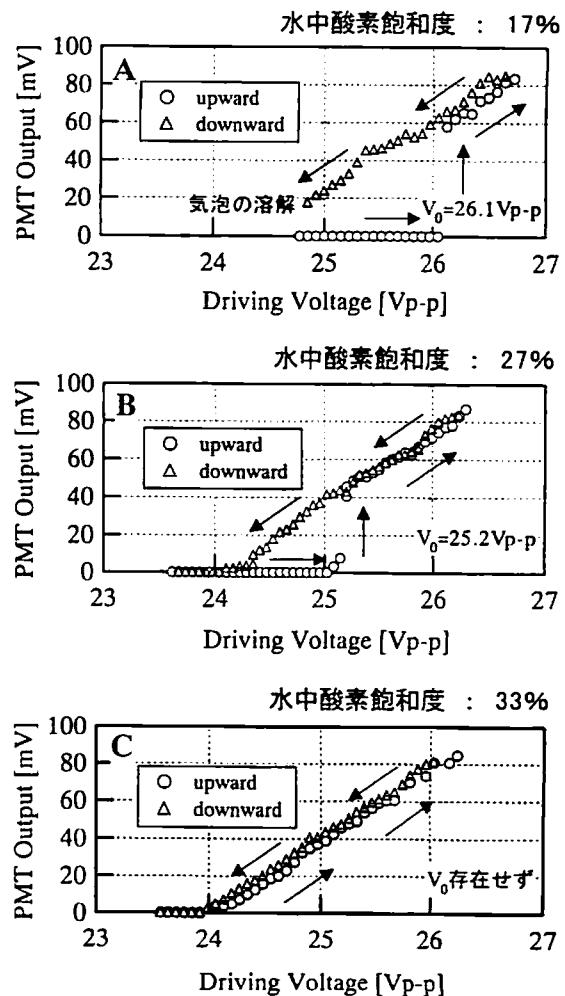


Fig.2 Hysteresis loop between sound pressure and SBSL intensity.

3. 実験結果

代表的な3種類の水中酸素飽和度における結果をFig.2に示す。(1回の実験に要した時間は約1分間なので、水中酸素飽和度はそれほど一定と考えてよい。) 水中酸素飽和度が約15~30%の領域(Fig.2-A,B)では、駆動電圧(音圧)と発光強度の間にヒステリシス的なループが生じた。このループの駆動電圧幅は、溶存酸素量の減少とともに広くなつた。また、駆動電圧を上昇方向に変化させた場合、ほとんどの測定点においては駆動電圧の変化に即応して発光強度の変化が観測されるのに對して、発光が始まった駆動電圧における発光強度は、自発的に緩やかに上昇し、やがて定常値に達する現象として観測された。この結果をFig.3に示す。この定常値は溶存酸素量の減少に伴つて大きくなる。

一方、飽和度が約30%以上の時(Fig.2-C)はループは生じなかつた。また、飽和度が約15%以下になると、無発光の気泡は気泡自体が水に溶けて消滅した。

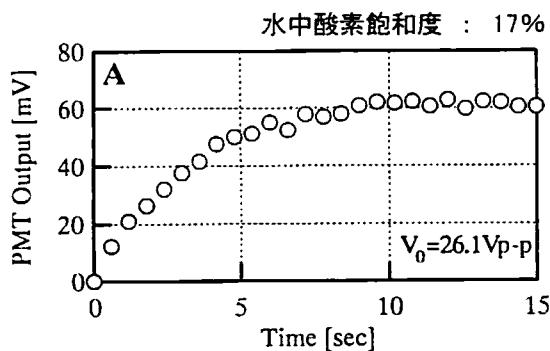


Fig.3 A spontaneous rise of SBSL intensity.

4. 検討

SBSLでは、発光強度は気泡内が高温になるほど強くなる。このことを踏まえて、ヒステリシス的なループが生じた理由を以下に検討する。

駆動電圧(音圧)を上昇させると、気泡内の到達最高温度も上昇し、ある駆動電圧 V_0 に達すると発光が始まるが、駆動電圧を V_0 で固定して超音波照射を続けると自発的な発光強度の上昇(Fig.3)が起こる。このときの音圧・水中酸素飽和度・水温は同一条件にも関わらず、発光強度が自発的に上昇するということは、気泡内の気体成分比が徐々に変化したためと考えられる。

ここでアルゴン精留説を適用すると、駆動電圧

V_0 で N_2 と O_2 が化学反応する温度に達したのをきっかけとして、気泡内が空気からアルゴンに徐々に変換されたと考えることができ、以下の2つの原因により発光強度の時間的な上昇が説明できる。

- ①空気よりもアルゴンの方が比熱が小さいため、同じように圧縮しても到達温度が高くなる。
- ②酸素と窒素の反応は吸熱反応であるから、この反応分子数が時間的に減少すると到達温度は上昇する。

発光強度の自発的上昇は、やがて気泡内外の気体の拡散平衡により定常に達する。こうして気泡内の大部分をアルゴンが占める気泡になった後は、駆動電圧(音圧)の増減に応じて気泡内最高到達温度も連続的に増減し、発光量も連続的に増減する。すなわち、ループを生じる原因是、気泡内が自発的に空気からアルゴンへ変換されることにあると考えられる。

では何故、水中酸素飽和度が増えるとループが生じなくなるのか、これについては次のように考えることができる。自発的な発光強度の上昇度は、それぞれの条件での化学反応が始まる音圧において、どれだけ気泡内成分がアルゴンに交換がされて、最高到達温度が上昇するかに依存している。つまり、溶存酸素量が少ないとときは、アルゴンへの変換度が高くなるため、自発的な上昇度が大きくなるのに対し、溶存酸素量が多い時は、膨張時に気泡内に流入してくる空気量が多いため、気泡内成分があまり変わらず、発光に必要な気泡内温度まで自発的に上昇しないのでループは生じないと考えられる。

5. まとめ

今回の実験で得たヒステリシス的なループの存在理由を、アルゴン精留説の考え方を用いて定性的に説明することができた。しかし、アルゴンの精留度が、水中の空気飽和度にどの程度依存するか等の定量的な検討については、未確定な部分も多い。今後は数値シミュレーション等を用いて、定量的な検討が必要と考える。

参考文献

- 1) D.Lohse *et al.*, Phys. Rev. Lett. 78, 1359 (1997)

増澤 信義 大平 悅三 井出 正男 (武藏工業大学)

1. はじめに

近年、赤ワイン中に多く含まれるポリフェノールが動脈硬化などの多くの病気を促す活性酸素に対する抗酸化作用を持ち、健康に良いということから注目されている。熟成が進み重合が進んだものほどその効果が高いとされているが、酒の製造過程や製造後に超音波を照射すると熟成が促進するので⁽¹⁾、本研究では超音波照射が赤ワイン中のポリフェノールなどのフェノール化合物に与える影響について実験的検討を行なった。

2. フェノール化合物の分析方法

低分子のフェノール化合物の分析には高速液体クロマトグラフィー (HPLC) を用いた分析が可能であるが、赤ワイン中のフェノール化合物は高分子化しているため、詳細な分析は困難であると考えられている。一方、ボルドー大学の Glories らは、分光光度計で測定した吸光度から赤ワイン中のフェノール化合物の状態を示すいくつかの簡便な指標を報告しており⁽²⁾、後藤らはこの方法を用いて測定した国産赤ワインのフェノール化合物指数について報告している⁽³⁾。本研究では後藤らにならって、Glories らの方法を用いて、フェノール化合物指数によって超音波照射の影響を求めることにし、以下の分析値 9 項目、指標 3 項目、計 12 項目についての検討を行なった。

(1) 吸光度 : A_{280} , A_{420} , A_{530} とそれから求めた A_{420}/A_{530}

(2) 色彩値 : L^* , a^* , b^*

(3) タンニン濃度 : フェノール化合物の総合型タンニン (フラボノイドポリマー) を重合度に関係なく、総アントシアノゲン (総プロアントシアニジン) として定量。

(4) アントシアൻ濃度 : フェノール化合物で

ある遊離アントシアニンと亜硫酸によつて脱色される結合型色素の一部が測定される。

- (5) HCl 指数 : 熟成の指標とされ、重合したフェノール化合物の割合を示す。
- (6) EtOH 指数 : ワインの滑らかさの指標とされ、多糖類、塩類と結合したフェノール化合物の割合を示す。
- (7) ゼラチン指数 : 渋みの指標とされ、ゼラチンを凝固させるタンニン (フェノール化合物) の割合を示す。

3. 実験装置

照射実験には、ステンレス板に PZT 超音波振動子 (共振周波数 30kHz、直径 35mm) を貼り付けたアクリル円筒製の水槽 (直径 60mm、高さ 100mm) を用いた。この水槽中に脱気純水を満たし、その中に赤ワインを 80ml 入れた蓋付きのガラス瓶 (直径 40mm、高さ 100mm、厚さ 2mm) を底面から 10mm まで沈めて照射を行なった。照射超音波量は超音波振動子に加える発振器の電気出力を調整して行なったが、予めワイン中での音圧分布を超音波マイクロホンで測定し、音圧値をパラメータとして実験を行なった。照射時間については正弦波超音波を共振周波数において 10 日間連続照射し、ワイン中のフェノール化合物の変化を非照射に対して比較した。

分光光度計には島津製作所製 W モノクロメータ UV-360 を使用した。

4. 分析結果および考察

Table 1 は、0 kPa (非照射)、1.8 kPa、5.8 kPa、10 kPa、20 kPa の超音波照射音圧 (中心軸上、ガラス瓶の底面より 5cm) に対する各項目の測定値、分析値、指標のそれぞれ平均値 (赤ワインはオージュ社、ボジョレー・ヌーヴォー 1998) である。

Table 1 Analytical values and indices

	No irrad.	1. 8kPa	5. 8kPa	10kPa	20kPa
A ₂₈₀	0.42	0.31	0.29	0.3	0.26
A ₄₂₀	0.35	0.35	0.33	0.35	0.29
A ₅₃₀	0.44	0.46	0.45	0.46	0.37
A ₅₃₀ /A ₄₂₀	1.26	1.31	1.35	1.3	1.26
L*	61.3	63.1	62	62.5	56.7
a*	34.6	34.5	32.2	34.8	34
b*	7.61	6.55	5.33	6.98	7.49
Tannin conc.	3.4	2.3	1.7	1.96	1.94
Anticyanogen conc.	0.86	4.38	3.5	2.62	2.63
EtOH Index	24.3	43	44.1	20.3	32.1
HCl Index	13.8	19	15.4	11.6	6.33
Gelatin Index	49.4	59.1	67.1	21.4	25.8

この表のうちの EtOH 指数、 HCl 指数、 ゼラチン指数をグラフにしたものを作成したものを Fig.1 から Fig.3 に示す。超音波照射によって明度 (L*) が高くなり、 5.8 kPa の場合は特に、 赤み (a*) 、 黄み (b*) が減少していることがわかる。 1.8 kPa, 5.8 kPa では HCl 指数が高く熟成が促進したことが示されている。また、 多糖類、 塩類と結合したフェノール化合物の割合も高く (EtOH 指数) 、 ゼラチンを凝固させるタンニンの割合が高い (ゼラチン指数) ことが分かる。これに対し、 10kPa, 20kPa では、 EtOH 指数、 HCl 指数、 ゼラチン指数が低い値を示し、 抑制傾向が明らかである。

これらのことから、 数 kPa までの低い音圧で超音波を照射するとフェノール化合物の重合が進むが、 10kPa 以上の音圧での超音波照射ではむしろ重合が抑制されることが示された。

5. むすび

赤ワインに超音波を照射し、 含まれているフェノール化合物がどのように変化するかを測定した結果、 フェノール化合物に種々の影響を与え、 熟成とともにフェノール化合物の重合を促進させることができた。しかし、 高い音圧では逆に重合を抑制することが分かった。

本研究を行なうにあたり、 化学分析に関してご教示いただいた本学永井正幸教授、 機器分析室の方々、 また、 卒研生宍戸正樹君、 高井智由君に感謝します。

参考文献

- (1) 島川正憲：強力超音波応用、日刊工業新聞社、pp138-

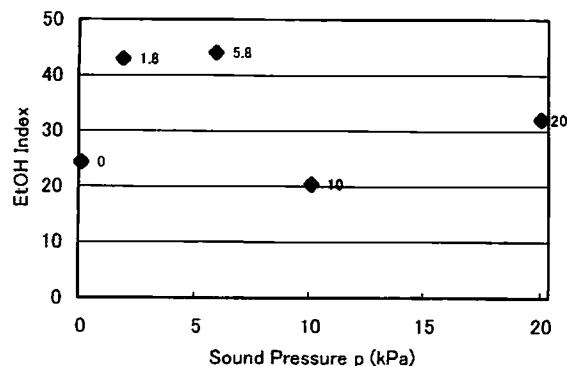


Fig.1 EtOH Index

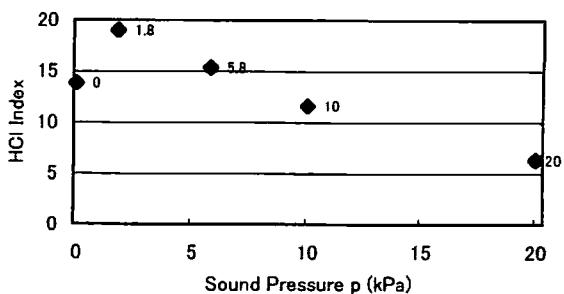


Fig.2 HCl Index

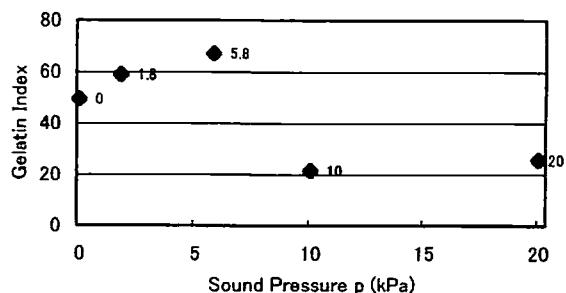


Fig.3 Gelatin Index

141 (1970)

(2) Y. Glories: Researches sur la matière colorant des vins rouges, These doctrat ès sciences, p65, Université de Brdeaux II (1978)

(3) 後藤奈美、安井孝、戸塚昭：国産赤ワインのフェノール化合物指標、醸造協会誌 Vol. 89 No. 12, pp. 989-995 (1994)

PA-3

水の超音波光触媒反応 —粉末光触媒添加および電解質添加による 超音波化学反応への影響—

原田久志 (明星大理工・明星大先端研)

1. はじめに

これまでに、酸化チタン粉末を純水に懸濁させ、光照射すると同時に超音波照射を行うことにより、水を水素と酸素にほぼ化学量論比となるように分解することができた[1]。この反応は、超音波照射により水を水素と過酸化水素にし[2]、同時に過酸化水素から光触媒反応で酸素が得られたものである。つまり二種の反応を同時に（連続的に）進行させることにより結果的に水を水素と酸素に分解できたのである。しかしこの反応は、純水に光触媒である不溶性粉末を添加することになり、超音波化学反応の反応性が低下する恐れがある。また粉末由来の水溶性無機不純物（塩素イオンなど）が反応に影響することが考えられる。そこで今回、それらの添加物の影響について検討することにした。

2. 実験方法

反応容器には 200 ~ 300 ml の変形ナス型フラスコを用い、下方より 200W, 200kHz の超音波振動子(カイジョー)により超音波照射した。光照射には 500W クセノンランプ (Ushio) を用い側方から行った。

添加する光応答半導体粉末（光触媒）としては二酸化チタン (TiO₂ 各種市販試薬) を特に前処理することなく用いた。添加する電解質は、二酸化チタンによく

含まれている塩化物とし、主として塩化ナトリウムを添加した。またその他の電解質も添加した。

反応温度は 5 ~ 35 °C とし反応容器並びに超音波振動子を光透過性のバイレック製恒温水槽に浸すことにより温度制御した。反応に先立ち反応溶液並びに反応容器内にアルゴンガスを導入し、アルゴン雰囲気で反応を行った。

反応によって発生した水素および酸素はガスクロマトグラフィーにて分離・定量した。また過酸化水素は過酸化水素定量用硫酸チタン（ナカライトスク）を用いる吸光光度法 (407nm) で定量した。

3. 結果および考察

表に超音波照射並びに超音波光触媒反応における生成物を示す。両方に共通する水素の発生速度を見ると、光触媒系の反応性がやや低くみえるが大差ないことが分かる。しかし、用いる光触媒粉末により結果も変わってくる。

光触媒粉末として A 社と F 社の二酸化チタン粉末を用いた場合の純水からの気體発生の様子を図に示す。ここで注目すべき点として F の場合、水素/酸素の生成比がかなりはずれていることと、水素生成速度が A に比べて低いことがあげられる。前者については後述するとして、後者については超音波化学反応が阻害されていることが予想される。

Sonophotocatalytic decompositon of water: H. Harada, *Meisei University*

Table Sonophotocatalytic or sonochemical reaction products from water at 35 ° C

	Products / $\mu \text{ mol} \cdot 2\text{h}^{-1}$		
	H ₂	H ₂ O ₂	O ₂
Sonochemical	76	70	7
Sonophotocatalytic	71	2	27
-----	-----	-----	-----
Sonochemical *	70	49	6
Sonophotocatalytic*	59	8	22

* Addition of NaCl(4%)

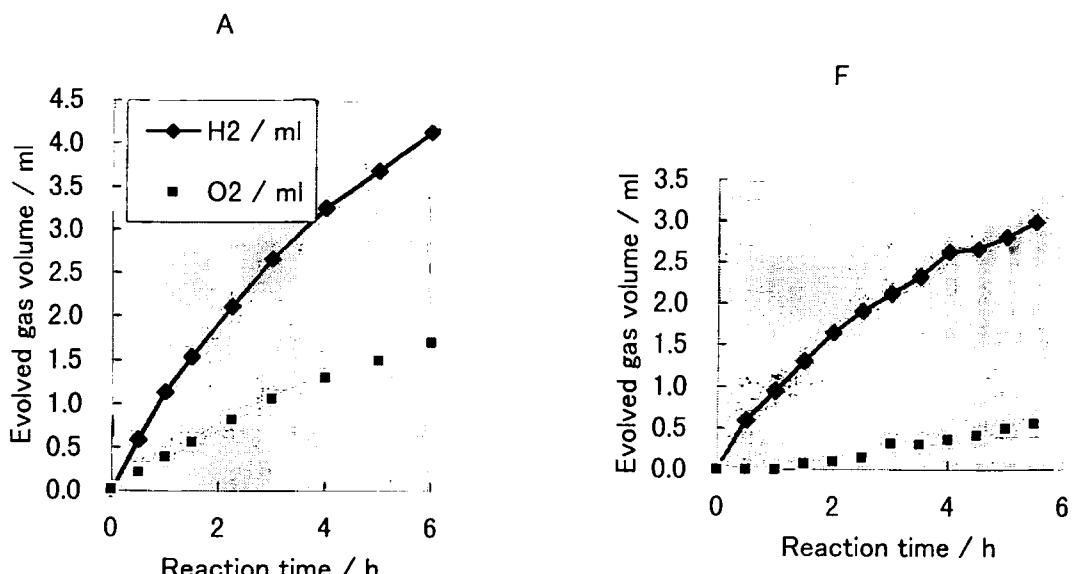


Fig. Time dependences of sonophotocatalytic reaction products from water.

その阻害の原因についてこれまでに検討の結果、A に比べて F はかなり粒径が小さく（比表面積で A が 1.9m²/g であるのに対して F は 48.7m²/g）、同質量であれば F の方が粒子数が多く超音波作用に影響がより大きくてしたものと思われる。また水素／酸素比の食い違いについては、F の方がやはり吸着表面積が大きく、超音波化学反応で生成した過

酸化水素が表面吸着したのではないかと考えられる。

表には、食塩添加の影響についても検討結果を示した。これは、海水の超音波光触媒分解を視野に入れての検討である。水の超音波化学反応では、塩化物の添加により過酸化水素発生が阻害されるとされているが、その様な結果になっている。

[1]原田久志、電化第 62 回大会、1K26(1998).

[2]S.V.レイ, C.M.R.ロー, "超音波有機合成", p.33, シュプリングラー・フェアラーク東京 (1991).

斎藤繁実（東海大・海洋）

まえがき 透過型超音波顕微鏡において、非線形第2高調波を利用すると基本波成分の場合とは質的に異なる画像が得られる。^{1,2)} そのような差異の原因を理解するため、固体薄板を透過した集束ガウス・ビームを凹面で受波したときの基本波、第2高調波成分を理論的、実験的に調べる。

固体板の透過 音圧分布が $p_0 \exp(-\xi_0 r^2)$ と重み付けされた焦点距離 D のガウス音源が、密度 ρ 、音速 c 、非線形係数 β の水中の $z=0$ に置かれ、 z 軸方向に角周波数 ω の音波を放射している。厚さ W 、密度 ρ_p 、縦波音速 c_d 、横波音速 c_s の固体板を、音源からの距離 $z_1 < z < z_0$ ($z_0 - z_1 = W$) に、音軸に垂直に挿入する。固体板での非線形性は無視し、固体板を透過した後の非線形伝搬を考慮すると、固体板後方の音場は次のように求められる。³⁾

$$p_1 = j \frac{h(z_1)p_{10}}{\Xi k} \int_0^k T_1(s) \exp[-j \frac{h(z-W)s^2}{2\Xi k}] J_0(rs) s ds, \quad (1)$$

$$p_2 = j \frac{h(z_1)p_{20}}{2\Xi k} \int_0^{2k} T_2(s) \exp[-j \frac{h(z-W)s^2}{4\Xi k}] J_0(rs) s ds - \frac{2\beta[h(z_1)]^2 p_{10}^2}{\pi \rho c^2 \Xi^2} \int_0^k \int_0^k \int_0^\pi \frac{T_1(s_1)T_1(s_2)}{s_1^2 + s_2^2 + 2s_1 s_2 \cos\phi} \exp[\frac{s_1^2 + s_2^2}{2}(jW - \frac{1}{\Xi})] \\ \{\exp(-j \frac{s_1^2 + s_2^2}{2k} z) - \exp[-j \frac{s_1^2 + s_2^2}{4k} (z+z_0) + j \frac{s_1 s_2 \cos\phi}{2k} (z-z_0)]\} J_0(r \sqrt{s_1^2 + s_2^2 - 2s_1 s_2 \cos\phi}) s_1 s_2 d\phi ds_1 ds_2. \quad (2)$$

ただし、 $h(z) = 2\xi_0 z - jk(1-z/D)$ 、 $\Xi = 2\xi_0 + jk/D$ 、 $k = \omega/c$ である。記号 $p_{10} = jkp_0/h(z_1)$ 、 $p_{20} = j\beta k^3 p_0^2 / [2\rho c^2 \Xi h(z_1)] [\log|h(z_1)/k| + j\{\pi/2 + \tan^{-1}[k/(2\xi_0)(1/D - 1/z_1)]\}]$ は入射面でのビームの中心の基本波、第2高調波の複素振幅を表す。入射角 $\sin^{-1}[s/(nk)]$ の n 次高調波平面波に対する音圧透過係数 $T_n(s)$ は文献4)に与えられている。 a 、 d を開口半径、曲率半径とする凹面で受波される信号は、凹面上で音圧を面積分して求められる。周波数 1.9 MHz、焦点距離 85 mm の集束ガウス音源を用いて実験を行なった。Fig.1 は、 $z_0 = D$ に置いた石英ガラスの厚さ W を変えたとき、音源と共に焦点に置いた $a = 20$ mm、 $d = 42$ mm の凹面受波器で受波される信号 P_n の変化を計算した結果を示す。板を挿入しないときの振幅で規格化してある。 P_{21} は板より前で発生した成分で、2倍周波数を用いた線形映像を構成するのと同一の信号である。図の 2 点 (a) $W = 1.43$ mm と (b) $W = 1.53$ mm で、特異な現象が見られる。(a) では P_{21} は大きいが、板を透過した後で発生する第2高調波がそれを相殺して P_2 は小さい。この条件では板は、線形映像で明るく見えるが、非線形映像では暗く見える。一方 (b) では、基本波の透過が大きく、板の後方で第2高調波が強く発生するため P_{21} は小さいが P_2 は大きい。よって、倍周波数線形映像で暗く見える板が非線形映像では明るく見える。図の 3 例の実験結果 (●、○印) は計算とほぼ一致し、本

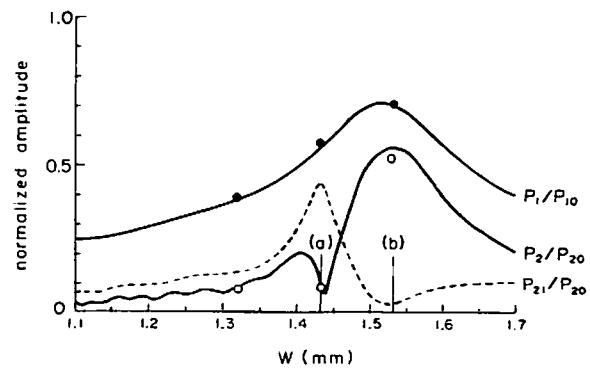


Fig.1. Dependence of harmonic amplitudes detected with concave receiver on the SiO_2 plate thickness.

推定の傍証となる。このような現象が、文献1)の非線形映像の質的な差異の原因と思われる。

固体板エッジの回折 集束ガウス・ビームの一部を阻止するように、固体薄板を途中まで挿入する。 $x < H$ の半平面に板が置かれ、 $x \geq H$ では音波が自由に通過する。音波の透過係数を $x < H$ で $T_n = 2\mu c_p c_d \exp(-jnkw)/[2\mu c_p c_d \cos nk_d W - j(\mu_p^2 c_d^2 + \mu^2 c^2) \sin nk_d W]$ (ただし $k_d = \omega/c_d$)、 $x \geq H$ で 1 とし、 z_1 におけるガウス分布係数を薄板通過前の分布係数と同じと近似して、 $z_1 < z < z_0$ での伝搬の非線形も無視する。剛体板による回折音場の式⁶⁾を変形して、 $z = z_0 + z_R$ に置いた凹面上で面積分すると

$$P_1 = -j \frac{\sqrt{\pi} k p_{10} e^{\frac{\pi}{4}}}{\sqrt{2\zeta(z_R)} \kappa(z_R)} \int_a^a \{(1-T_1) S_1(x, z_R, H) + (1+j) T_1 \exp[-\frac{\xi k x^2}{\kappa(z_R)}]\} \exp(-j \frac{k x^2}{2d}) dx, \quad (3)$$

$$P_2 = -j \frac{\sqrt{\pi} k p_{20} e^{\frac{\pi}{4}}}{2\sqrt{\zeta(z_R)} \kappa(z_R)} \int_a^a \{(1-T_2) S_2(x, z_R, H) + (1+j) T_2 \exp[-\frac{2\xi k x^2}{\kappa(z_R)}]\} \exp(-j \frac{k x^2}{d}) dx + j \frac{3\sqrt{\pi} k^3 e^{\frac{\pi}{4}} p_{10}}{8\mu c^2 \sqrt{\kappa(z_R)} \zeta(z_R)} \times \\ \int_0^{z_R} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\text{sgn}(v_2) F(|v_2|) - \text{sgn}(v_1) F(|v_1|)}{\sqrt{\kappa(z)}^3 \sqrt{1-(z_R-z)/d}} \{(1-T_1) S_1(x, z, H) + (1+j) T_1 \exp[-\frac{\xi k x^2}{\kappa(z)}]\}^2 \exp(j \frac{k x^2}{d-z_R+z}) dx dz \quad (4)$$

を得る。ただし、 $\xi = -jk/(2z_1)[1+jk/h(z_1)]$ 、 $\kappa(z) = k + j2\xi z$ 、 $v_n = \sqrt{2k/\pi[1/(z_R-z)-1/d]}[(2n-3)a-xd/(d-z_R+z)]$ 、 $\zeta(z) = \xi k/\kappa(z) + jk/(2d)$ である。また、 $S_n(x, y, H) = j \exp(j\pi a_n^2/2) \int_{b_n}^0 \exp[-\pi a_n u - j\mu^2/2 - \xi n k x^2 / \kappa(z)] du + \exp[-\xi n k x^2 / \kappa(z)] [(1+j)/2 - \text{sgn}(a_n) F(|a_n|)]$ 、 $a_n = \text{Re}(u_n)$ 、 $b_n = \text{Im}(u_n)$ 、 $u_n(z) = \sqrt{n\kappa(z)/(\pi z)}[H - kx/\kappa(z)]$ であり、 $F(\cdot)$ はフレネル積分である。前節と同じガウス・ビームで実験を行なった。Fig. 2 の上段は、 $z_0 = D$ に挿入した 3 種類の厚さのポリスチレン板の直線状エッジを軸に垂直に動かしたとき、音源と共に焦点の凹面受波器の出力変化を観測した結果を示す。エッジが音軸に近づくと基本波は単調な極小を示すが、第 2 高調波はより複雑に変化する。同じ板厚を想定した下段の解析解は、透過係数等の近似のため、実験との一致は良くないが、同じ傾向を示す。このような P_1 、 P_2 の変化の差異が文献2)における映像の質的差異（非線形映像では生体細胞の輪郭が明確でない）の原因と思われる。

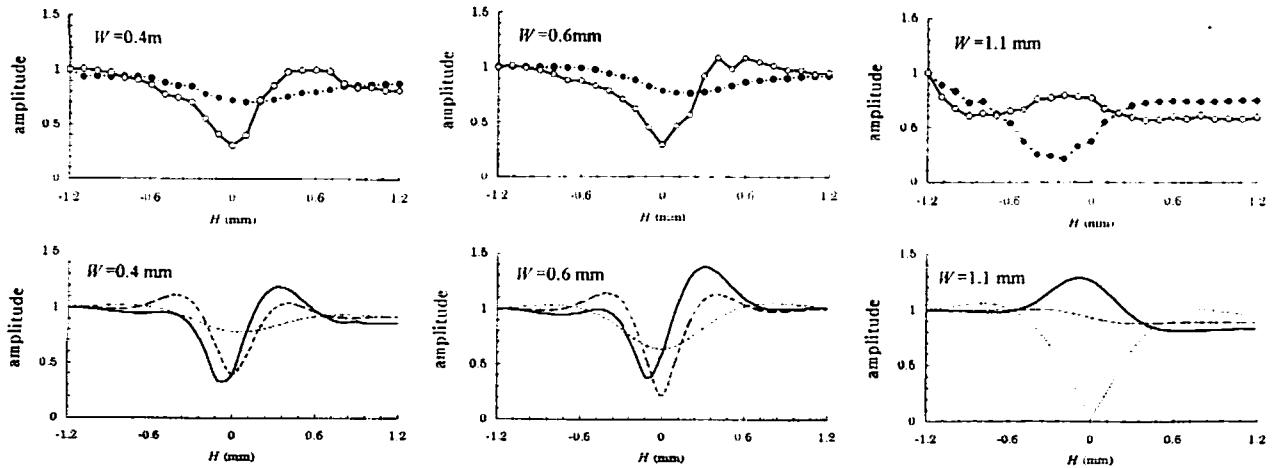


Fig.2 Change in harmonic amplitudes in accordance with change of H (…… and ●, P_1 ; — and ○, P_2 ; P_{21}).

あとがき 固体板を透過する集束ガウス・ビームの基本波、第 2 高調波の音場を調べ、超音波顕微鏡の線形、非線形映像の差異について考察した。振幅より、位相の効果が大きいと思われる。

文献 1) H. K. Wickramasinghe and C. Yeack: J. A. P., **48**, 4951(1977). 2) R. A. Lemons and C. F. Quate: Physical Acoustics XIV, 78-80(1979). 3) S. Saito: J. A. S. J. (E), **18**, 37(1997). 4) T. D. K. Ngoc and W. G. Mayer: IEEE Trans. Sonics Ultrason., **SU-27**, 229(1980). 5) S. Saito and J. S. Kim: J. J. A. P., **38**, 3085(1999).

PA-5

超音波を利用した膜水処理プロセス

長岡技術科学大学工

○小林高臣、小林毅、藤井信行

1. はじめに

年々、深刻となる地球環境汚染の観点から水環境保全に対する社会的要請の高まりが益々多くなり、更に高度化された水処理技術の確立が要求されている。このような背景から、この分野での膜技術の発展は近年、めざましいものがある。しかし、濾過物による膜特性の経時的な低下は、膜濾過プロセスで問題になっている。これは、膜によりその透過が阻止される溶質が、膜表面に堆積し、これによって、膜の持つ処理能力が低減させられるためである。我々は、この問題を解決するためには、超音波処理を併用した膜濾過の研究をこれまで行ってきた^{1,2)}。本研究では、ポリスルホン(PS)限外濾過膜を用いてペプトン水溶液を処理する際に超音波の効果を検討した結果について述べる。

2. 実験

Fig. 1 に超音波処理の効果を調べるためにクロスフロー濾過実験の装置図を示す。超音波-膜濾過処理の実験には、PS膜(分画分子量 1×10^4 、 $8 \times 12 \text{ cm}^2$ 、膜厚 $70 \mu\text{m}$ 、ミリポアーミニタンSS)内にPS膜を装着し、この濾過セルをステンレス製水浴槽($30 \times 24 \times 16 \text{ cm}^3$)に浸した。

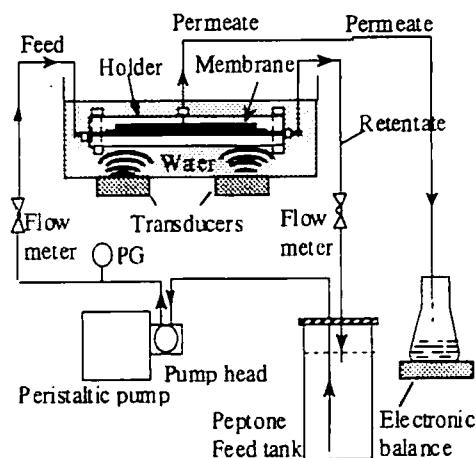


Fig.1 Schematic diagram of the cross-flow experimental setup for ultrasound effect on membrane permeability. PG was pressure gauge. Feed tank contained 1500 mL of peptone aqueous solution.

超音波発振素子(共振周波数: 28, 45, 100 kHz; 本多電子)を浴槽の底に貼り付け、それぞれの周波数の超音波を照射しながら濾過実験を行った。発振器は、W115(本多電子)を用いた。PS膜による水処理実験は、0.5から6 wt%濃度のペプトン(分子量3200)水溶液を合成排水とし、操作圧を30 kPa、原料溶液の供給流量は325 mL/minで膜セルに供給するクロスフロー濾過で行った。また、この条件で水の体積流束は $1.8 \times 10^{-5} (\text{m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{s})$ であった。それぞれの周波数の超音波強度、 P (W/cm²) は、文献^{3,4)}に従い次式より評価した。

$$P = \left(\frac{d\Delta T}{dt} c_p M \right) / A$$

ここで、 c_p は25°Cでの水の比熱(J/kgK)、Mは、浴槽の水の重量(3.1kg)である。単位時間当たりの浴槽内の温度変化(ΔT)は、Fig 2の温度変化の勾配より見積もった。また、Aは用いた超音波

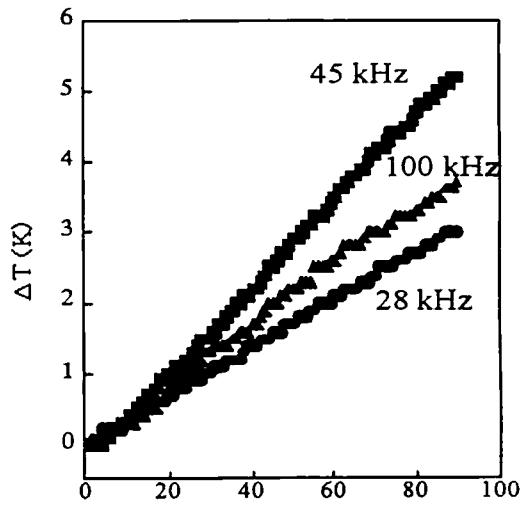


Fig.2 Temperature change ΔT of water-bath by irradiating ultrasound with each frequency.

発振素子の面積(12.6 cm^2)である。一方、超音波照射を伴う濾過実験の際には、溶液温度や操作圧力は変わらないように制御した。

3. 結果と考察

Fig. 2の結果より、本研究で使用したトランスデューサーからの超音波出力(W/cm²)は、28, 45,

100kHzでそれぞれ、0.58、1.04、0.74となった。この超音波強度で、濾過開始直後から連続して超音波を照射した際の1wt%ペプトン水溶液の体積流束の経時変化をFig. 3に示す。超音波を照射しない場合には、濾過初期では、 5.5×10^{-6} ($\text{m}^3/\text{m}^2\text{s}$)となる体積流束値は、濾過時間の増加とともに徐々に低下し、約20分後には、 5×10^{-6} ($\text{m}^3/\text{m}^2\text{s}$)

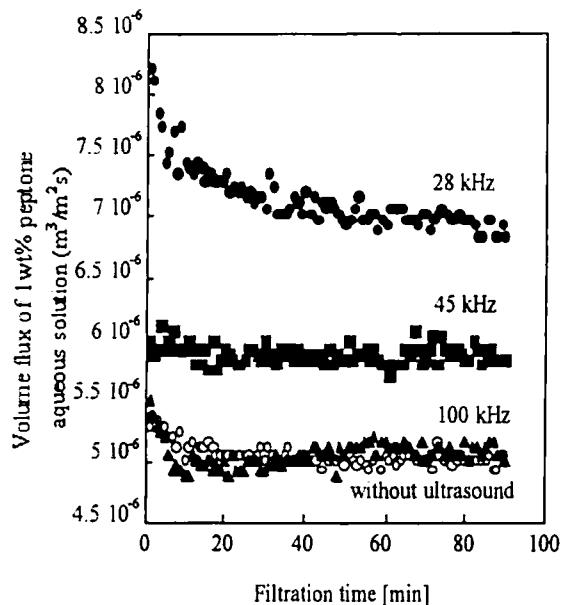


Fig.3 Volume flux of peptone aqueous solution by the irradiation of each frequency ultrasound. Open circles were for data of volume flux obtained without ultrasound.

になった。100kHzの超音波を照射した場合においても、超音波を照射しない結果とほぼ同じ傾向となり、超音波の効果はみられなかった。これに対して、28kHzの超音波を照射した場合には、逆に、体積流束は増加し約 6.7×10^{-6} となった。また、45kHzの周波数でも超音波照射により体積流束が、超音波未照射に比べて、増加した。超音波の効果が最も大きかった28kHzについて、ペプトン溶液の濃度を0.5から6wt%に代えて同様に体積流束を測定した結果をFig.4a)に示す。超音波を照射しない結果(Fig.4b))と比べても全ての濃度範囲で、超音波照射の効果が確認でき、超音波の照射により高い処理速度を維持できることが示された。超音波強度測定の結果から考察すると、最も超音波の効果が観測された28kHzでは、その強度は、用いた3種類の周波数の中で最も低かったために、超音波照射によって体積流束が増加する現象は、超音波強度の違いに起因するものではないことがわかる。この超音波効果は周波数に依存するが、超音波処理を併用することによりペプトン

による濾過特性を改善できることが明らかになった。デキストランを溶質に用いた場合も同様な傾向があり²⁾、これらの結果は低周波の超音波を利用することにより膜表面で形成される濾物の堆積を抑制出来ることを示唆している。

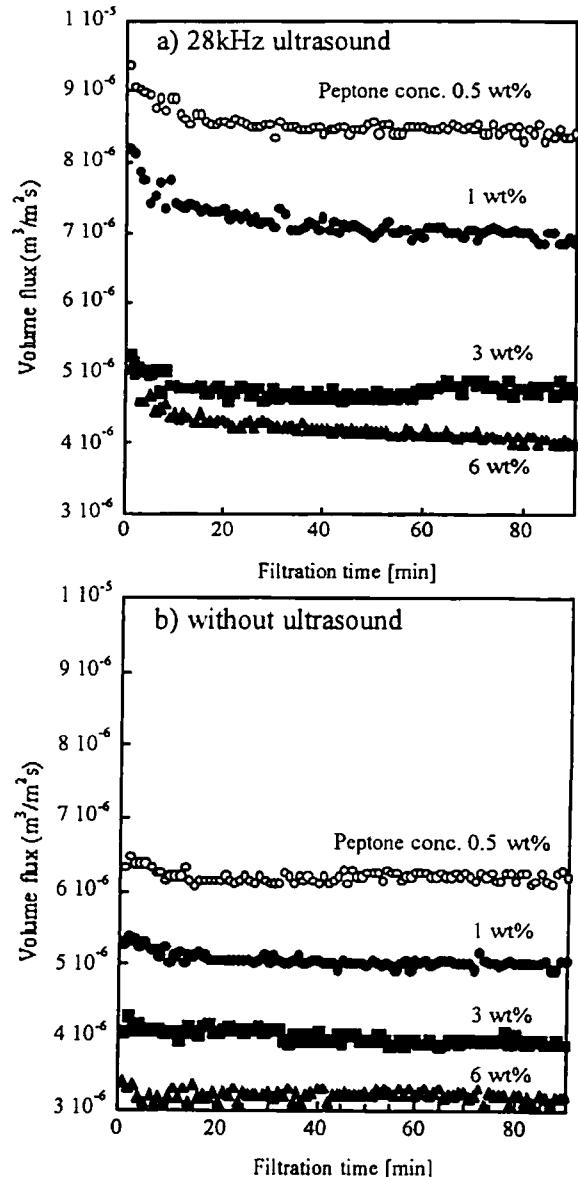


Fig.4 Volume flux of peptone aqueous solution by the irradiation (a) and unirradiation (b) of 28kHz frequency ultrasound. Peptone concentration was changed in the range of 0.5 to 6 wt%.

謝辞 本研究の一部は科学研究補助金(10558092)により行った。

文献

- 1) 小林、ケミカルエンジニアリング、44、539(1999).
- 2) T. Kobayashi et al, Separation and Purification Technology, 17, 31 (1999).
- 3) R.F. Contamine et al, Ultrasonics Sonochem., 2, S43 (1995).
- 4) J. Raso et al, Ultrasonic Sonochem., 5, 157(1999).

PA-6

Computer Experiment of Propagation of Nonlinear Waves in Model Crystals with the Next Nearest Neighbour Atomic Interactions

Md. M. A. Joarder¹⁾, A. Minato¹⁾, S. Ozawa¹⁾ and Y. Hiki²⁾

- 1) Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University
2) Faculty of Science, Tokyo Institute of Technology, Emeritus

1. Introduction

In recent years, the present authors have been studied excitation and propagation of nonlinear waves in model crystals using molecular dynamic (MD) method¹⁾⁻³. Advantage of the computational method is that we can discuss the phenomena in terms of microscopic parameters such as interatomic potentials, mass of atoms and atomic geometry. Excitation of solitons in low dimensional crystals, collision of solitons with impurities and propagation of nonlinear waves at surfaces have been studied quantitatively using mass - spring models where the nearest neighbour atomic interactions are mainly considered. The obtained results have been used to propose some applications of nonlinear waves to acoustics technology: probes of defects in crystals, memory devices, etc.

Atomic interactions are generally classified into covalent bond and ionic bond. The former is short range force and the latter is long range force. In many actual cases, however, covalent materials have ionic character to some extent. Here we need to study the effect of the next nearest neighbour atomic interaction on the wave propagation for full understanding of the phenomena.

2. Method

The model adopted here is similar to those used in author's previous works. The masses are

arranged on lattice points and are connected by springs. Previously we considered springs on the nearest neighbour atom pairs. Here we add springs which connect the next nearest neighbour atom pairs. The equation of motion for each atom on the lattice is

$$m \left(\frac{d^2\mathbf{R}}{dT^2} \right) = \sum_{nn} \mathbf{F} + \sum_{nnn} \mathbf{F}$$

where \mathbf{R} is position vector of the atom, \mathbf{F} is the force acting on the atom, T is time and m is mass of atoms. The first sum on the right side of the equation is taken for the nearest neighbour (nn) atom pairs and the second sum is for the next nearest neighbour (nnn) pairs. The forces are assumed to have potentials of the form,

$$\phi = C^{(1)} (\Delta R)^2 / 2 + C^{(2)} (\Delta R)^3 / 3 + C^{(3)} (\Delta R)^4 / 4$$

where ΔR is the change of distance of the atom pair from its equilibrium value. $C^{(i)}$ ($i=1,2,3$) are constants. For real materials, the order of the anharmonic force constants are considered to be $C^{(2)} = -C^{(1)}/10$, $C^{(3)} = C^{(1)}/100$. But exact values are not found. So we change these values in the range of factor 10 and study the dependence of the wave excitation on these values. The equations of motion are integrated numerically by the 4th ordered Runge-Kutta method. Input pulse displacement D_0 are applied

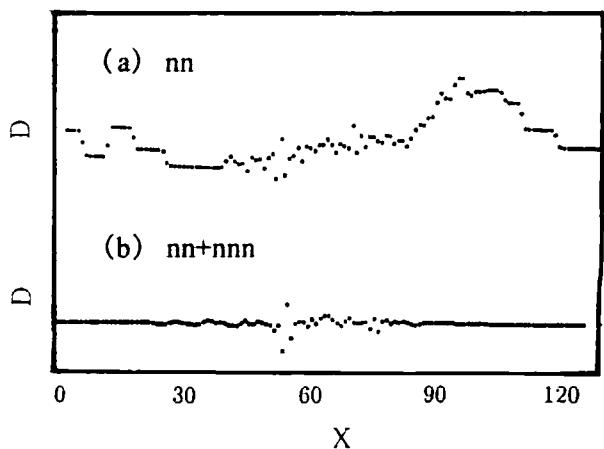
to particular atoms and the displacement and velocities of all atoms are calculated as function of time by the step by step method. The positions of atoms at each steps (MD steps) are immediately displayed graphically on CRT with the aid of SGL. Thus the lattice vibration can be observed like movies. The SGL is a set of macro of Xlib functions⁹⁾ and works under X-window + UNIX environment. It has been developed for interactive computer experiment by authors and co-workers. It is open to public at the anonymous FTP site (157.80.28.35: /sgl/new) .

3. Results and Discussion

The parameters of the present computer experiment of which values are systematically varied are the ratio χ between the magnitude of the nn interatomic force and that of the nnn interatomic force, the anharmonic force constants $C^{(2)}$, $C^{(3)}$ and the input pulse displacement D_p . The computer experiments have been carried out for various lattice geometry, 1-dimensional lattice, 2-dimensional square lattice, 2-dimensional triangular lattice and 3-dimensional cubic lattice.

Figure shows an example of the snapshot of lattice vibration in 2-dimensional (128×128) square lattice. Here, $\chi = 0$ for (a) nn and 1 for (b) nn+nnn, $C^{(2)} = -C^{(1)}/10$, $C^{(3)} = C^{(1)}/100$. The lattice vibration were induced at the central raw, $X = 63, 64$ by the input pulse, $D_p = 25$ (MD units). In the case (a) nn interactions alone, step-like waves are clearly seen. These steps are caused by multiple soliton excitation. While in the case (b) nn + nnn interaction, no steps which are regarded as solitons can be observed. It has been found from the other similar simulations in 2-dimensional square lattice that there is no obvious excitation of solitons even for $\chi = 0.1$. In 2-dimensional triangular lattice, solitons are much more difficult to be observed.

This is not only because the existence of the nnn interactions but also because the nn interactions which connect atoms 2-dimensionally in triangular lattice. It is concluded that soliton can only be produced in 1 dimensional lattice, 2-dimensional square lattice and 3-dimensional cubic lattice where the atoms are coupled by strong covalent bonds with almost no ionic character.



References

- 1) S. Ozawa, Y. Hiki, Jpn. J. Appl. Phys., **30** (1991) 46
- 2) S. Ozawa, Y. Hiki, Jpn. J. Appl. Phys., **31** (1992) 63.
- 3) Y. Hiki S. Ozawa, Proc. Intern. Conf. on Phonon Scattering in Condensed Matter VII , Ithaca, Springer, Berlin, 1993, p.19.
- 4) S. Ozawa, Y. Hiki, Jpn. J. Appl. Phys. **34** (1995) 2590.
- 5) S. Ozawa, Y. Hiki, Physica B, **219&220** (1996) 473.
- 6) S. Ozawa, Y. Hiki, Jpn. J. Appl. Phys. **35** (1996) 3205.
- 7) H. Tanaka, S. Ozawa, Y. Hiki, Jpn. J. Appl. Phys. **36** (1997) 2964.
- 8) H. Tanaka, S. Ozawa, Y. Hiki, Jpn. J. Appl. Phys. **37** (1998) 2794.
- 9) S. Ozawa, D. W. Heermann, Introduction to Computer Simulation under UNIX Enviroment, Gakujyutsu Tosyo Shuppansha, Tokyo 1995.

PC-1

$\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$ 基板 NSPUDT の モード結合パラメータ

小柴正則（北大大学院工学研究科） 稲川清（苫小牧高専） 長谷川弘治（釧路高専）

1. まえがき

ランガサイト ($\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$: LGS) の置換型結晶であるランガナイト ($\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$: LGN) 単結晶は、LGS と同様に比較的大きな電気機械結合係数と良好な温度特性を持ち、さらに、SAW デバイスの低損失化の一策として注目される NSPUDT 動作を示すカットが存在することが竹内、井上らによって報告されている^{[1]~[3]}。

本稿では、LGN 基板上の NSPUDT について、その特性解析に用いられるモード結合理論に必要な諸パラメータをハイブリッド有限要素法^[4]を用いて求め、その電極膜厚および電極幅依存性について検討を行った。

2. モード結合パラメータの決定

図 1 に示すような NSPUDT (周期 d , 電極幅 d_m , 電極膜厚 h) を考える。モード結合理論において NSPUDT の特性解析に必要なパラメータは自己結合係数 κ_{11} , モード間結合係数 κ_{12} , 変換係数 ξ , IDT 1 対当りの静電容量 C_s である。

これらのパラメータについては、無限長 NSPUDT の電気端子を短絡した短絡グレーティングのストップバンドの上下限の周波数と電位定在波分布から κ_{11} , κ_{12} が、また、電気端子を開放した開放グレーティングのストップバンドの上下限の周波数と電位定在波分布から ξ と (C_s) ^[2] が求まる。したがって、ストップバンドの上下限の周波数、電位定在波分布、ならびに IDT 1 対当りの静電容量を別途求めておくことで、すべてのパラメータが理論的に決定できる。なお、LGN 基板では LGS 基板の場合と同様に、基板表面での電位定在波分布を求めるためには、基板内部での界分布の重なり積分を評価し、モード結合理論から導かれる界分布を取り出す^[5]必要がある。このため、ハイブリッド有限要素法^[4]を用いてこれらの必要な諸量を求めていく。

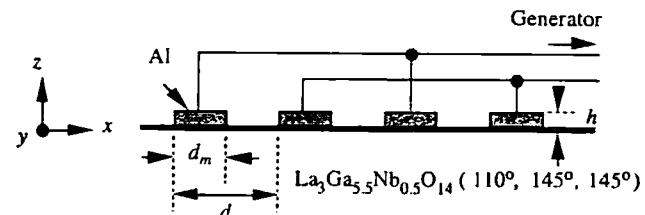


図 1 LGN 基板 NSPUDT

3. モード結合パラメータの電極幅および電極膜厚依存性

ここでは、電極をアルミニウムとした LGN 基板上の NSPUDT に対する計算結果を示す。なお、LGN 基板の材料定数としては、圧電定数と弾性定数 C_{13} および密度については Pisarevsky の値を、他の材料定数については井上らの値を用い^[1]、オイラー角を (110°, 145°, 145°) とした^[2]。また、ハイブリッド有限要素法解析では、基板領域と真空領域をそれぞれ 1 個のスーパー要素(空間高調波数 80)で分割し、 x 軸方向に 40 等分割している。また、電極が厚みをもつ場合は、8 節点矩形要素で電極厚み方向を 1 分割している。

図 2~4 はモード結合パラメータの電極幅および電極膜厚依存性である。自己結合係数は電極幅に対する振る舞いが、電極膜厚が薄い場合と厚い場合とで大きく異なることがわかる。モード間結合係数については、電極幅の増加に対して、その大きさ、位相ともに増加するが、電極膜厚に対するモード間結合係数の位相の変化は、 $h=0.02d$ 以上では小さい。変換係数の位相は、電極幅、電極膜厚とともに増加し、励振中心が最大 10 度程度ずれることがわかる。図 5 は $d_m/d=0.5$, $d=12 \mu\text{m}$, $h=0.48 \mu\text{m}$, 開口長 1.92 mm, 電極対数 100 とした場合の NSPUDT の変換損の周波数特性であり、本手法による計算値は実験値^[6]と良く一致している。なお、実験値における動作中心周波数 f_0 は 112.8 MHz である。

* Parameters of Coupling-of- Modes Equations for NSPUDT on a $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_{14}$ Substrate.
By M. Koshiba (Graduate School of Engineering, Hokkaido University), K. Inagawa (Tomakomai National College of Tech.) and K. Hasegawa (Kushiro National College of Tech.)

4 むすび

LGN 基板上の NSPUDT について、その特性解析に用いられるモード結合理論に必要な諸パラメータを、ハイブリッド有限要素法を用いて求め、それらの電極膜厚ならびに電極幅依存性を調べた。また、NSPUDT の変換損の周波数特性を計算し、実験値との比較から本手法の妥当性を確認した。

参考文献

- [1]井上他：第19回超音波シンポジウム予稿集 p.73(1998).
- [2]竹内、井上、神山：信学総大、A-11-23(1999).

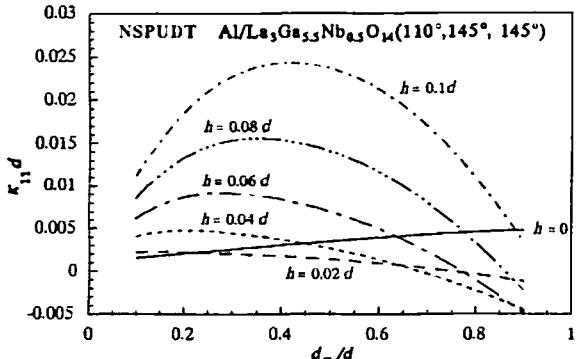
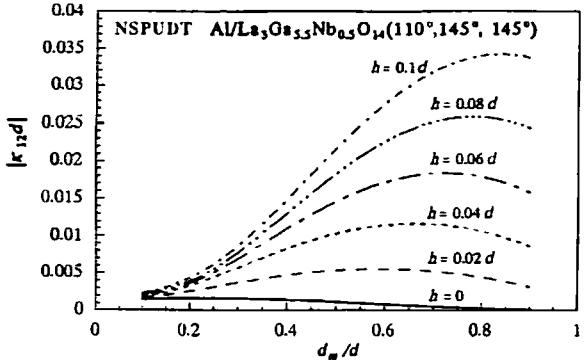
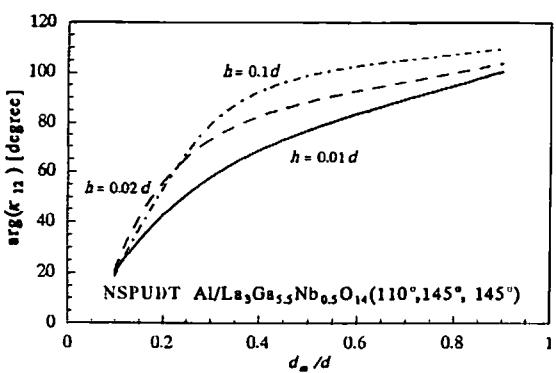


図2 自己結合係数



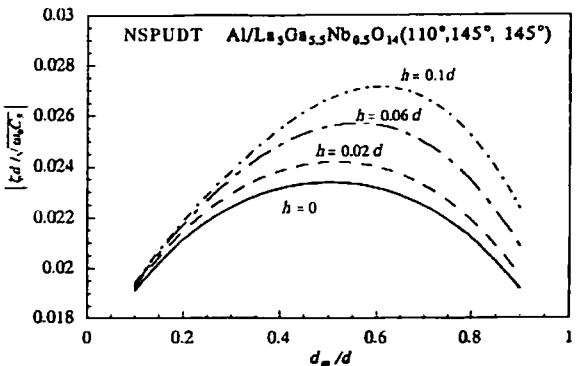
(a) Amplitude



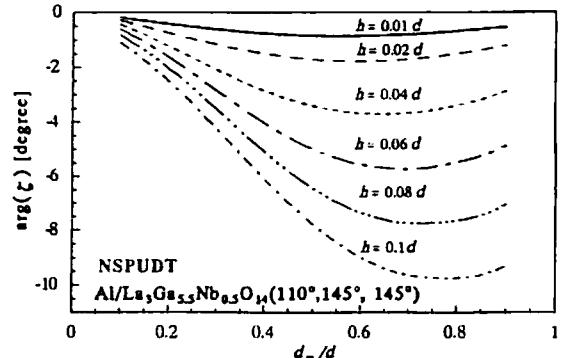
(b) Phase

図3 モード間結合係数

- [3]竹内、井上：第28回EMシンポジウム予稿集 p.83(1999).
- [4]K.Hasegawa and M.Koshiba: Jpn. J. Appl. Phys. vol.37, Part I,no.5B, p.2901, May 1998.
- [5]長谷川、稻川、小柴：信学論C-I, Vol. J82-C-I (1999) to be published.
- [6]井上真司：私信。



(a) Amplitude



(b) Phase

図4 変換係数

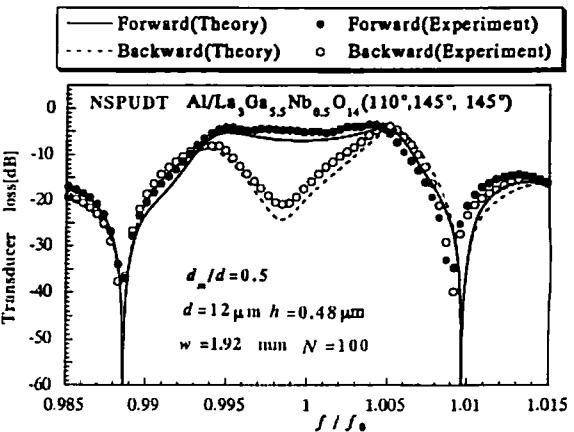


図5 La₃Ga_{5.5}Nb_{0.5}O₁₄ 基板 NSPUDT の変換損の周波数特性

PC-2

50°Y-24°X La₃Ga₅SiO₁₄ 基板 NSPUDT

ならびに EWD-RDT のモード結合パラメータ

小柴 正則(北海道大学大学院工学研究科) 長谷川 弘治(釧路高専) 稲川清(苫小牧高専)

1 まえがき

パワーフロー角が1.4度と小さく、優れた温度特性と0.35%程の比較的大きな電気機械結合係数を有するNSPUDT基板として、50°Y-24°X La₃Ga₅SiO₁₄基板(LGS基板)が注目されている[1, 2, 3]。しかしながらこの基板は、理想的なNSPUDT動作する伝搬方位からずれているため、その幅が周期の半分である正規形電極では、励振中心と反射中心のずれが1/8波長にはならないと予想されている。またこのため、従来提案されている一方向性反転電極構造[4]を直接この基板に適用できないと考えられる。

本稿では、LGS基板NSPUDTならびに一方向性反転電極構造の一つであるEWD-RDT[4]のモード結合パラメータの励振電極幅依存性を調べ、電極厚みと電極幅を適切に選択することで、励振中心と反射中心のずれを理想的な1/8波長にできることを数値的に確認したので報告する。

2 解析法

IDTの電気端子を短絡、開放した場合に対応するグレーティング反射器のストップバンドの上下限の周波数と基板表面での電位定在波分布、および電極1対当たりの静電容量C_sからモード結合方程式中の諸定数を求めることができる。さて、従来の有限要素法を用いたこれらの定数の決定法[5]では、グレーティング反射器の基板表面から十分離れた基板内部での界分布が無摂動状態での界分布で近似できるNSPUDT基板に解析対象が限定されており、LGS基板の解析は不可能であった。ここではこの制約を取り除くために、界分布の重なり積分を評価することで、モード結合理論から導かれる界分布成分を取り出し、基板表面での電位定在波分布を決定する方法[6]を用いた。また、基板内部全体の重なり積分を評価するために、ハイブリッド有限要素法[7]を用いて計算に必要な諸量を算出している。

なお、以下の計算ではモード結合パラメータの参考面を励振電極中心にとり、基板領域と真空領域をそれぞれ1個のスーパー要素で分割し、x軸方向を、正規形電極では20等分割し、EWD-RDTでは48等分割している。また、電極が厚みを持つ場合は、8節点矩形要素を用いてz軸方向に1分割している。

3 正規形電極のモード結合パラメータ

図1に示すようなNSPUDT(アルミニウム電極厚みh、電極幅w、周期長p = λ₀/2、λ₀:設計中心周波数f₀における波長)を考える。

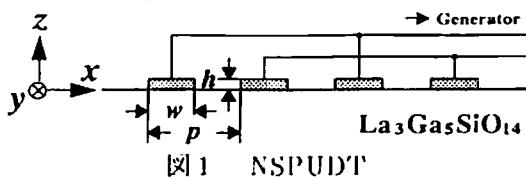


図1 NSPUDT

Coefficients of coupled-mode equations for a natural single phase unidirectional transducer and an electrode width difference reversal of directivity transducer on a 50°Y-24°X La₃Ga₅SiO₁₄ substrate.

Masanori Koshiwa(Graduate School of Engineering, Hokkaido University), Koji Hasegawa(Kushiro National College of Tech.) and Kiyoshi Inagawa(Tomakomai National College of Tech.)

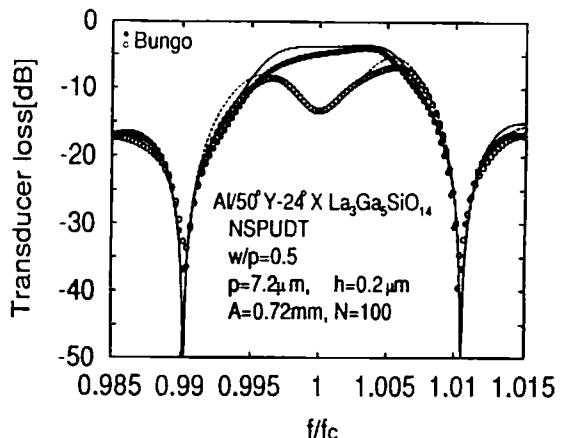
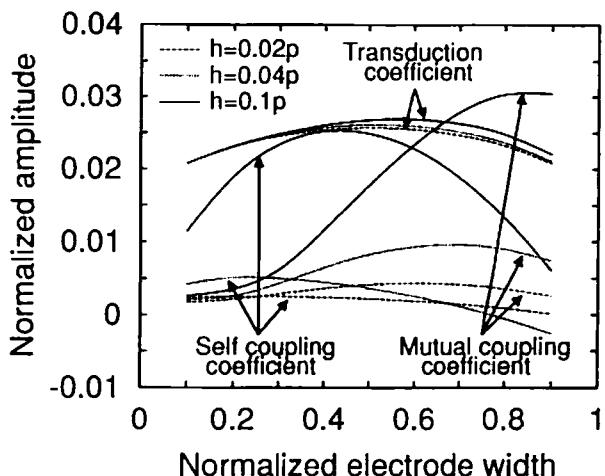
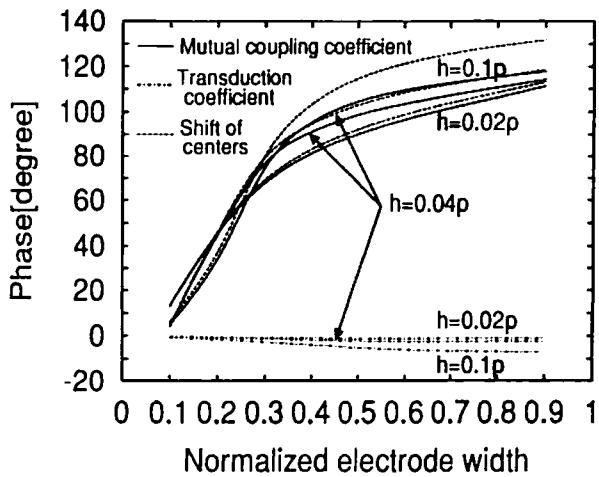


図2 変換損の周波数特性



(a) モード結合パラメータの大きさ



(b) モード結合パラメータの位相

図3 モード結合パラメータの電極幅依存性

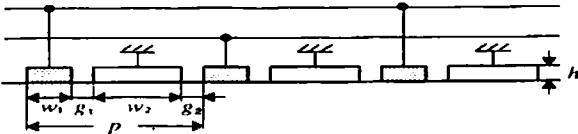
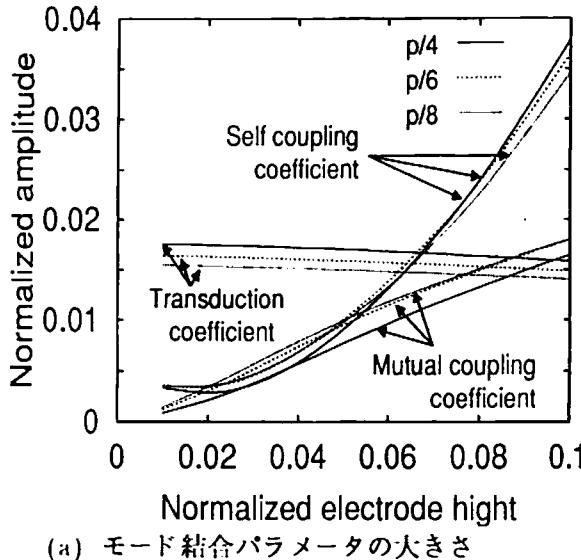
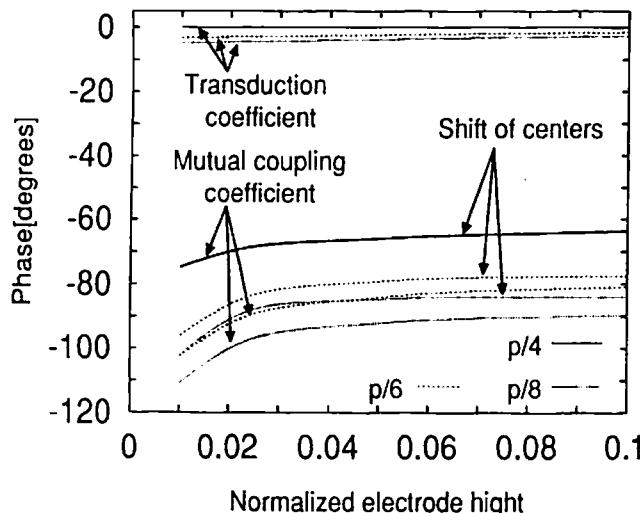


図4 EWD-RDT



(a) モード結合パラメータの大きさ



(b) モード結合パラメータの位相
図5 モード結合パラメータの電極厚み依存性

図2は、 $p = 7.2 \mu\text{m}$, $h = 0.2 \mu\text{m}$, $w = 0.5p$ として開口長0.72 mm, 電極対数100の場合の変換損を調べたものである。ここで、実験値、計算値とともにメインロブ内で逆方向に励振されるSAW強度が最小となる周波数を f_c とした。本手法による計算値は、実験値(●, ○)[8]と良く一致している。

図3は、自己結合係数 $\kappa_{11}p$ 、モード間結合係数 $\kappa_{12}p$ 、変換係数 $(\zeta p)/\sqrt{2\pi f_0 C_s}$ の規格化電極幅(w/p)依存性を調べたものである。 $w/p \leq 0.7$ での $\kappa_{12}p$ の大きさと $0.3 \leq w/p$ での位相は、同じ電極厚みで電極幅が広くなる場合、同じ電極幅で電極が厚くなる場合のいずれでも単調に大きくなっている。一方、規格化変換係数 $(\zeta p)/\sqrt{2\pi f_0 C_s}$ の大きさはあまり変わらないが、位相は単調に減少しており、励振中心が電極中心からずれて行くことがわかる。

4 一方向性反転電極 EWD-RDT のモード結合パラメータ

図4に示すようなEWD-RDT(励振電極幅 w_1 、短絡浮き電極幅 $w_2 = p/2$ 、電極間隔 $g_1 = p/8$ 、周期長 $p = \lambda_0/2$)を考える。ここで、簡単にEWD-RDTの動作原理を説明する。励振電極と短絡浮き電極の中心間距離 l_s は $l_s = 3\lambda_0/16 + w_1/2$ なので、励振電極1本当りの反射係数を $|\Gamma_e| \exp(j\theta_e)$ 、浮き電極1本当りの反射係数を $|\Gamma_f| \exp(j\theta_f)$ とすると、EWD-RDT1周期当たりの反射係数は近似的に $\Gamma = |\Gamma_e| \exp j\theta_e + |\Gamma_f| \exp j(\theta_f + 4\pi \times l_s/\lambda_0)$ となる。ここで、 $\theta_e = \theta_f = \pi$ ならびに $|\Gamma_e| < |\Gamma_f|$ を仮定して、励振電極幅 $w_1 = p/4 = \lambda_0/8$ とすると、 $l_s = \lambda_0/4$ なので、 $\Gamma = |\Gamma_f| - |\Gamma_e|$ となることから一方向性が反転する。なお、構造の対称性から励振中心は励振電極中心にあると仮定した。

図5は、励振電極幅 w_1 が $p/4$, $p/6$, $p/8$ のそれぞれの場合について、モード結合パラメータの電極厚み h 依存性を調べたものである。 $w_1 = p/4$ の場合は、図示した範囲で $\text{Arg}(\kappa_{12}) - 2\text{Arg}(\zeta)$ は $-\pi/2$ とならず、 $w_1 = p/8$ の場合に $h/p \sim 0.02$ では理想的な位相差 $-\pi/2$ となっている。これは図3(b)に示したように、反転動作の原理で仮定した $\theta_e = \theta_f = \pi$ を満足しないためであり、 w_1 が小さくなると、 l_s が小さくなり、 $\theta_f + 4\pi \times l_s/\lambda_0 \leq 2\pi$ となるので、 Γ_e の虚部と Γ_f の虚部が相殺して理想的な位相差が得られるためである。また、 w_1 の幅が小さくなると電極構造が非対称となり、励振中心が励振電極中心からずれるため、EWD-RDTの近似反射係数 Γ から予想される値よりも w_1 は小さくなる。

5 むすび

最近著者らが開発したモード結合パラメータ決定法を用いて、LGS基板上のNSPUDTの変換損失を計算し、実験値と計算値との比較から、その妥当性を確認した。また、NSPUDTならびにEWD-RDTのモード結合パラメータの電極幅依存性を調べ、NSPUDTとEWD-RDTのいずれの場合も、電極幅を適切に選ぶことで励振中心と反射中心のずれを理想的な1/8波長にできることを示した。

参考文献

- [1] A. Bungo, C. Jian, K. Yamaguchi, Y. Sawada, S. Uda and Y. P. Pisarevsky: Jpn. J. Appl. Phys., 38(1999)3239.
- [2] M. Takeuchi, T. Sakamoto and M. Tanaka: Jpn.J.Appl.Phys., 38(1999)3244.
- [3] M. Adachi, T. Karaki and W. Miyamoto: Jpn.J.Appl.Phys., 38(1999)3283.
- [4] M. Takeuchi, H. Odagawa, M. Tanaka and K. Yamanouchi: IEEE Ultrason. Symp. Proc. (1995)17.
- [5] 長谷川弘治、稻川清、小柴正則: 信学論(C-I),J77-C-I(1994)398.
- [6] 長谷川弘治、稻川清、小柴正則: 信学論(C-I),J82-C-I(1999) to be published.
- [7] K. Hasegawa and M. Koshiba: Jpn. J. Appl. Phys., 37(1998)2901.
- [8] 豊後明裕:私信。

PC-3

重み付け反射器の設計とその帯域通過型 SAW フィルタへの応用

大森達也, 田島基行, [†]赤坂純一, 橋本研也, 山口正恒 (千葉大, [†]函館ソーデバイス)

1 はじめに

マルチストリップカプラと SAW グレーティング反射器を用いた帯域通過型フィルタについて検討する。このフィルタでは反射器により通過特性を合成することで、小型化が期待できる。反射器について、反射器長、グレーティング周期、電極膜厚、重み付けについて同時に最適化を行い、反射特性の制御を行う。

2 フィルタ構造

図 1 に示す帯域通過型フィルタを考える。このフィルタは上下対称な 2 列のトラックからなっている。入力 IDT により励振された SAW はマルチストリップカプラ (Multi-strip coupler : MSC) によって上下トラックに等分され、それぞれのトラックの反射器に入射する。反射器により反射した SAW は MSC を逆方向に伝搬し、出力 IDT により検出される。本質的にこのフィルタの通過特性は入出力 IDT の励振特性と反射器の反射特性の合成により決定される。

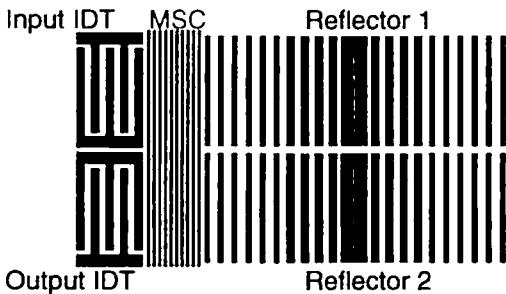


図 1: 重み付けした反射器を利用する帯域通過フィルタ

デバイスの小型化の上では主として反射器による特性的合成が有利である。そこで、ここでは広帯域の IDT(= 小型の IDT) と、所定の反射特性を持つよう電極幅重み付けを施した反射器を組み合わせることによりフィルタ全体としての特性を合成するものとした。

3 反射器設計

全体の通過特性を反射器の反射特性により決定するため、これを精密に制御する必要がある。従来、グレーティング反射器に対する重み付けについては、水晶のように電極一本あたりの反射が小さく、反射器内部での多重反射が無視しうる場合や [1]、場所ごとに電極位置を変調し、極めて広帯域の反射器として利用する場合 [2] について報告されている。

これに対して、ここでは $128^\circ\text{YX-LiNbO}_3$ のように結合係数が大きな基板上に設けられたグレーティング反射器において、数%の阻止域をもつ場合についての反射器設計を行うことを考える。

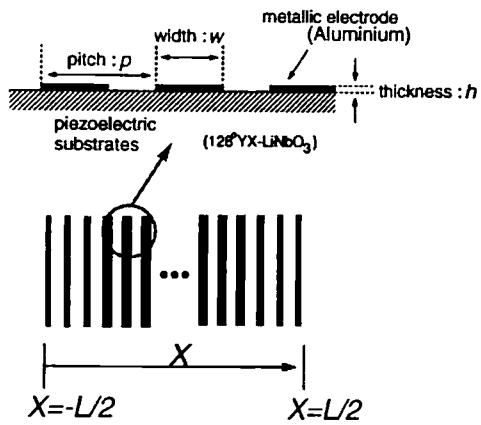


図 2: 電極幅重み付けをしたグレーティング反射器

3.1 重み関数の決定方法

モード結合 (Coupling of modes : COM) 理論によれば、図 2 に示すような、局所的に反射率を変化させたグレーティング中を $+X$ 及び $-X$ 方向に伝搬する SAW のモード振幅 $U_+(X)$, $U_-(X)$ は COM 方程式、

$$\begin{cases} \frac{dU_+(X)}{dX} = -j\theta U_+(X) - j\kappa_{12}(X)U_-(X) \\ \frac{dU_-(X)}{dX} = j\kappa_{12}^*(X)U_+(X) + j\theta U_-(X) \end{cases} \quad (1)$$

を満足する。

電極幅 w を変調することによって κ_{12} の変化を実現する場合、SAW 速度も局所的に変化するため、一周期あたりの遅れ時間が等しくなるよう電極周期 p をわずかに変調する。

ここで、電極幅、膜厚がそれぞれ w_0/p_0 , h/p_0 の場合の κ_{12} を $\kappa_0(h/p_0)$ とおき、未知の重み関数 $W(\xi)$ を用いて、 $\kappa_{12}(X) = \kappa_0(h/p_0)W(\xi)$ とする。ただし、 p_0 は $p(X)$ の最大値とし、 w_0/p_0 は κ_{12} が最大付近となる電極幅を選ぶものとする。また、 $\xi \equiv 2\pi X/L$ である。

反射器が左右対称である場合を考慮すれば $W(\xi)$ は、

$$W(\xi) \approx \sum_{n=0}^{M-1} a_n \cos(n\xi) \quad (2)$$

で近似できる。

したがって、電極周期 p_0 、反射器長 L 、電極膜厚 h/p_0 、重み付けの係数 a_n をパラメータとして (1) 式を数値計算により解くことにより [3] ある周波数 f におけるグレーティング反射器の反射係数 $\Gamma(f)$ を求めることができ、これに対して非線形適応最小二乗法 [4] によるパラメータ推定を行なうことで、これらのパラメータを決定する。 κ_{12} の分布から電極幅の決定は [5] により、容易に行なうことができる。

3.2 重み付け反射器の設計例

中心周波数 $f_0 = 200.0\text{MHz}$, 通過帯域 4.0MHz , 邊縁帯域を 1.5MHz として、最大限の最適化を行った場合の重み付け反射器の設計例を示す。基板には $128^\circ\text{YX-LiNbO}_3$ 、電極材料として Al を用いた開放グレーティングを想定した。また $w_0/p_0 = 0.6$ 、 $W(\xi)$ の展開項数 M は 3 とした。

この条件で最適化をした結果、 $p_0 = 9.86\mu\text{m}$, $L = 307p_0$, $h/p_0 = 0.032$ となり、電極一本あたりの反射率 $\kappa_{12}(X)p(X)$ の分布は、図 3 のように得られた。

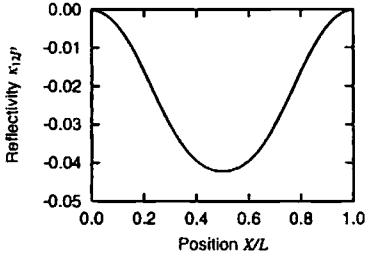


図 3: 電極一本あたりの反射率の分布

この時の反射特性を、反射器重み付けを行わない場合と比較して、図 4 に示す。

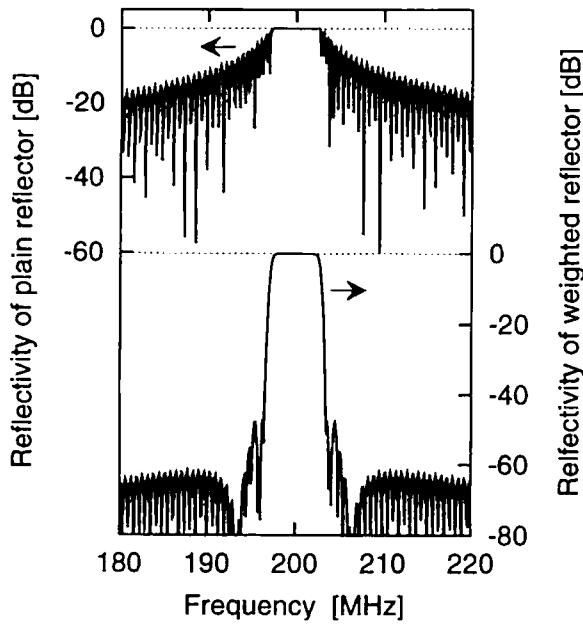


図 4: 最適設計による反射器の反射特性(上:重み付けなし、下:最適化した反射器)

反射器重み付けにより良好な角型特性と、 -60dB 程度の帯域外抑圧の可能性が明かになった。

4 実験結果

実際に図 1 のフィルタ構造に対して、重み付けにより反射特性を制御した反射器を適用し、設計方法の妥当性について考察する。

ただし、実験ではチップサイズの制限と加工精度の問題

等により、前節で述べた最大限の最適化により得られた重み付けとは異なり、 $L = 200p_0$ 固定とし、

$$W(\xi) = 0.550 + 0.488 \cos(\xi) - 0.038 \cos(2\xi) \quad (3)$$

の重み付けを採用した。

実験の結果を理論値と比較して、図 5 に示す。この比較より明らかのように、理論値と実験値は非常に良い一致を示し、ここで述べた設計方法の妥当性が確認された。

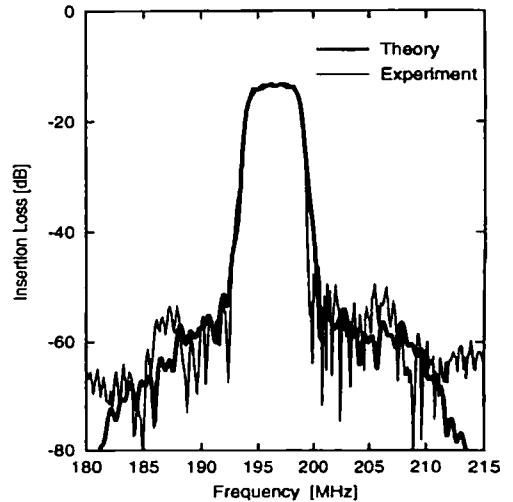


図 5: 試作フィルタの通過特性

5まとめ

MSC と反射器を用いることにより小型化を重点においた帯域通過型の SAW フィルタについて検討した。特に反射器の設計に関して非線形最小二乗法により反射器の全長および膜厚まで同時に最適化をほどこすことにより、優れた帯域外抑圧比が得られることを確認した。これらの設計理論により実際にデバイスを設計・作製したところ理論と実験が良い一致を示すことが確認され、ここで議論した設計方法の妥当性が証明された。

本研究にあたり、デバイスの作製・測定ならびに、検討いただきました堤潤氏((株)富士通研究所)、兼田泰文氏(富士通メディアデバイス(株))に感謝いたします。

本研究は日本学術振興会「未来開拓学術研究推進事業」の研究プロジェクト「新圧電単結晶・薄膜材料の探索と次世代高度情報システム用高機能弹性波デバイスの研究」の一環として行われた。

参考文献

- [1] A. Bergmann, J. Machui, K. Waiger and R. Weigel: Proc. Ultrason. Symp. (1996) p.57.
- [2] G. Müller, G. Sindic, F. Seifert and R. Weigel: Proc. Ultrason. Symp. (1993) p.233.
- [3] 田島、兼田、大森、橋本、山口：信学会総合大会(1999)A-11-14.
- [4] J. E. Dennis Jr., D. M. Gay and Roy E. Welsch: ACM Trans. Math. software, Sept. (1981).
- [5] K. Ibata, T. Omori, K. Hashimoto and M. Yamaguchi: Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 38 (1998) p.3293.

小野里 紀夫、 安達 正利*、 唐木 智明*
 日本ピクター(株) 中央研究所、 富山県立大(工) *

1. はじめに

ランガサイト($\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$:LGS)単結晶は、水晶に比べて弾性表面波速度が小さく、比較的大きな電気機械結合係数(k^2)を持ち、周波数零温度係数方位を持つので、特に W-CDMA 用 IF SAW フィルター等への応用が注目されており、すでに詳細な弾性表面波伝搬特性やデバイス特性例が発表されている。^{[1],[2],[3]}

一方、置換型ランガサイトについてはランガナイト($\text{La}_3\text{Nb}_{0.5}\text{Ga}_{5.5}\text{O}_{14}$:LNG)^[4]を除いてあまり報告例がない。我々は Ta 置換型ランガサイト($\text{La}_3\text{Ta}_{0.5}\text{Ga}_{5.5}\text{O}_{14}$:LTG)について、材料定数を求め、それを基に弾性表面波伝搬特性について解析したので報告する。

2. 実験方法

LTG は点群 32 の三方晶系に属する。独立な誘電率は ϵ_{11}^S , ϵ_{33}^S 、圧電定数は e_{11} , e_{14} 、弾性定数は s_{11} , s_{12} , s_{13} , s_{14} , s_{33} 及び s_{44} である。これらを共振・反共振法で -30°C から 80°C の範囲で求めた。

これらの定数を基に Campbell と Jones

Table I. Dielectric, elastic and piezoelectric constants and their temperature coefficients of LTG single crystal.

	Absolute quantities	First- and second-order temperature coefficients	
		10^{-6}C^{-1}	10^{-8}C^{-2}
Dielectric constants			
$\epsilon_{11}^S/\epsilon_0$	19.3	36.7	32.2
$\epsilon_{33}^S/\epsilon_0$	80.3	-1550	230
Elastic stiffness	10^{10}Nm^{-2}	10^{-6}C^{-1}	10^{-8}C^{-2}
c_{11}^E	20.2	-71.0	-39.1
c_{12}^E	12.0	-137	-61.4
c_{13}^E	12.5	-26.3	4.76
c_{14}^E	1.33	-390	37.8
c_{33}^E	28.8	-74.1	0.377
c_{44}^E	4.97	-16.1	-13.3
c_{66}^E	4.07	25.6	-6.46
Piezoelectric Constants	Cm^{-2}	10^{-6}C^{-1}	10^{-8}C^{-2}
e_{11}	-0.468	-426	175
e_{14}	0.0632	-135	353

の方法^[5]によって弾性表面波伝搬特性をシミュレーションした。この解析法により、基板表面がオープンの時の表面波速度 v_f とショートの時の速度 v_s を算出し、結合係数 k^2 は $2(v_f-v_s)/v_f$ より求め、群遅延時間温度係数(TCD)と併せてカット角度依存性を求めた。

3. 結果

材料定数の結果を Table I. に示す。この結果を基に Z 板カット(図 1)、X 板カット(図 2) 及び Y 板カット(図 3) の表面弾性波伝搬特性を示す。

全方位において、 $v = 2200 \sim 2800(\text{m/s})$ 、TCD は $-80 \sim +20(\text{ppm}/\text{C})$ まで変化し、 k^2 は最大 0.7% が得られるカット角がある。

TCD が零で、 k^2 が大きく PFA が零となる有用な LTG 基板は $(13^\circ, 150^\circ, 39^\circ)$ 方位近傍である。(図 4) この時の周波数変化率の温度依存性を図 5 に示した。

4. まとめ

計算の結果、LTG の $(13^\circ, 150^\circ, 39^\circ)$ 近傍において有用な表面弾性波伝搬方位が求められた。

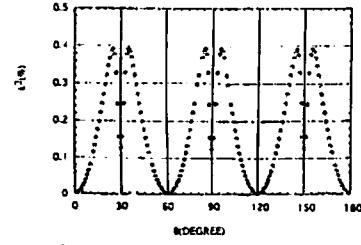
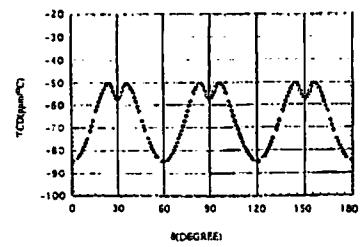
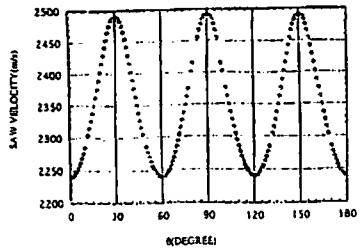


Fig.1 Dependence of v , TCD and k^2 of the Z-cut substrate on θ , respectively.

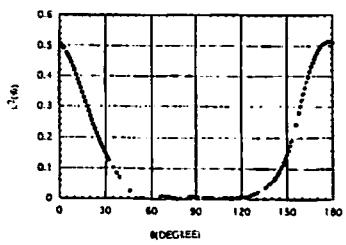
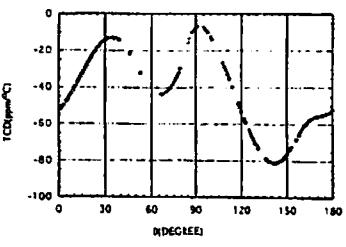
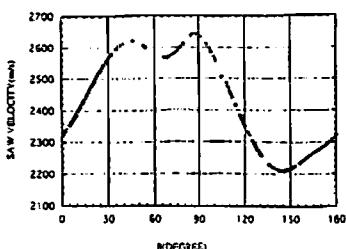


Fig.2 Dependence of v , TCD and k^2 of the X-cut substrate on θ , respectively.

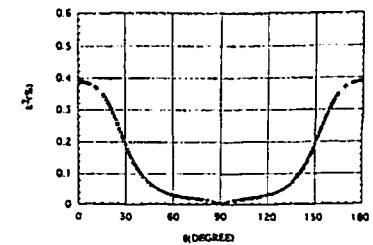
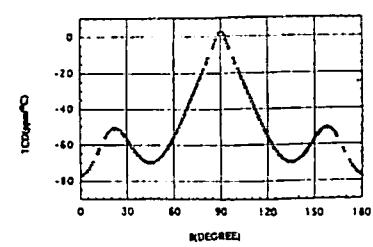
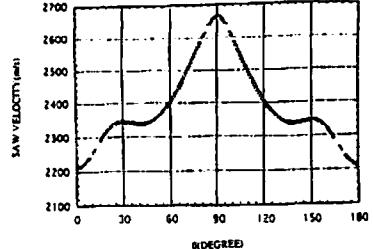


Fig.3 Dependence of v , TCD and k^2 of the Y-cut substrate on θ , respectively.

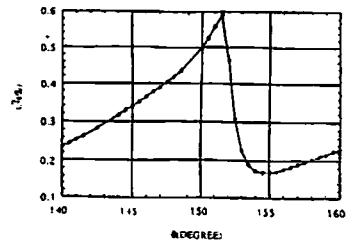
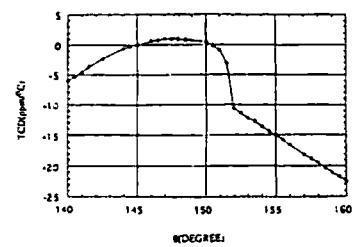
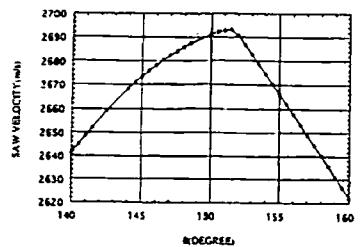


Fig.4 Dependence of v , TCD and k^2 of $(13^\circ, \mu, 39^\circ)$ substrates.

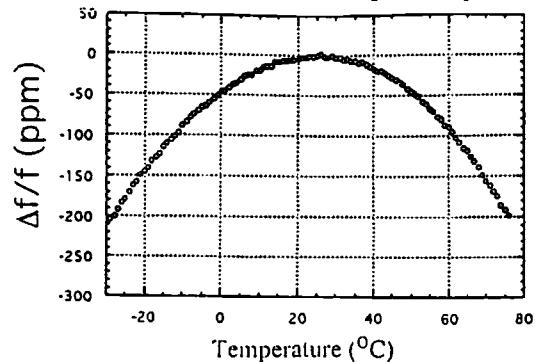


Fig.5 Temperature dependence of $\Delta f/f_0$
参考文献

- [1] M.Adachi,T.Karaki and W.Miyamoto : Jpn. J.Appl. Phys. Vol. 38, 3283(1999).
- [2] K.Inoue and Sato : Jpn.J.Appl.Phys.,Vol.37, 2909(1998)
- [3] M.Kadota,J.Nakanishi,T.Kitamura and K. Kumatoriya: Jpn.J.Appl.Phys.Vol. 38,3288 (1999)
- [4] 井上、片岡、村上、清水、丹羽他：第19回超音波シンポジウム予稿集.73(1998)
- [5] J.J.Campbell and W.R.Jones : IEEE Trans Sonics and Ultrason.,Su-15,209(1968)

PC-5 応力下での弾性表面波の伝搬特性と複合構造零温度特性基板への応用

山之内 和彦*、小谷 謙司**、小田川 裕之**、長 康雄**

*東北工業大学、**東北大学電気通信研究所

1. はじめに

線膨張係数が小さい基板上に適当な厚さの単結晶基板を接着した複合型基板を構成することにより、単結晶の弾性表面波伝搬特性を保ちながら、温度特性を補償する基板の理論解析と実験結果について述べる。応力下のSAWの伝搬特性を非線形弹性・圧電・誘電定数を考慮して理論計算を行い、この結果から、高結合・高安定となるSAWデバイス用基板を見いだす。次に実際に室温付近で接着を行ったデバイスを作製して温度特性の改善が確認された結果について述べる。

2. 解析及び計算結果

図1に示すように薄くしたLiNbO₃基板が、線膨張係数の小さい十分に厚い基板上に接着層でのずれが生じないほど強固に接着されているとする。温度が変化したとき下の基板に引かれてLiNbO₃だけが歪みを受けるとして、SAWの伝搬特性の解析を行う。両基板の線膨張係数の差[1]から歪みは、

$$\eta_1 = (\alpha_{s1} - \alpha_{11})(T - T_0) \quad \eta_2 = (\alpha_{s2} - \alpha_{12})(T - T_0) \quad (1)$$

と表される。X₃方向はFreeであり基板中ではたわみがなく圧縮のみが起こっているとすると応力と歪みの関係式は

$$\sigma_1 = c_{11}\eta_1 + c_{12}\eta_2 + c_{13}\eta_3 \quad \sigma_2 = c_{21}\eta_1 + c_{22}\eta_2 + c_{23}\eta_3 \quad \theta = c_{31}\eta_1 + c_{32}\eta_2 + c_{33}\eta_3 \quad (2)$$

となるのでこれより η_3 を求めることができる。静的な歪みを受けているときの弾性定数は3次の弾性定数[2]を用いて次のようになる。

$$c'_{ij} = c_{ij} + c_{ikj}\eta_k, \quad i, j, k = 1 \text{ to } 6 \quad (3)$$

この弾性定数の変化により、温度変化による弾性定数の変化を打ち消すことができる。温度変化により弾性定数の静的歪みの元での複合型基板のTCDの計算を行う。TCDは次の式から計算する。

$$TCD = \sigma_{11} - TCV \quad TCV = \frac{1}{v_s(25^\circ\text{C})} \left[\frac{v_s(35^\circ\text{C}) - v_s(15^\circ\text{C})}{20^\circ\text{C}} \right] \quad (4)$$

SAW速度の解析については静的な応力が存在する場合の運動方程式は空間座標を用いると

$$\frac{\partial}{\partial t_i} \left(\sigma_{ij} \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial T_y}{\partial x_i} = \rho \frac{\partial^2 u_j}{\partial x_j^2}, \quad j = 1, 2, 3 \quad (5)$$

となる。また密度変化についても、LiNbO₃基板中の歪みの受け方を考慮すると

$$\rho(r) = \rho(r_0) [1 - (\alpha_{s1} + \alpha_{s2} + \alpha_{11})(r - T_0) - \eta_3] \quad (6)$$

となる。

3. LiNbO₃/下地構造の複合型基板のTCD計算

複合型基板の圧電性単結晶として、大きな電気機械結合係数を持つLiNbO₃について計算を行う。用いる材料定数はWarnerの定数[3]、温度係数はSmithの定数[4]、3次の弾性定数は長らの定数[2]である。

下地基板は等方性基板でありX₁、X₂方向の熱膨張係数が同じであるとして、その大きさがほぼLiNbO₃のX₁、X₂方向の熱膨張係数に等しい16ppm/[°]Cから0まで変化させたとき圧電基板及び伝搬する表面波が128°Y-X LiNbO₃のレイリー波、64°Y-X LiNbO₃のリーキー波である場合についてTCDの計算を行った。その結果を図2に示す。

128°Y-X LiNbO₃のレイリー波では大幅な遅延時間温度係数(TCD)の改善は望めないという計算結果となった。64°Y-X LiNbO₃のリーキー波では境界条件がOpenのとき下地基板の熱膨張係数が1.7ppm/[°]Cでゼロ温度係数、Shortのときは、下地基板の熱膨張係数が0.8ppm/[°]Cでゼロ温度係数となるという計算結果を得た。下地基板としては実在する物質の中で石英ガラスの熱膨張係数が0.55ppm/[°]Cであり、複合型基板による温度補償は可能であるという結果が得られた。

4. 実験結果及び検討

石英基板上に負の線膨張係数をもつ基板に64°Y-X LiNbO₃単結晶を接着させた複合基板の実験結果について述べる。接着剤として、室温付近での接着の可能な紫外線硬化型接着剤を用いた。室温で接着することにより、使用温度付近での圧電基板の静的歪みを小さくすることができる。

作製した複合型基板の下地基板である石英ガラスの厚さを1.55mm、圧電基板の厚さを40μm～100μmと変化させた場合のTCDの測定結果を図3に示す。LiNbO₃の厚さが100μmで46ppm/[°]C、40μmで34ppm/[°]Cとなり特性改善が確認された。

最近光学材料として開発された日本電気硝子社製のマイナス膨張ガラス(ネオセオラム)を下地基板(石英ガラスより1ppm程度小さい熱膨張係数-0.6ppm/[°]Cを持つ)を下地基板とした場合の測定結果を図4に示す。LiNbO₃基板の厚さが100μm、マイナス膨張ガラスの厚さが2.9mmのときTCD=24ppm/[°]C。LiNbO₃基板の厚さが40μm、マイナス膨張ガラスの厚さが1.2mmのときTCD=19ppm/[°]Cとなり特性がさらに改善された。この場合の基板厚さに対するTCDをプロットしたのが図5であり、圧電基板の厚さゼロであるときのTCDの値を推定すると16ppm/[°]Cまで改善が可能であるというこ

Theoretical Analysis of SAW Propagation Characteristics under the Strained Medium and Applications for High Temperature Stable High Coupling SAW Substrates,

K. Yamanouchi*, K. Kotani**, H. Odagawa** and Y. Cho**.

*Tohoku Institute of Technology, ** Res. Ins. Elect. Comm., Tohoku University

とになった。石英ガラスの熱膨張係数よりも $1.15\text{ppm}/^\circ\text{C}$ 小さく、計算では $1.15\text{ppm}/^\circ\text{C}$ でTCDは6ppm改善されるがそれと比較すると11ppmと大きく改善された。

4. まとめ

複合型基板による温度補償について、応力下の非線形硬化による弾性定数の変化を考慮してLiNbO₃基板について検討した結果、64° Y-Xでゼロ温度と特性が可能であることが判った。また下地基板を線膨張係数0.55ppmの石英基板とし室温で紫外線硬化型接着剤でLiNbO₃基板を接着してデバイスを作製した結果、40 μmの厚さでTCD=34ppm/°C、また線膨張係数が-0.6ppm/°Cのマイナス膨張係数ガラスを用いた場合、LiNbO₃の厚さを40 μmとして複合基板で、20°Cから80°Cの温度範囲でTCD=19ppmの結果を得た。この複合基板の特性は、64°で $k^2=11.3\%$ であり、TCD=19ppm/Cと良好な特性をもっている。

今後は、零温度特性をもつ複合基板の作製と超高周波デバイスを目指した研究を進める予定である。

参考文献:[1] K.Yamanouchi, M.Ishii and K.Shibayama, "Thermal Strain Effects of Acoustic Surface Waves in Layered Media", Electron.Lett., Vol.14, No.24, pp.784-786, [2] Y.Cho and K.Yamanouchi, "Nonlinear, Elastic, Piezoelectric, Electrostrictive and Dielectric Constants of Lithium Niobate", J.Appl.Phys., Vol.61(3), 1.February, 1987, pp.875-887, [3] A.W.Warner, M.Onoe and G.A.Coquin, "Determination of Elastic and Piezoelectric Constants for Crystals in Class(3m)", J.Acoust. Soc. Amer., Vol.42, No.6, pp.1223-1231, 1967,[4] R.T.Smith and F.S.Welsh, "Temperature Dependence of the Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Constants of Lithium Niobate, Lithium Tantalate", J.Appl.Phys., vol.42, No.6, 1971, pp.2219-2230

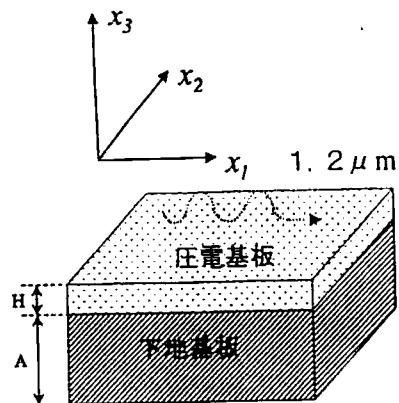


図1 複合型基板の構造及び座標系

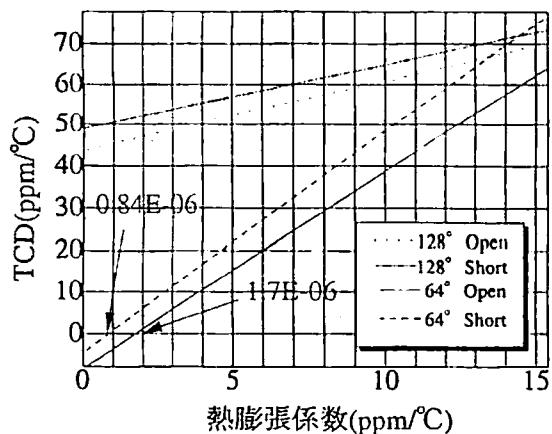


図2 下地基板の熱膨張係数と複合型基板のTCD

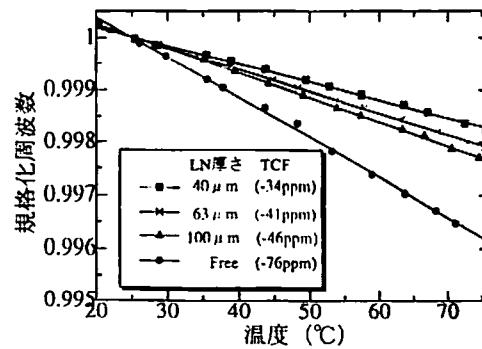


図3 温度変化に対する発振周波数の変化

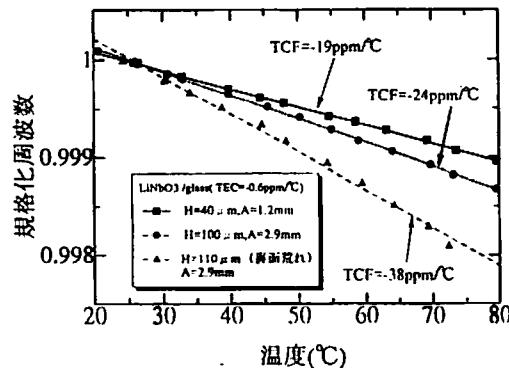


図4 温度変化に対する発振周波数の変化

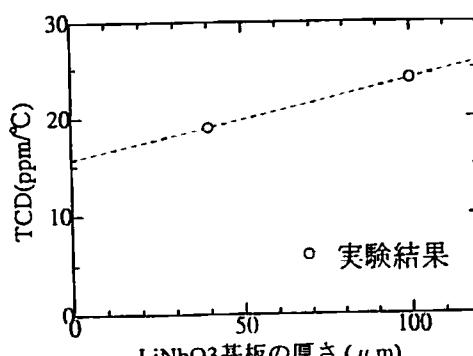


図5 LiNbO₃厚さに対するTCD

PC-6

エピタキシャルリフトオフ技術に基づく 弹性表面波・半導体複合機能素子の作製技術

洪哲雲、青木裕介、兼城千波、黄啓新、宝川幸司（神奈川工大 ハイテクリサーチセンター）

1. はじめに

エピタキシャルリフトオフ (ELO) 技術を用いて、化合物半導体を圧電基板にモノリシックに集積した弹性表面波・半導体複合デバイスは高機能、高性能素子として期待できる^[1,2]。しかし、素子作製の際、ELO 技術による SAW 基板に張り付けた半導体薄膜が 300°C 以上の熱処理や、高パワーの超音波に対して、剥離、破損するという問題があった。本報告では、より機能性が高く、信頼性がよい機能素子を実現するため、SAW 基板上に半導体薄膜を得るためのキーポイントとなるプロセス条件を検討した。

2. ELO による作製プロセス

ELO による弹性表面波・半導体機能素子を作製する場合、Fig.1 に示すように GaAs 薄膜はフッ酸溶液で AlAs 層の高い選択エッチング性の性質を利用して、剥離される (Fig.1(a))。この際、Wax は GaAs 薄膜を機械的に保護する以外に、熱膨張係数の違いによる応力で GaAs を変形させ、AlAs エッチングで発生した水素ガスを逃がし剥離を速く進める役割も果たしている。

次に GaAs 薄膜を分子間力によって SAW 基板に貼り付ける (Fig.1(b))。最後、半導体素子の加工プロセス及び IDT、配線プロセスを施し、機能素子の作製を完成する。^[2]

ここで SAW 基板上に素子加工条件に耐えるダメージフリーな GaAs 薄膜を得るためにポイントとなるのは剥離と貼り付け過程である。今回 Wax による剥離条件と基板処理による接着への影響を調べた。

3. プロセスに関する実験と検討

1) Wax の塗布と処理条件

Wax の弹性的な性質は、Wax を塗布するときの溶液体濃度、厚み及び乾燥条件によって決まる。それ

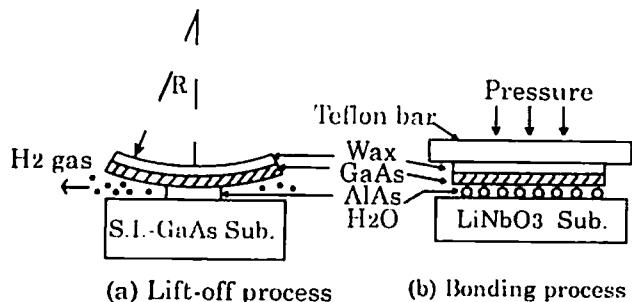


Fig.1 GaAs 薄膜の剥離とボンディングの過程

を評価するため、Wax/GaAs/AlAs 構造を模擬した Wax/Al/フッ素化ポリイミド構造を実験サンプルとした。Wax 乾燥温度、厚さ及びサンプルの温度をパラメータとした曲率半径 R の変化を測定した。

Fig.2 は Wax 厚を変化させたときの R 測定値及び GaAs 薄膜に与えられる応力の計算値を示す。この結果から Wax の厚みが厚くなるにつれて R は大きくなり、応力は小さくなる傾向が見られた。Wax の厚みは 150 μm 以上で、応力の大きさは約 0.01 GPa で、GaAs のヤング率 100 GPa よりかなり低いことが分かった。AlAs エッチング時、フッ酸液による GaAs 薄膜へのダメージを小さくするため、剥離時間を短くすることが望ましい。しかし、そり量がある程度以上大きくなると基板への張り付け時の密着が弱くなり GaAs の破損の原因となる。最適な Wax の厚みは約 200 μm であった。

Fig.3 は厚みが同じ Wax の R の乾燥処理温度依存

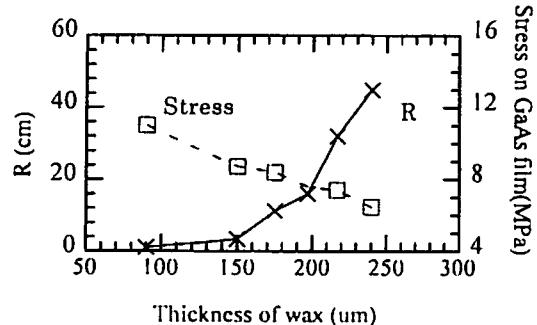


Fig.2 Wax 热処理による GaAs の応力

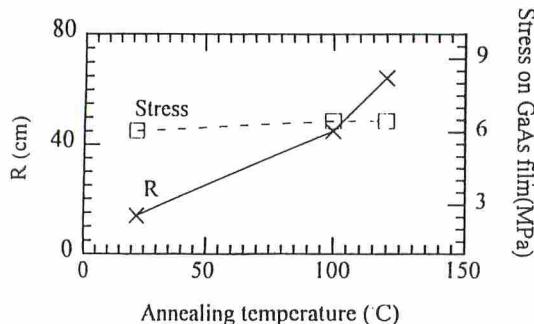


Fig.3 Wax 热処理による GaAs の応力 (厚みは 240μm)

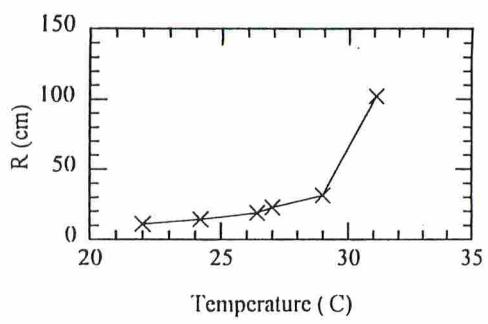


Fig.4 Wax の R と雰囲気温度 (厚みは 200μm)

性を示す。乾燥温度が Wax の軟化点 (120°C) まで高くなるにつれて R は大きくなる傾向が見られたが、薄膜に与える応力は大きな変化が見られなかった。これは温度変化により Wax の弾性係数が変化するだけで応力には大きな影響を与えないためである。

Fig.4 に R と雰囲気温度の関係を示す。R は室温より温度が高くなると大きくなる傾向が見られた。温度依存性から室温でも Wax が反り ELO 剥離プロセスができることがわかった。また貼り付けの観点から、室温で Wax が少しそることによって分子間力が働きやすく、容易に貼り付けることができる。

2) 基板の表面処理

貼り付けの問題点は、接着界面の汚れにより働く SAW 基板と薄膜との分子間力が弱くなることである。そこで酸素プラズマ処理により、基板表面を清浄とした。また、ELO 剥離、基板洗浄後、基板を空气中に出さずに水中で貼り付けを行うことで、基板の汚れを最小限に抑え界面の分子間力を高める。Fig.5 は上記の両方法で基板処理したものと未処理の GaAs 薄膜を高温で処理した表面を示す。処理した表面に張りつけた薄膜は 350°C での熱処理や 100W, 40kHz 超音波中でも破損することはなかった。

3) 機能素子の作製

プロセス条件を検討した上で AlGaAs/LiNbO₃ 構造の機能素子を作製した。半導体エピ層の構成は

n⁺GaAs (40nm) / nAlGaAs (80nm) / AlGaAs (300nm) / AlAs (50nm) とした。半導体エピ層を LiNbO₃ 基板に張り付けた後、オーミック電極 (Ge-Au-Ni, 110nm)、ショットキ電極 (Ti-Au, 70nm)、IDT (Al, 150nm) を作製した。Fig.6 に試作した機能素子の写真を示す。素子特性は別途で報告する^[3]。

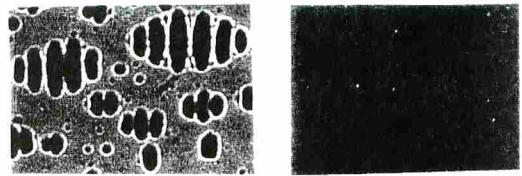


Fig.5 基板処理による GaAs 膜の表面 (倍率は 50[×])

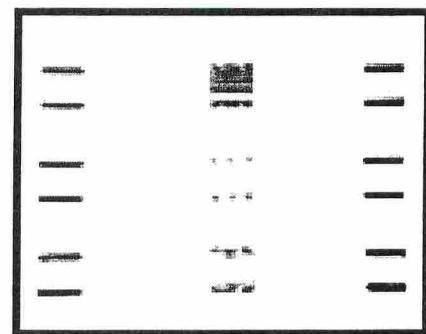


Fig.6 作製した機能素子

4. まとめ

SAW 基板上に化合物半導体薄膜を得るためのプロセス条件を検討し、ダメージフリー、接着力が丈夫な GaAs 膜が得られた。AlGaAs/LiNbO₃ 構造の機能素子を作製した。今後光結合機能素子、ワンチップリピータ等素子の試作を進める予定である。

謝辞

本研究は「ハイテククリサーチセンター第3プロジェクト」の助成により行われたものである。

参考文献

- 1) K. Hohkawa, H. Suzuki et al; JJAP, Vol.36, part 1, No.5B, pp.3109-3114, 1997
- 2) M. Rotter et al; Phys. Rev. Lett. 82, 2171 (1999).
- 3) 青木、兼城等；同予稿集

PC-7

GaSb/InSb/AlGaAsSb/LiNbO₃ 構造 高効率 Strip-coupled 型 SAW コンボルバ の開発

後藤 広将、綱嶋 正通、菅野 康人、久世 直洋、山之内和彦*
(旭化成中央技研、東北工大*)

1. はじめに

弾性表面波(SAW)コンボルバはスペクトル拡散(SS)通信システムの相関器として期待されている。しかし、現在提案されている SAW コンボルバでは、その用途は非常に限定されているのが現状である。我々は半導体型コンボルバをベースに新規な構造である strip-coupled 型の SAW コンボルバの作製を行った。高効率化のために、半導体構造および電極構造の最適化を行い、出力効率(F値)=−14 dBm を達成した。

2. SAW コンボルバの作製と効率測定結果

2-1 半導体薄膜の結晶成長

Molecular beam epitaxy(MBE)法を用いて、128° Y-X LiNbO₃基板上に半導体薄膜を結晶成長した。LiNbO₃基板上の半導体薄膜の構造を図1に示す。まず、150°Cの低温で

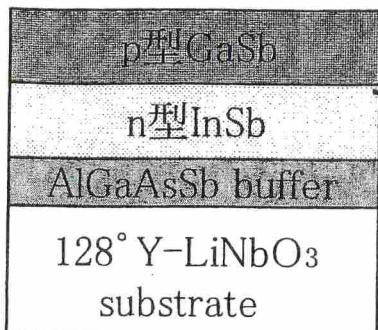


図1 LiNbO₃基板上の半導体薄膜構造

Al_{0.5}Ga_{0.5}As_{0.1}Sb_{0.9}バッファ層を50nm厚で成長するが、このAlGaAsSbバッファ層は成長初期における格子緩和が速いためバッファ層厚を薄くすることができるということと、高抵抗であるためSAWの電界をショートしない

という特徴がある。AlGaAsSbバッファ層を成長後、As、Sbを照射しながら360°Cまで昇温し、n型InSb層、p型GaSb層を順次成長する。その後Sbを照射しながら410°Cまで昇温し、10分間410°Cで後アニールを行った。InSb中の電子移動度の膜厚依存性を図2に示すが、AlGaAsSbバッファ層が挿入されることで、InSb層の電子移動度が向上していることから、InSb層の結晶性が大幅に向上した。[1]

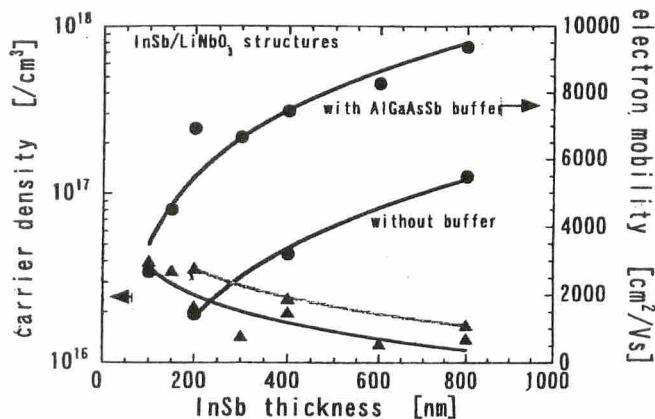


図2 電子移動度のInSb膜厚依存性

2-2 Strip-coupled 型 SAW コンボルバの作製

Strip-coupled型SAWコンボルバの構造を図3に示す。従来のSAWコンボルバと比較して、半導体層が伝搬路外に配置されているため、SAWの減衰を少なくすることができるという特長がある。コンボルバの出力は左右の電極から入力したSAWのポテンシャルをストリップ型の電極を通して半導体層に伝えることにより得られる。

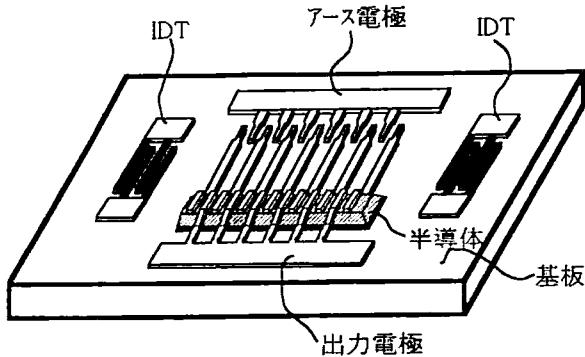
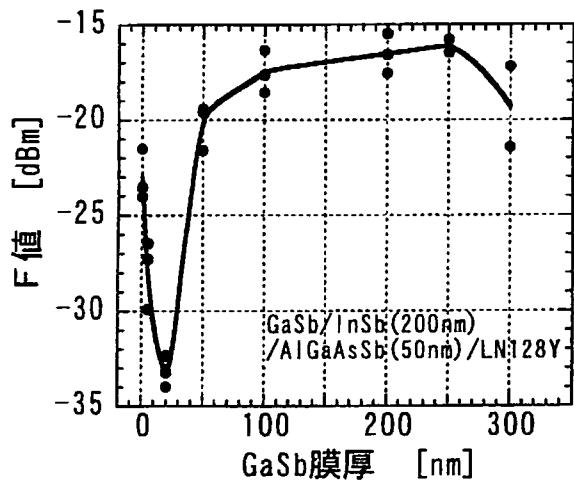


図3 Strip-coupled型SAWコンポルバ

左右の IDT は対数 36(帯域幅 3MHz) もしくは 20(5MHz)、中心周波数 165MHz(波長 $\lambda = 24 \mu\text{m}$) の正規型とした。出力電極部の構造は伝搬路上のストリップ幅を line 幅=space 幅 = $\lambda/8$ 、半導体上の line 幅=space 幅 = $\lambda/16$ として、半導体層の幅は 1 λ 一定で相互作用長は 2.4mm、4 mm とした。^[2]

2-3 効率測定結果

SAW コンポルバ効率の p 型 GaSb 膜厚依存性を図 4 に示す。IDT は対数 36、相互作用長



は 2.4mm のものを用いた。GaSb 膜厚は 0~300nm の間で変化させたが、0~20nm の間で効率が低下するのは GaSb 層が完全空乏化しており SAW のポテンシャルが半導体層に作用

しにくくなっているためであると考えられる。GaSb 膜厚 20nm 以上で SAW コンポルバの効率は向上するようになり 200nm で最大効率—15.5dBm を得た。更に出力電極部構造の最適化を行うことで、IDT 対数 20、相互作用長 4mm の SAW コンポルバで—14dBm の効率が得られた。

入力帯域幅 5MHz、相互作用長 32mm の SAW コンポルバに M 系列 31chip PN 符号を入力した際の相関出力を図 5 に示す。8μs 毎

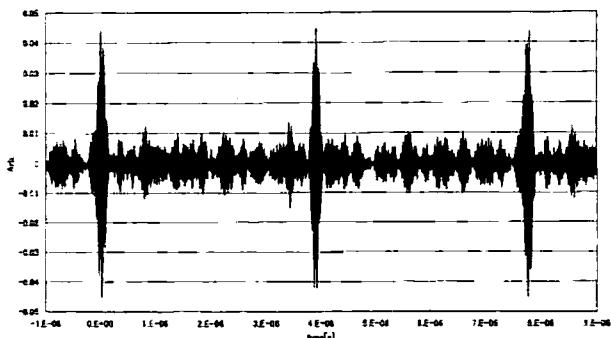


図5 Strip-coupled型SAWコンポルバの相関出力波形

に相関出力が得られており、Strip-coupled 型 SAW コンポルバが SS 通信用途の相関器として機能していることがわかる。

3. まとめ

圧電体基板上に高結晶性半導体薄膜を成長するために最適なバッファ層を検討し、高電子移動度を有する半導体薄膜の結晶成長を実現した。この半導体膜／圧電体基板構造を SAW コンポルバに応用し、今までにない高効率 SAW コンポルバを得ることに成功した。現在、実用化に向けシステムに適したデバイス構造について検討を進めている。

- [1] N. Kuze et al. 57th Device Research Conference Technical Digest (1999)
- [2] K. Yamanouchi et al., IEEE Ultrasonics Symposium Proceedings, vol.2, p. 1583 (1996).

浮き電極型一方向性斜め電極指 SAW フィルタ

谷津田博美、野口賢一、十山之内和彦 (日本無線株式会社、十東北工業大学)

1. はじめに

通過帯域幅の比較的広い IF フィルタで、80dB 以上の大さな帯域外減衰量を実現する方法を検討した。従来のマルチストリップスカブラー [1] を用いる方法によれば、50dB~60dB の帯域外減衰量を実現できるが、通過帯域内リップルを小さく設計することが難しく、さらに挿入損失は 20dB~30dB で比較的大きいという欠点がある。本論文では、広帯域フィルタに適する斜め電極指フィルタ [2,3] を利用して、挿入損失 14dB、通過帯域振幅リップル 0.5dB、帯域外減衰量 80dB の性能を持つ比帯域幅約 15% のフィルタを実現したので報告する。

2. 一方向性斜め電極指 SAW フィルタ

斜め電極指電極は、伝搬方向と平行な多数のチャネルに分割して考えると、中心周波数の異なる正規型電極の電気的並列接続とみなすことができる。各チャネルにおいて、一方向性化することで、広い帯域に渡って方向性を得ることができる [4]。図 1 に浮き電極型 [5] の一方向性斜め電極指フィルタの概略図を示す [6]。2 次効果を無視した等価回路シミュレーションによる検討の結果、入出力に整合回路を使用することで、挿入損失が 4dB 以下で、通過帯域内振幅リップルが 1dB 程度の性能が得られた。通過帯域内リップルは TTE であり、その大きさは挿入損失とトレードオフの関係にある。一方向性電極を用いることで、同じ挿入損失を持つ双方向性フィルタに比較してリップルを小さくすることができる。基板として $128y\text{-}x\text{LiNbO}_3$ を使用し、図 1 で示す浮き電極型一方向性斜め電極指で比帯域幅 15% のフィルタの周波数特性を計算した結果を図 2 に示す。間引き重み付け [3] により 40dB 程度の帯域外減衰量が実現されている。

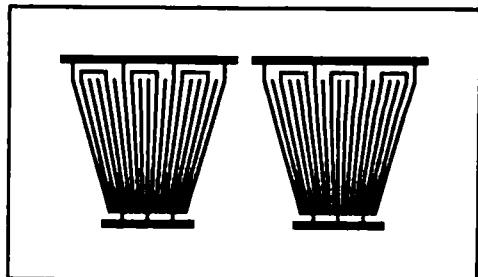
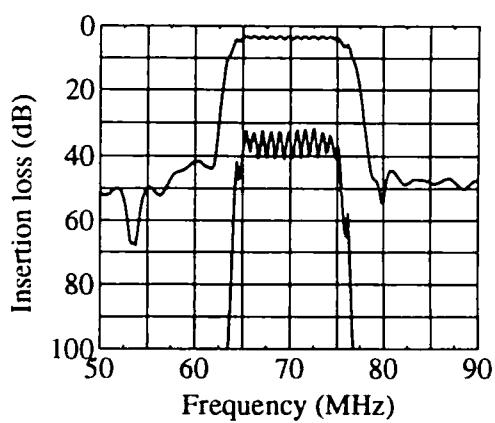
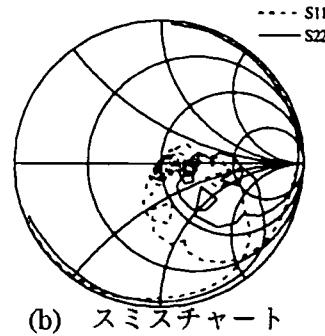


図 1 浮き電極型一方向性斜め電極指フィルタ



(a) 通過振幅特性



(b) スミスチャート

図 2 浮き電極型一方向性斜め電極指フィルタ
周波数特性 (計算値)

3. 縦続接続

帯域外減衰量として 80dB 以上を実現することを目的として縦続接続を検討した。縦続接続により高帯域外減衰量が期待されるが、挿入損失の増大、リップルの増大の欠点がある。

SAW Filter Using Floating Electrodes Type Slanted Finger Unidirectional Transducers
H. Yatsuda, K. Noguchi (Japan Radio Co., Ltd.)
K. Yamanouchi (Tohoku Institute of Technology)

しかし、図2で発生しているリップルはTTEに起因しているので、伝搬距離を $\lambda/4$ 変化させることでリップルの位相を180度異なるものにすることができる[7,8]。等価回路シミュレーションの結果、電極中心間距離が $1/4$ 波長だけ異なるフィルタを2段縦続接続することで、比帯域幅15%の通過帯域に渡って良好にTTEリップルがうち消されることが確認された。

4. 実験結果

一つのパッケージに二つのフィルタを実装し、外部整合回路としてチップインダクタを使用して測定した結果を図3に示す。中心周波数70MHz、比帯域幅約15%のフィルタが、挿入損失14dB、帯域外減衰量80dB、通過帯域内リップル0.5dBで実現された。計算値と比較すると挿入損失が大きく、また通過帯域振幅特性に1dB程度の傾きが発生している。シミュレーションによる検討の結果、整合回路用チップインダクタの持つ抵抗成分が大きく影響することがわかった。一方、帯域外高域側にバルク波応答が観測されるが、適切な裏面加工により抑圧可能と考えられる。

5. まとめ

縦続接続型一方向性斜め電極指フィルタは80dB以上の大きな帯域外減衰量を実現でき、さらに従来のフィルタに比較して挿入損失を小さくできるという特徴がある。整合回路が必要であるという欠点はあるが、通過帯域振幅特性の平坦化及びバルク波抑圧を含めて、今後さらに検討を続ける予定である。

参考文献

- [1]F. Marshall, C. Newton and E. Paige, IEEE Trans. vol. MTT-21, pp.216-225, 1973.
- [2]兵藤、山之内、柴山, 日本音響学会講演論文集, pp.193-194, 1968.
- [3]H. Yatsuda, IEEE Trans. vol. UFFC-44, pp.453-459, 1997.
- [4]L. P. Solie, 1998 IEEE Ultrason., Symp., pp.27-37, 1998.
- [5]山之内、古屋敷、日本音響学会講演論文集, pp.571-572, 1984.
- [6]谷津田博美、博士論文, 1999.
- [7]M. F. Lewis, Electronics Lett., 8, pp.553-554, 1972.
- [8]田熊、谷口、谷津田、信学総秋大, A-250, 1, p.255, 1993.

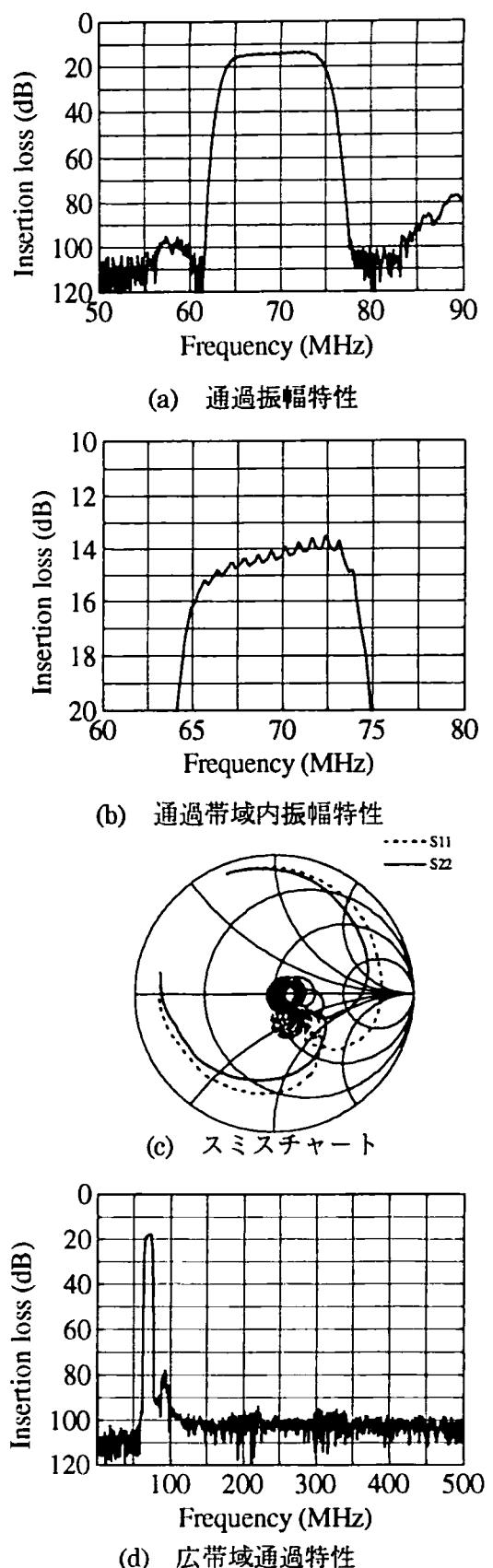


図3 縦続接続一方向性斜め電極指フィルタ周波数特性（実測値）

高調波を用いた ZnO/Diamond 構造 SAW フィルタ

八郷 昭広、中幡 英章、板倉 克裕、鹿田 真一（住友電工）

1. はじめに

ダイヤモンドは高い伝搬速度を持つ事が理論的に求められ、2.5 GHz で良好な特性を有する狭帯域フィルタの試作に成功している⁽¹⁾。通信分野の発展に伴いさらに高周波での動作が期待されており、水晶、LiNbO₃等で 5~15 GHz の報告がなされているが線幅が小さく量産化には適していない。ダイヤモンドは高伝搬速度を有するが、例えば 10 GHz を線幅 0.5 μm 以上の量産化レベルで実現するには高調波を用いる必要がある。本報告はバルク基板と層構造の高調波における特性の比較と、モデルの提案、及び実験との比較を行った。

2. バルク基板と層構造での高調波動作の違い

層構造の場合速度分散性を持つため、高調波の周波数特性はバルク基板と大きく異なる。基本波の周波数及び電気機械結合係数を f_0 、 k^2 、波長を λ 、波数を k 、周波数帯域幅を Δf 、高調波の次数を M 、高調波の波数を k_M 、薄膜の膜厚を h 、薄膜の無次元量 kh での層構造の伝搬速度を $v(kh)$ 、電気機械結合係数を $k^2(kh)$ 、零周波数帯域幅を $\Delta f(kh)$ とした時のバルクと層構造の高調波での周波数特性の違いをまとめたものを表1に示す。

表1 バルク基板と層構造の高調波周波数特性の違い

	バルク	層構造
波長	λ/M	λ/M
波数	Mk	$k_M=Mk$
M 倍高調波の周波数	Mf_0	$\frac{v(k_M h)}{v(kh)} M f_0 < M f_0$
電気機械結合係数	k^2	$k^2(k_M h)$
周波数帯域幅	Δf	$\Delta f(k_M h) \neq \Delta f(kh)$

3. 高調波のモデル化

バルク基板の場合、高調波のモデル化は表面電荷密度分布⁽²⁾から求められるものと、それを Smith の等価回路モデルに組み込んだモデル⁽³⁾が良く知られているが、

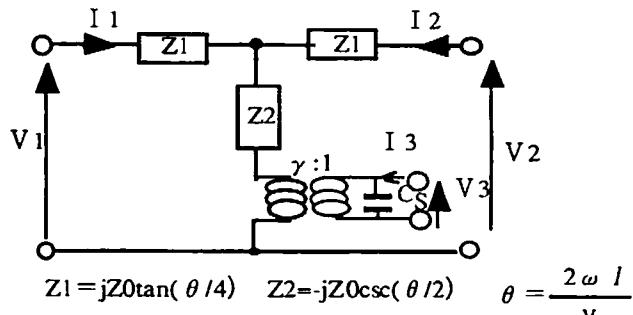


図2 Smithの等価回路（表面 free の場合）

速度分散性を含んだ層構造の場合、高調波対応のモデル化はない。圧電性が小さく表面電荷密度分布理論が成り立つと仮定し、Smith の等価回路モデルより得られる IDT のコンダクタンス、及び容量を比較した。図2には表面 free の場合の Smith の等価回路を示す。また、表2にバルクと層構造のパラメータの違いを示す。

表2 バルクと層構造の等価回路パラメータ

	バルク	層構造
θ (電極 free)	$\theta_f = \frac{4\pi f}{v_f} \frac{1-\eta}{\eta} dm$	$\theta_f = \frac{4\pi f}{v_f [k_M h(f)]} \frac{1-\eta}{\eta} dm$
θ (電極)	$\theta_m = \frac{4\pi f}{v_f} \frac{\eta}{1-\eta} df$	$\theta_m = \frac{4\pi f}{v_m [k_M h(f)]} \frac{\eta}{1-\eta} df$
電極容量 C_s	$C_{0s} M_1(\eta)$	$C_{0s}(k_M h) M_1(\eta)$
$\gamma^2 Y_0$	$C_s f_0 k^2 M_2(\eta)$	$C_s (k_M h) f_M k^2 (k_M h) M_2(\eta)$
$\gamma^2 Y_{0M}$	$C_s M f_0 k^2 M_2(\eta)$	$C_s (k_M h) f_M k^2 (k_M h) M_2(\eta)$
Y_{0M}	MY_0	$\frac{v_f(kh)}{v_f(k_M h)} MY_0 = \frac{f_0}{f_M} M^2 Y_0$

表2で η はメタル比、 df 、 dm は電極間距離、及び電極線幅、 f は周波数、 f_0 は基本波の周波数、 f_M は層構造の M 倍高調波の周波数 C_0 はメタル比 $\eta=0.5$ での電極 1 本当たりの容量、 C_{0s} は電極 1 対当たりの容量、 C_s は電極線幅の影響を考慮した 1 対当たりの電極容量、 v_f 、 v_m は電極 free、及びメタルが存在する場合の伝搬速度である。また、 Y_0 は基本波の音響アドミタンス、 Y_{0M} は高調波の音響アドミタンスである。層構造の場合、速度分散性のため伝搬速度が周波数依存性を持つ。また、 $k h$ により速度の分散性が異なるため、 M 倍高調波の分散は

IDT/ZnO/Diamond Structure SAW Filters using Harmonics.

Akio Hachigo, Hideaki Nakahata, Katsuhiro Itakura and Shinichi Shikata.

Itami Research Laboratories, Sumitomo Electric Industries, Ltd.

k_{Mh} 近傍の速度分散性を用いる必要がある。電極容量 C_s 、及び電気機械結合係数は層構造の場合、膜厚により異なるため、電極容量、及び電気機械結合係数は k_{Mh} での電極容量、及び電気機械結合係数を示す。

但し、 $M_1(\eta)$ 、 $M_2(\eta)$ はメタル比に依存する係数で、次式で与えられる。

$$M_1(\eta) = K \left(\sin\left(\frac{\pi\eta}{2}\right) \right) / K \left(\cos\left(\frac{\pi\eta}{2}\right) \right)$$

$$M_2(\eta) = \frac{P_m^2(-\cos(\pi\eta))K^2\left(\sqrt{\frac{1}{2}}\right)}{K\left(\cos\left(\frac{\pi\eta}{2}\right)\right)K\left(\sin\left(\frac{\pi\eta}{2}\right)\right)}$$

ここで、 $K(m)$ は第 1 種完全楕円積分であり、 $P_m(x)$ は m 次 Legendre 多項式の係数である。層構造では電気機械結合係数も周波数依存性を持つが、その影響は小さくこのモデルでは無視している。

4. 実験と結果

実験にはダブル電極を用いた。条件は、電極線幅 $0.7 \mu m$ 、電極間距離 $0.9 \mu m$ 、基本波の波長 $\lambda = 6.4 \mu m$ 、IDT 対数 40 対、電極交差幅 15λ 、ZnO 膜厚は基本波 KH で 1.05、Al 膜厚 780 \AA 、構造は IDT/ZnO/Diamond 構造である。高調波は 0 次モードの 3 倍高調波を用いている。図 3 に周波数特性を示す。挿入損失 -11.3 dB、中心周波数 2.5 GHz が得られている。今回の実験では整合は取られていない。また、図 4 に今回導入した速度分散性を含んだ高調波対応シミュレーションソフトによる計算結果を示す。図 3、4 よりシミュレーション結果は実験を良く再現しており、このモデルが有効であることを示している。図 5 は線幅 $0.9 \mu m$ 、線間 $0.6 \mu m$ のシングル電極で試作した周波数特性の一例である。 10.5 GHz が 2 次モード 7 倍高調波で得られている。

5. まとめ

速度分散性を含む層構造の高調波用等価回路モデルを提案し、従来のパルク基板の場合と比較を行った。また、シミュレーションソフトを開発し実験結果と比較した。その結果、今回提案したモデルが実験結果を良く反映している事が分かった。さらに、Line&Space それぞれ $0.5 \mu m$ 以上でも 10 GHz での動作を確認出来、 10 GHz までの SAW フィルタの展望が見えてきた。

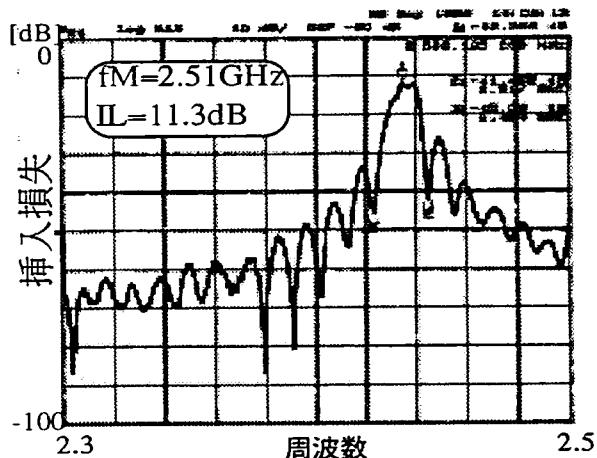


図 3 周波数特性 (ダブル、基本波 $\lambda = 4.6 \mu m$)

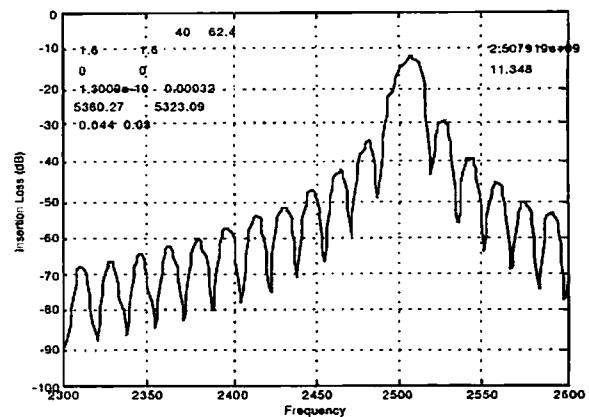


図 4 0 次モード 3 倍高調波のシミュレーション結果

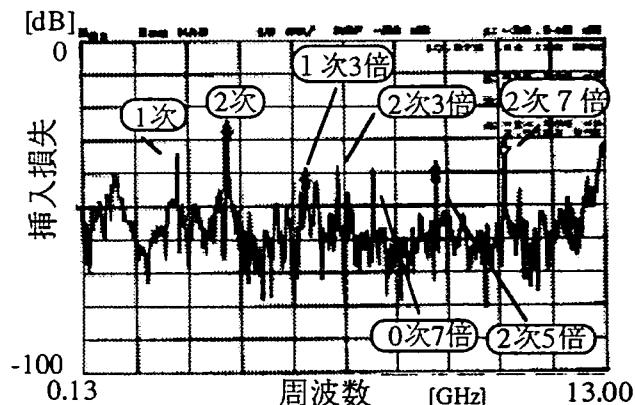


図 5 周波数特性 (シングル電極、df:dm=0.9:0.6 μm)

6. 参考文献

- (1) H.Nakahata et al., IEEE Ultrason Symp. Proc., pp285-288, 1996.
- (2) R.C.Peach, IEEE Trans. Sonics and Ultrason., vol. SU-28, No.2, pp96-105, 1981.
- (3) 児島、小原、電気学会マイクロ EM 回路デバイス調査専門委員会資料, No.12-39, 1990.

端面反射を利用したBGS波 横結合共振子型フィルタ

門田道雄、吾郷純也、堀内秀哉、森井春雄
(株)村田製作所

1. まえがき

Bluestein-Gulyaev-Shimizu wave(BGS波)は、横方向に分極された圧電セラミック基板上を分極方向と垂直方向へSH(shear horizontal)型の変位だけをもって伝搬する。このSH波は誘電率の大きい基板の端面では完全反射するという特徴をもっている。この基板端面での反射を用いれば反射器の不要な超小型な共振子を実現出来る¹⁾²⁾³⁾⁴⁾。筆者らは、基板材料、製造上、設計上の多くの課題を解決して圧電セラミック基板を用いた端面反射型BGS波共振子の開発・実用化に成功した²⁾³⁾⁴⁾。現在、それらは小型、無調整の利点から主にテレビやVTR(VCR)の映像中間周波数增幅(VIF)回路における補助トラップや、ディジタルビデオムービー(DVC)のジッタ補正VCO(voltage control oscillator)用等の共振子として、市場で広く使用されている²⁾³⁾。今回、端面反射を用いたBGS波の共振子型フィルタの検討を行った。共振子型フィルタには縦結合と横結合型の2種類がある。反射器を必要とするレイリー波の場合にはどちらの報告もあるが、SH波の場合には反射器を用いた横結合型共振子フィルタも端面反射を用いたフィルタの報告もない。BGS波(SH波)の端面反射を利用した共振子型フィルタは筆者らの縦結合型が最初である⁵⁾。今回、BGS波の端面反射を応用した横結合共振子型フィルタの検討を行い、低挿入損失で小型なフィルタを実現した。また共振子型フィルタの帯域は基板に依存するため帯域の設計に自由度がないがスプリット電極を用いることにより狭帯域化を実現できた。

2. 端面反射を利用した横結合型共振子フィルタ

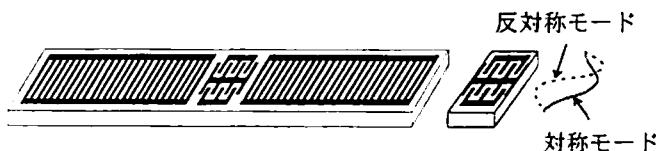
共振子型フィルタは、振幅特性、位相特性を独立して設計出来ない、帯域は基板の電気機械結合係数に依存するため設計に自由度がない等の欠点があるものの、挿入損失は格段に小さいという利点を有している。図1(a)に示すように通常のSAW横結合共振子型フィルタはたれ状電極(IDT)の両側に多数の電極指からなる反

射器を必要とするのに対し、BGS波を用いた場合、BGS波共振子の場合と同様、図1(b)に示すように基板端面での反射を利用する事が出来るため、反射器が不要な、格段に小型な共振子型フィルタが構成出来ると考えられる。また、用いたBGS波共振子フィルタ用圧電セラミック基板は通常のSAWデバイス用に用いられている単結晶に比べ、音速が遅いため(単結晶の約2/3)、この点からも小型化に有利である。なお、この基板の1°C当たりの周波数の変化(周波数温度特性)は7ppm/°Cと良好である。

この端面反射を利用した横結合共振子型フィルタの場合、共振子と同様、基板端面で反射する偶モードのスプリアスは、IDTで決定される周波数スペクトルの極と一致させることにより、励振されない。この点に関して横結合型共振子フィルタは縦結合型に比べて有利である。圧電セラミック基板の誘電率は大きいため、フィルタ設計には素子のインピーダンスが小さくなりすぎないように極力IDTの交叉幅を小さくしなければならない。また圧電セラミックを用いたBGS波横結合型共振子フィルタでは、2つのIDT間の距離を短くすることにより、対称モードと反対称モードの2つのモードが結合しやすくなり、交叉幅方向にさらに小型化出来る。シングル電極およびスプリット電極で設計された2種類の横結合共振子型フィルタの例を報告する。それらの素子とパッケージ後の完成品の写真を図2に示す。

3. シングル電極で設計された横結合共振子型フィルタ

周波数拡散(Spread Spectrum : SS)方式コードレス電話では拡散符号を用いて低い信号レベルで広い周波数帯に拡散変調している。そのため高い耐ノイズ性や秘話性等の特徴を有する。1st IFフィルタは受信側において拡散符号で逆拡散された後、隣接チャンネルやイメージ点等の不要な信号除去のために使用される。拡散、逆拡散に使用されるICの高周波化がコスト的に不利なため100MHz以下の51.86MHzが採用されている。



a) 反射器を用いた従来型 b) 端面反射を利用したBGS波
横結合共振子型フィルタ 横結合共振子型フィルタ

図1. BGS波と従来型共振子フィルタ

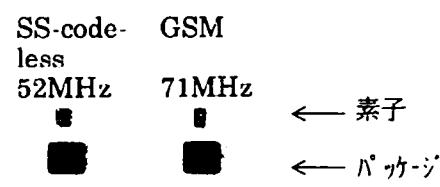


図2. 開発した各種BGS波フィルタの例

必要とされる3dB帯域は1%であり、電気機械結合係数0.2の基板を用いて、横結合3段で設計した。この周波数帯のフィルタを従来のSAWフィルタで作成すると非常に大きなサイズのフィルタになるが、端面反射を利用したBGS波フィルタを用いると図2の左側に示したように、非常に小さな素子($2.3 \times 2\text{mm}$)となり、小型のパッケージ($5.2 \times 4.5 \times 1.75\text{mm}$)で構成できる。図3にこの周波数特性を示す。測定はマッチングコイルを使用せず、 50Ω 系で測定した。挿入損失は4dBと低損失であり、中心周波数±740kHzで35dB、イメージ点(30.26MHz)で58dBの十分な減衰量が得られている。

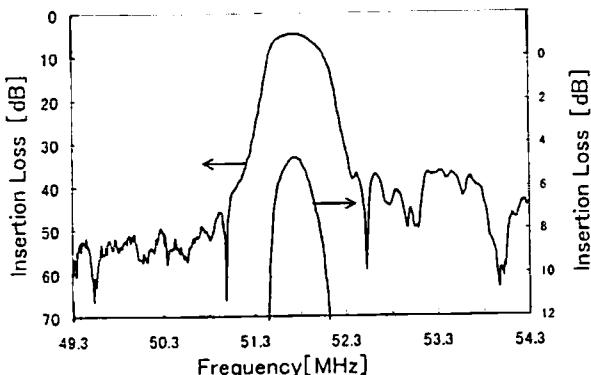


図3. 51.86MHz-SSコードレス用1st IFフィルタの周波数特性

4. スプリット電極により狭帯域化されたフィルタ
GSM(Global System for Mobile Communication)用携帯電話の1stIFフィルタには、71MHzのフィルタが用いられてきた。このフィルタに必要とされる3dB帯域は0.2%以上で、先ほどの圧電セラミック基板より小さい電気機械結合係数をもつ基板が必要である。しかし適した電気機械結合係数をもつ基板がないため、この基板を用いて設計することにした。スプリット電極を用いた場合の実効的な電気機械結合係数 k_{eff} ⁶⁾はシングル電極の場合の70%の値となる⁶⁾。図4にシングル電極とスプリット電極で設計された横結合3段の構成による特性を破線と実線で示す。スプリット電極を用いることにより55%の狭帯域化が実現されている。その手法

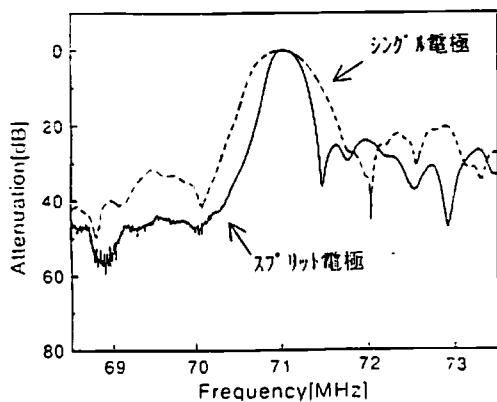


図4. シングル電極とスプリット電極で設計された横結合共振子型フィルタの周波数特性

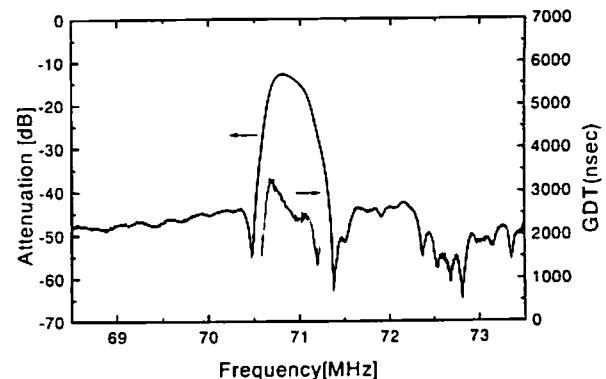


図5. 71MHz-GSM用1st IFフィルタの周波数特性

で作成した71MHzの横結合4段からなる共振子型フィルタの周波数特性を図5に示す。図2の右側に示すようにこのフィルタの素子($1.5 \times 2.5\text{mm}$)およびパッケージ($5.2 \times 4.5\text{mm}$)共に非常に小さい。従来の手法を用いていろいろな工夫で極力小型化されたGSM用71MHzフィルタですらサイズは 9.1×4.8 から $13.3 \times 6.5\text{mm}$ のサイズであることから⁷⁾、このBGS波を用いたフィルタがいかに小型であるかがわかる。また、従来のSAWフィルタではインピーダンスマッチング用コイルを必要とするのに対し、このBGS波フィルタではマッチングコイルを必要とせず、実装上さらにスペースメリットやコストメリットがあるのも特徴である。なお、挿入損失が図3のフィルタに比べ大きいのは、用いた基板の高周波特性が良くないのが一因である⁸⁾。

5. むすび

SH波を用いた横結合共振子型フィルタ(反射器型、端面反射型共に)の報告はなかったが、今回、圧電セラミック基板上に励振されるBGS波の端面反射を利用し、低損失、超小型な横結合型共振子フィルタを実現した。また、従来、共振子型フィルタの帯域は基板の電気機械結合係数に依存し、設計に自由度がなかったが、スプリット電極を用いることにより、狭帯域化を可能にした。圧電セラミックの場合には、伝搬損失や誘電率の関係から高周波化にある程度の限界があるが、今後、高周波化に適した圧電セラミックの実現が期待される。

引用文献

- 1)Y.Suzuki, H.Shimizu, M.Takeuchi, K.Nakamura, and A.Yamada : IEEE Ultrason. Symp., p.297, May 1976.
- 2)M.Kadota, K.Morozumi, T.Ikeda, and T.Kasanami : Jpn. J. Appl. Phys., Suppl.-31, p.219 (Jan 1992).
- 3)門田 諸角, 米山:信学会超音波研究会US-91-80, p.21(1992.1).
- 4)M.Kadota, J.Ago, and H.Horiuchi : IEEE Trans. on Micro-wave, Theory & Tech., MTT-44, 12, p.2758 (Dec. 1996).
- 5)諸角 門田, 山田, 森井:第18回超音波シンポジウム, p.5(1997.11).
- 6)WR.Smith and WFPedler : IEEE trans. Microwave Theory & Tech., MTT-23.11, p.853(Nov. 1975).
- 7)S.Ichikawa, Y.Ebata, M.Koshino, and N.Mishima : IEEE Ultrason. Symp. p.43 (Oct. 1998).
- 8)K.Morozumi, M.Kadota, and S.Hayashi : Jpn. J. Appl. Phys., p.2991(May 1996).

PC-11

電圧制御発振器用広帯域SAW共振器の高Q化

磯部 敦 正田 光孝 浅井 健吾(日立中研) 住岡 淳司(日立電子)

1. はじめに

15度回転YカットX伝搬ニオブ酸リチウム基板(15YX-LN)のラブ波型弹性表面波(SAW)は極めて大きい圧電効果を示す[1].特に15YX-LN上に厚いアルミニウム(AI)グレーティング構造を有するラブ波型SAW共振器は、移動通信端末の電圧制御発振器(VCO)用共振器に適する[2].既に本共振器を用いた広可変幅、低位相雑音の150MHz帯/400MHz帯VCOが報告されている[2][3].しかし1GHz帯VCOでは、150MHz帯/400MHz帯VCOから予想される広可変幅と低位相雑音が得られてない[4].本発表では1GHz帯VCOの特性改善を目的にSAW共振器のQ値の検討を行ったので報告する.

2. グレーティングモード的なラブ波型SAW

15YX-LN基板上に厚いAIグレーティング構造を形成すると、グレーティングモード的なラブ波型SAWが伝搬する[2].金電極で励振されるラブ波型SAW[1]は金の質量負荷効果で漏洩SAWからラブ波型SAWにモード変化するのに対して、本ラブ波型SAWは電極指エッジにおけるエネルギー停留現象によりモード変化する点が異なる.また電極膜を厚くできるので電気抵抗損を小さくできる.

しかし、本ラブ波型SAWのAI電極膜は電極周期Pの0.125倍の膜厚に設定する必要があるため、高周波化に伴い、薄膜化し、電気抵抗損に起因するQ値の劣化を招く.このため、電極対数、開口長、及びバスバーの配置を最適化し、低損失化の検討を行った.

3. SAW共振器

図1に電極指の抵抗損を低減した菱形ラブ波型SAW共振器、図2に通常のラブ波型SAW共振器の電極の概略図を示す.共にIDT (Interdigital Transducer)型一開口共振器であり、アボタイツ法により菱形の重み付けが施されている.菱形ラブ波型SAW共振器では側部に近い電極指が短いため、通常のラブ波型SAW共振器より電気抵抗損とチップ面積を小さくできる長所がある.しかし高次縦/横モードに起因するスプリアスの理論解析が困難であり、また反射器の本数が不十分だと、両側部からの弾性エネルギー漏洩によりQ値は劣化する可能性がある.

図3に試作した菱形ラブ波型SAW共振器と通常のラブ波型SAW共振器のQ値の測定結果を示す.電極の対数は160対、電極周期Pは $3.2\mu\text{m}$ である.電気抵抗損を低減するため、対数はチップサイズ($0.8 \times 0.8\text{mm}$)の許す範囲で最大に設定した.また菱形ラブ波型SAW共振器には電極指交差部とバスバーの間に10本の反射器を設置した.通常のラブ波型SAW共振器には両側部に10本の反射器を設置した.両共振器共に、切り出したチップをガラエボ基板にダイボンドし、ボンディングワイヤで端子を取り出し、ネットワークアナライザで評価した.Q値は周波数に依存するため、50オーム系で測定した反射特性から求まるインピーダンスZと角周波数 ω から次式を用いて算出した.

$$Q = \frac{\omega}{2} \frac{1}{\text{Re}(Z)} \frac{\partial \text{Im}(Z)}{\partial \omega}$$

VCOではSAW共振器に直列に伸長コイルを接続し、共振周波数 f_r (1110MHz)より低周波側で発振させるため、Q値は1040MHzと1090MHzの2点で比較した.

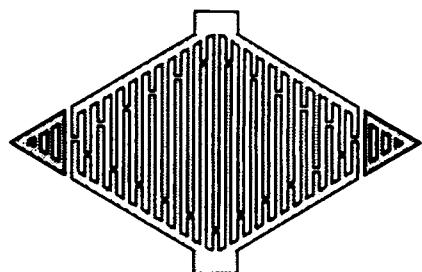


図1 菱形ラブ波型SAW共振器

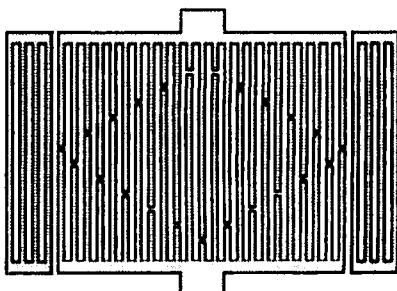


図2 通常のラブ波型SAW共振器

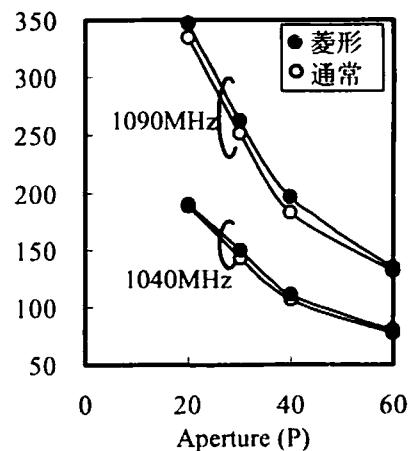


図3 電極構造とQ値の比較

図3によるとラブ波型SAW共振器では開口長を狭くするほどQ値は良くなる。特に開口長20PのQ値は200~350程度と優れた値を得ることができる。また全体的に菱形ラブ波型SAW共振器の方がやや高いQ値を得る。これは電極指の電気抵抗低減の効果と思われる。以上のことから本検討では菱形ラブ波型SAW共振器を用いた。

図4に菱形ラブ波型SAW共振器のインピーダンス特性を示す。開口長は40Pであり、前試作共振器(対数80対、開口長80P[4])と等価的に同じ静電容量を有する。 f_r の高周波側にレイリー波と横モードに起因するスプリアスが発生したが、発振周波数は低周波側であるため、VCO特性に影響はない。低周波側の縦/横モードに起因するスプリアスは完全に抑圧できた。また f_r のQ値を1090MHzのQ値で近似すると、本共振器のQ値は210(前試作共振器100)で、前試作素子より2倍程度向上している。なお容量比は4.0であり、前試作共振器と変わらない。

4. 電圧制御発振器

発振用トランジスタ、緩衝増幅器等が集積された市販のVCO用シリコンバイポーラICと本菱形ラブ波型SAW共振器を用いて1GHz帯電圧制御発振器を試作した。ICの外部に伸長コイル、ラブ波型SAW共振器、帰還コンデンサ、可変容量等を接続することにより、コルピツ型発振器として機能する。SAW共振器と可変容量の接続回路は前試作VCO[4]と同じとした。

図5に発振周波数近傍の周波数特性図、図6に発振周波数、位相雑音の制御電圧依存性を示す。測定にはVCO/PLLシグナルアライザーハイブリッドHP4352Aを用いた。スプリアス成分の無い発振スペクトルが得られている。また制御電圧0.3~2.3Vで周波数可変幅50.0MHz(2.3%/V)、 $<-106\text{dBc}/\text{Hz}$ (offset周波数25kHz)、発振出力-3.2dBm以上、消費電流9.0mA(電源電圧2.4V、消費電力21.6mW)と優れた特性を得ることが出来た。

5. まとめ

AIグレーティング構造を有する15YX-LN基板上に伝搬するグレーティングモード的なラブ波型SAW共振器のQ値の検討を行った。その結果、開口長を狭くし、菱形ラブ波型SAW共振器を用いることで、Q値は350と優れた値を得た。また210のQ値を有する菱形ラブ波型SAW共振器とシリコンバイポーラICを用いて、1000MHz帯SAW-VCOを試作し、広周波数可変幅、低位相雑音特性を得ることが出来た。今後、狭い開口長の菱形ラブ波型SAW共振器のSAW-VCOへの適用を検討する予定である。

6. 参考文献

- [1] H. Shimizu, et.al, Ultrasonics Symposium., pp. 103-108, 1990.
- [2] 磯部等, 電子情報通信学会総合大会講演論文集 A-11-15, pp. 290, 1997年.
- [3] 磯部等, 第27回EMシンポジウム, pp. 93-96 1998年.
- [4] 磯部等, 第19回超音波シンポジウム, pp. 9-10 1998年.

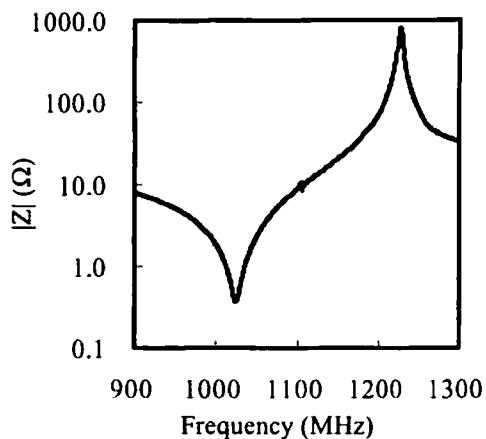


図4 SAW共振器のインピーダンス特性

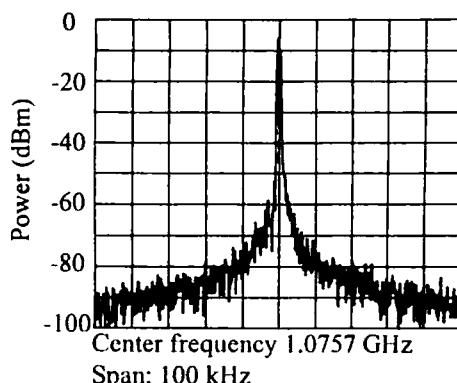


図5 SAW-VCOの発振スペクトル

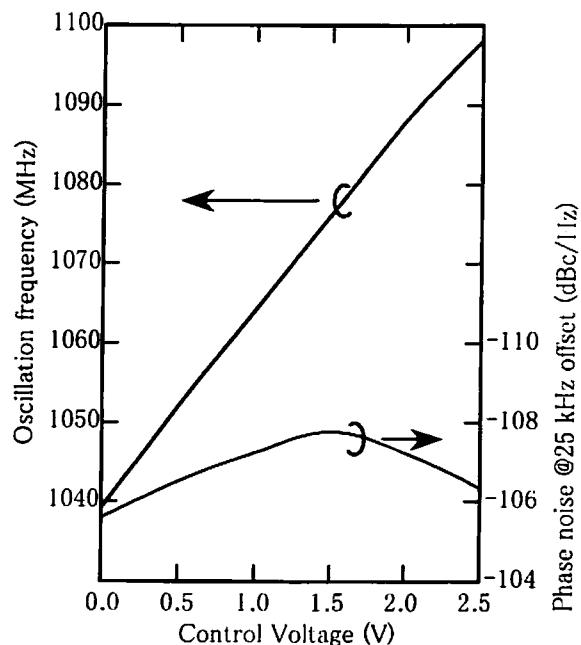


図6 SAW-VCOの発振特性の制御電圧依存性

音響多層膜を用いた圧電薄膜共振子の解析*

神原 博文、小林 英晃、中村 喬良（東北大院・工）

まえがき 基板上に音響インピーダンスが異なる二種類の $\lambda/4$ 層を交互に積層し、その上に $\lambda/2$ の圧電膜を付けた構造の音響多層膜圧電共振子は、500MHz 以上の超高周波帯用共振子として期待される[1]-[3]。このような $\lambda/2$ モード構成の共振子では、圧電膜に接する音響多層膜第 1 層が低音響インピーダンス層となっており、圧電膜中に $\lambda/2$ の定在波がのった共振が生じる。しかし、その特性は十分解明されているわけではない。一方、多層膜第 1 層を高音響インピーダンス層とし、圧電膜の厚さを $\lambda/4$ とすれば、圧電膜を片面固定の状態に近づけることができ、圧電膜中に $\lambda/4$ の定在波がのった共振が生じると考えられる。この $\lambda/4$ モード構成についてはこれまで全く検討がなされていない。本稿では、 $\lambda/2$ モード構成および $\lambda/4$ モード構成の圧電薄膜共振子を解析し比較を行った結果について報告する。

共振子構造と等価回路 図 1 の構造の厚み振動共振子を考える。圧電膜、電極、基板、低インピーダンス層、および高インピーダンス層の音響インピーダンス Z と厚さ d には、それぞれ下添字 p、e、s、l、h を付けて表することにする。共振子全体を分布定数等価回路[3]で表し、多層膜のインピーダンス Z_l 、 Z_h 、および層数 n を様々な値に設定して電気的入力アドミタンス Y_{in} 、変位 u 、電気的 Q 、実効的電気機械結合係数 K_{eff} を求めた。この際、音波の伝搬減衰を考慮するために弾性定数を $c=c_e(1+j(1/Q_m))$ とした。紙面の関係で、以下では圧電膜は ZnO、電極は Al、基板は Si ($Z_e=0.480Z_p$ 、 $Z_s=0.578Z_p$ 、 $K=0.29$ 、 $d_e=0.0198\lambda_e$ 、 $Q_{mp}=1500$ 、 $Q_{me}=500$ 、 $Q_{ms}=3000$ 、 $Q_{ml}=Q_{mh}=2000$) と仮定し (K : 電気機械結合係数、 λ_e : 電極内の音波の波長) 圧電膜の Z が多層膜を構成する二種類の Z の幾何平均に等しい ($Z_lZ_h=Z_p^2$) とした場合について、解析結果を示す。

$\lambda/2$ モード構成の解析結果 図 2 は $Z_h/Z_l=3.0$ の場合における Y_{in} の計算結果である。破線は両面自由圧電膜のアドミタンス特性である。 n の増加に伴い共振および反共振のピークが鋭くなっている。反共振周波数は両面自由の場合の値に一致しているが、共振周波数は両面自由の場合より高くなっている。これは、共振周波数付近では多層膜の厚さが $\lambda/4$ からずれているために、共振周波数がシフトしたものである。

図 3 は電気的 Q の層数依存性を示している。破線は圧電材料の Q_m である。 n の増加に伴って Q は大きくなり、ある値に収束している。 Z_h/Z_l が大きいほど少ない層数で収束することが分かる。

K_{eff} の層数依存性を図 4 に示す。破線は両面自由圧電膜の K_{eff} である。 K_{eff} は層数によらずほぼ一定の値をとる。 Z_h/Z_l が大きいほど両面自由圧電膜の値に近づく。 K_{eff} は、両面自由の場合より少し小さな値となることが分かる。

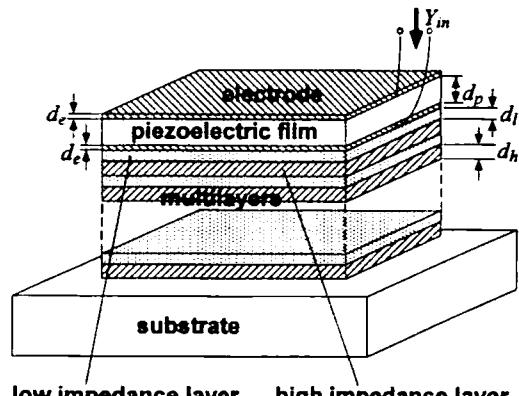


図 1 共振子の構造($\lambda/2$ モード構成)

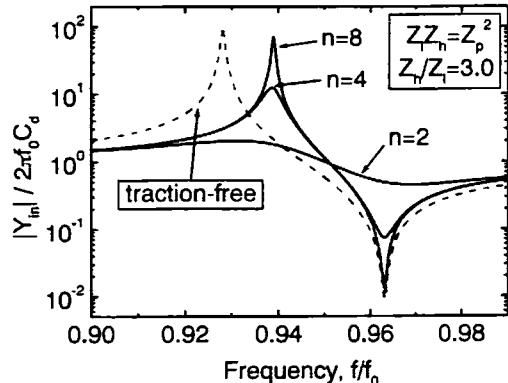


図 2 アドミタンス特性($\lambda/2$ モード構成)

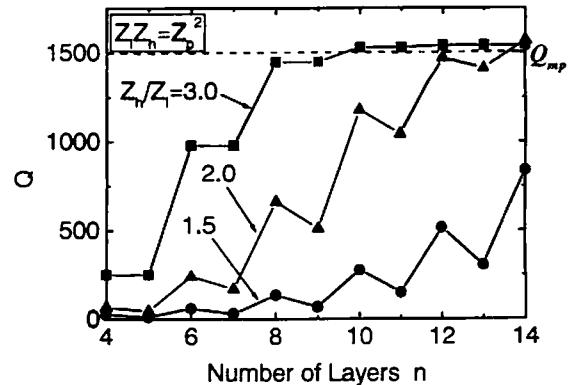


図 3 Q の層数依存性($\lambda/2$ モード構成)

* Analysis of Piezoelectric Thin Film Resonators with Acoustic Quarter-Wave Multilayers

By Hirofumi KANBARA, Hideaki KOBAYASHI, and Kiyoshi NAKAMURA (Graduate School of Engineering, Tohoku University)

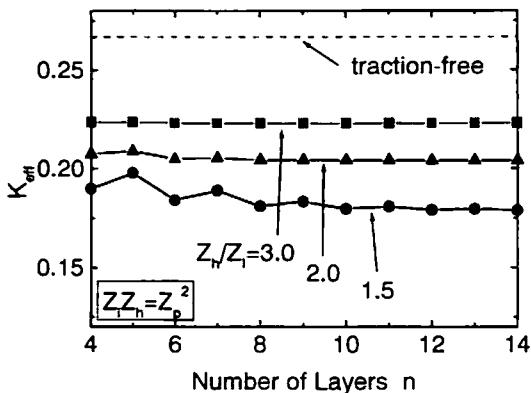


図 4 K_{eff} の層数依存性($\lambda/4$ モード構成)

$\lambda/4$ モード構成の解析結果 図 5 は $Z_h/Z_l=3.0$ の場合における Y_{in} の計算結果である。破線は片面固定圧電膜のアドミタンス特性である。

層数 $n=7$ 、 $Z_h/Z_l=3.0$ の場合について、電気端子開放時の共振周波数(電気端子から見た反共振周波数)における変位 $|u|$ の分布を図 6 に示す。圧電膜内にはほぼ $\lambda/4$ の定在波が生じている。多層膜内では基板に近い層ほど変位が小さくなっている。 $\lambda/4$ モード構成では、下部電極が振動の節に相当し、変位の勾配、つまり歪が大きい。(このため、後述するように電極材のスティフネスおよび Q_m が共振の Q および電気機械結合係数 K_{eff} の値にかなり影響する。)

図 7 は Q の層数依存性を示している。破線は圧電材料の Q_m である。 Q の収束値は $\lambda/2$ モード構成の場合より若干低い。これは、下部電極が歪の大きい振動の節に位置しており、 Q_m の低い電極材の損失が影響するためである。

図 8 に K_{eff} の層数依存性を示す。破線は片面固定圧電膜の K_{eff} である。 K_{eff} は $\lambda/2$ モード構成の場合よりは若干小さい。これは、多層膜中のエネルギー分布が同じでも、 $\lambda/4$ モード構成の方が圧電膜の厚さが薄い分、共振子全体に対する圧電膜中の振動エネルギーの割合が小さいためである。また歪最大の位置に非圧電体である電極が存在することも一因と考えられる。

まとめ 音響多層膜を用いた圧電薄膜共振子の解析を行った結果、十分な特性が得られることが分かった。 $\lambda/4$ モード構成の利点は圧電膜の厚さが $\lambda/2$ モード構成の半分でよいことにあるが、特性的には $\lambda/2$ モード構成の方が若干有利であると思われる。

参考文献

- [1] K.M.Lakin, et al. : Proc. 1995 IEEE Ultras. Symp., pp.905.
- [2] G.D.Mansfeld and S.G.Alekseev : 1997 IEEE Ultras. Symp., pp.891
- [3] K.Nakamura and H.Kanbara : Proc. 1998 IEEE Int. Freq. Contr. Symp., pp.876.

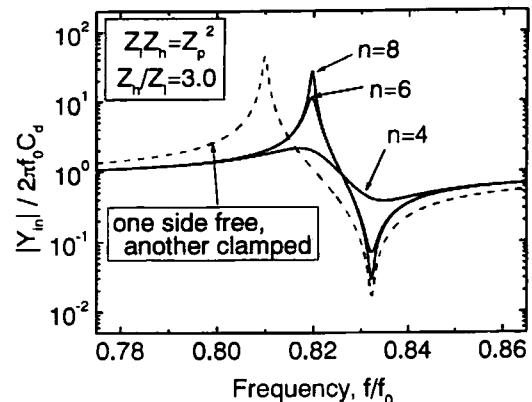


図 5 アドミタンス特性($\lambda/4$ モード構成)

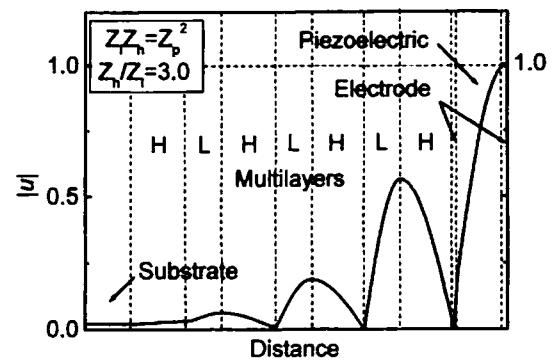


図 6 $|u|$ の分布($n=7$ 、 $\lambda/4$ モード構成)

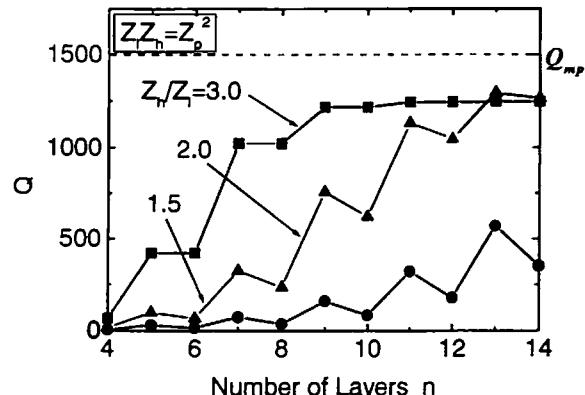


図 7 Q の層数依存性($\lambda/4$ モード構成)

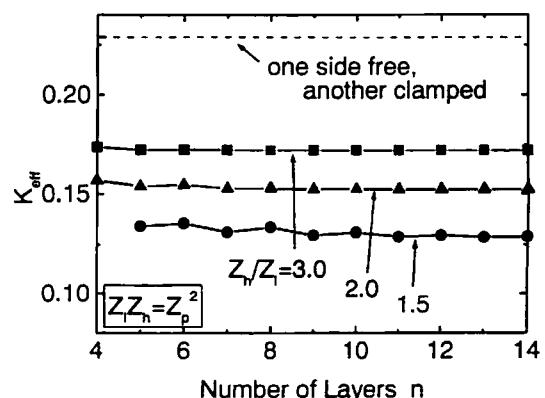


図 8 K_{eff} の層数依存性($\lambda/4$ モード構成)

五箇 繁善 関本 仁 渡部 泰明 (東京都立大学大学院)

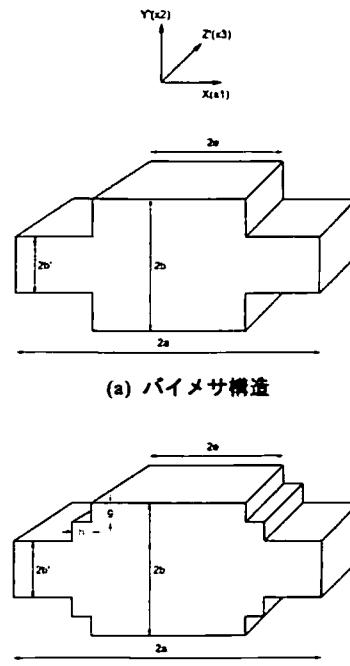
1. はじめに

AT カット水晶振動子は、安定な周波数源として古くから利用され、現在でも移動通信などの各種通信用電子部品として位置づけられている。近年、その形状は小型化に適した方形ストリップが主流になっている[1]。ストリップ振動子の設計課題の1つは輪郭振動との結合回避である。方形 AT 板には、主厚みすべり共振のほかに輪郭振動に属する多くのスプリアス振動が存在する。特に厚みすべりと同じ変位成分を含む X-Y' 厚み屈曲モードは厚みすべりモードに対し最も強く結合し、大きな特性の劣化をもたらす[2]。この厚み屈曲モードとの結合は X 端面がある限り本質的に除去できないため、数 MHz 帯の振動子には X 方向へのコンベクス加工が施されるが、この加工が困難な高周波の薄板振動子には、励振電極の質量負荷によるエネルギー閉込め効果が利用される。しかし通常 1~2% に制限される質量負荷のみでは十分な結合抑制効果は得られない。そこで、我々はより強い閉じ込め効果が得られるメサ型振動子について、コンベクスと質量負荷効果の中間的な効果が期待できることを明らかにした[3]。しかしこのメサ構造は、段差量を増やしていくと、そのメサ端が新たに厚み屈曲モードとの結合に寄与してくるため、段差量には結合を最小にする大きさが存在した。これは、それ以上の結合抑制効果を得ることはできず、また段差の大きさに限界があることを示している。そこで本文では、段差を分割した多段メサ構造を取り上げる。多段構造にすることにより、それぞれの段差量を小さくでき、メサ端の影響を少なくできる。この多段にすることによるモード間結合抑制効果を明らかにするために、段差を2つに分割した2段バイメサ構造について X-Y' 面内の2次元解析を行った。段差量の比較的大きなバイメサ構造を2段バイメサ構造にした場合の比較を行った結果、2段に分割することにより厚みすべりモードと厚み屈曲モードとの結合が小さくなり、メサ端によるモード間結合を減少させることが可能であることが明らかになった。

2. 解析法

図1はバイメサおよび2段バイメサ構造を

有する AT カット水晶振動子の外形を示している。これらの振動子について、主厚みすべりモードの基本遮断周波数近傍におけるスプリアス振動を考える。ただし、紙面に垂直な方向の変位分布は一様と仮定し、また水晶の小さな圧電項は無視する。この2段メサ構造の2次元弹性振動問題を、対称性を考慮し、1/4 領域を三角形要素を用いて2次元FEMにより解析した。



(a) バイメサ構造

(b) 2段バイメサ構造

図1 振動子の形状

3. 解析結果

バイメサ型 AT カット水晶振動子として、メサ端がモード間の結合に寄与している比較的大きな段差量、 $b'/b=0.80$ を選び、この段差を半分にした2段バイメサとの比較を行った。図2に厚板部の X 長(2e)を一定とし、X 長(2a)を変化させた場合の解析結果を示す。ここで、縦軸 $\Omega = (2\omega b/\pi)(\rho/c_{66})^{1/2}$ 、 c_{66} : 弹性定数)、横軸は板の辺比 a/b とし、2段メサ部の長さは薄板部における長さの比率を一定値、 $r=h/(a-e)$ とした。計算値に添えた共振モード記号 TS-1 は厚みすべり (主変位 u_1) の基本共振、F-k は TS-

Effect of Double Bi-mesa Structures on Spurious Vibrations of AT-cut Quartz Plates:

S. Goka, H. Sekimoto and Y. Watanabe, Graduate School of Engineering, Tokyo Metropolitan University, 1-1 Minamiosawa Hachioji-shi, Tokyo, 192-0397 Japan

1に結合する厚み屈曲（主変位 u_2 ）の k 次共振を意味する。図より2段構造をとることにより、

1段構造よりも主厚みすべりモードと厚み屈曲モードとの結合が弱くなっていることが分かる。これは段差を2つに分割したことにより、メサ端における反射が減少し、モード間結合量を減少させたためだと考えられる。

次に、2段メサ部の長さ r を変化させた場合の主厚みすべりモードと各厚み屈曲モードとの結合量を調べた。図3は、モードチャートから最小相対周波数差を読み取りプロットしたものである。図中、 $r=0$ は $b'/b=0.80$ のバイメサを示している。 r を増加させていくと徐々に結合が弱くなり、0.2 近傍ですべての厚み屈曲モードの結合量が最小になることが分かる。この最小値は1段バイメサ $r=0$ と比較すると $1/3$ 以下に減少しており、2段構造にすることにより振動子の特性を改善できることを示している。また、この解析した範囲の辺比では 0.2 近傍に最適値があるが、その理由はまだ説明できない。

4. まとめ

本文では、2段バイメサ型 AT カット水晶振動子のスプリアス特性について X-Y'面内の2次元解析を行った。バイメサ構造と2段バイメサ構造との解析結果を比較した結果、2段構造をにすることによりメサ端による厚みすべりモードと厚み屈曲モードとの結合が小さくなり、さらなるモード間結合の抑制効果があるこ

とを明らかにした。今後、実験的に検証する予定である。

参考文献

- [1] M.Onoe and M.Okazaki: "Miniature AT-cut strip resonators with tilted edges", Proc.29th ASFC, pp.42-45(1975)
- [2] H.Bahadur and R.Parshad: "Vibration modes in quartz crystals" in "Physical acoustics" (W.P.Mason and R.N.Thurston, ed.), XVI, Chap.2, pp.37-171(1982)
- [3] S.Goka, H.Sekimoto and Y.Watanabe: "Experimental study of vibrations of mesa-shaped AT-cut quartz plates" in Proceedings of 1999 IEEE International Frequency Control Symposium, (1999-4)

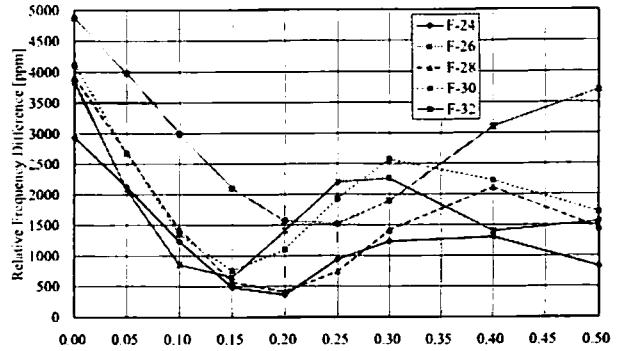


図3 主共振と厚み屈曲モードとの最小相対周波数差 ($e/b=15, b'/b=0.8, g=0.1$)

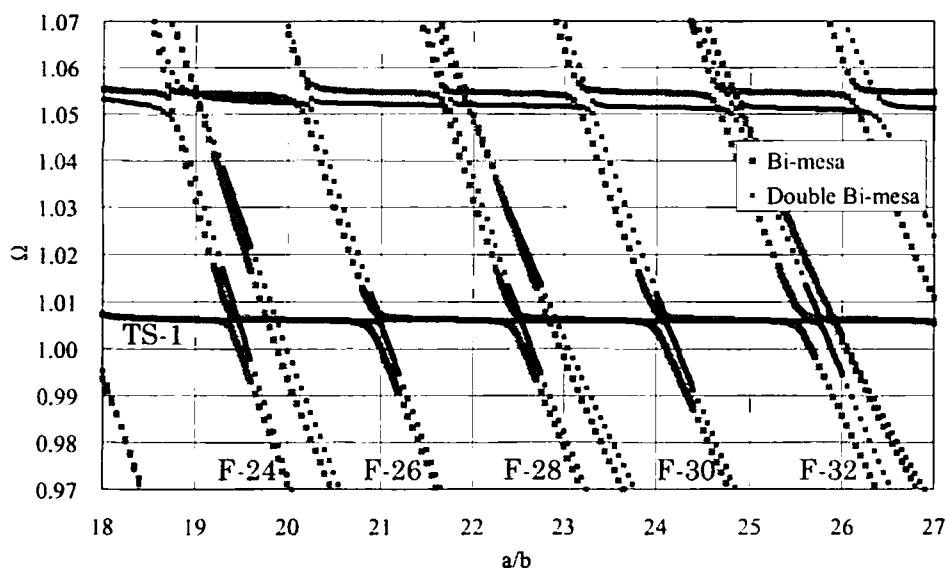


図2 バイメサおよび2段バイメサのモードチャート ($e/b=15, b'/b=0.8, g=0.1, r=0.2$)

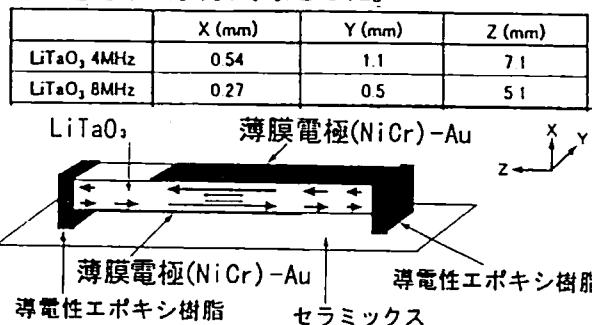
圧電単結晶チップ形すべり波振動子の破壊限界の実験的検討

若月 昇 春日 敬治 奥田 貴俊 (石巻専修大・理工)

1. はじめに 大きな電気機械結合係数を有するLiTaO₃やLiNbO₃などの圧電単結晶デバイスの大振幅動作に関する研究⁽¹⁾が少ないので、基礎的なデータを収集したい。そこで、クロック信号発生用などとして大量に使用されているLiTaO₃圧電単結晶を用いたチップ形すべり波振動子⁽²⁾を取り上げた。電気結合係数の大きさを利用して、電極付近に振動エネルギーを集中でき、小形化と支持が容易なことから、いち早くチップ形が実現された。本振動子は水晶振動子と比較して1桁以上も容量比が小さい。現在の応用分野では処理電力にはまったく問題ないが、均質なサンプルを入手できるので実験対象とした。

2. チップ振動子の特性

サンプルは、LiTaO₃ 4MHz と8MHzの2種類である。図1に示すように、ストリップ状の単結晶の表裏に、薄膜電極(NiCr-Au)が形成され、導電性エポキシ樹脂によって電極配線されたLiTaO₃矩形素子が、セラミックス基盤の上に固定されている。サンプルの寸法も図中にまとめて示す。サンプルの初期値としては、共振周波数と共振抵抗に注目した。

図1 LiTaO₃チップ形振動子の構成

破壊限界の調査は、実際に振動子に電圧を印加して、破壊する最小電力レベルを求めたい。図2に測定回路のブロック図を示す。内部インピーダンスの小さな定電圧電源(高速広帯域電力増幅器 NF4055)の出力周波数を、共振周波数を中心に200kHzの周波数幅でダウングレードスイープさせた。出力レベルを1Vステップで増加させて、電流・電圧特性を直接に測定し、最小破壊レベルを測定しようとした。しかし振動子の共振周波数は、温度によって微妙に変化する。駆動電力注入による内部発熱が問題となる。当初、スイープ時間を長く設定した。例えば、一走査の時間が240sで、測定周波数一点あたり938msであった。図3は、駆動電圧の上昇によって、振動子電流の周波数特性が、大幅に変化することを示している。温度上昇のために、共振周波数が低周波数側にシフトし、Q値も著しく低下したように観測される。次に、スイープ時間を短くすることを検討した。図4に、LiNbO₃ 4MHzサンプルにおける大電圧を周波数スイープして印加したときのスイープ速度による振動子電流の大きさの違いを示す。

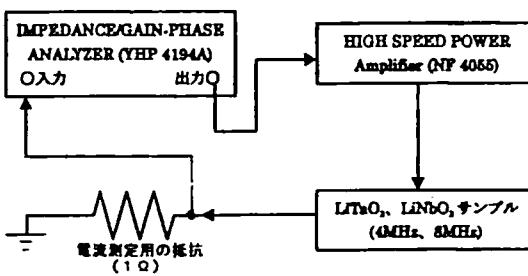


図2 振動子破壊限界の測定回路

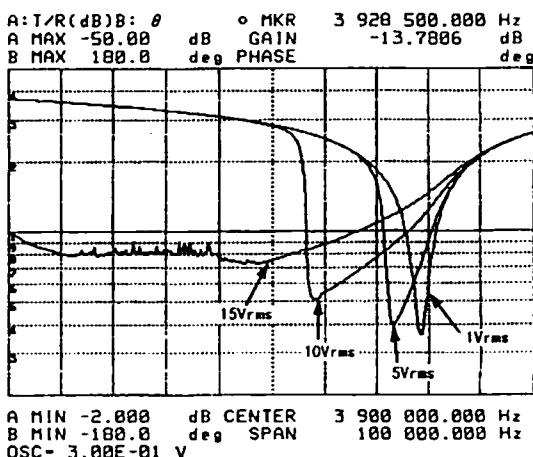


図3 駆動電圧による振動子特性変化

Mechanical destruction of piezoelectric single crystal chip resonator due to high input power.

Noboru Wakatsuki, Keiji Kasuga and Takatoshi Okudà (Ishinomaki Senshu University)

同じ電圧でも、Longスイープでは、温度上昇によると思われる特性の変化が生じるのに対し、Shortスイープでは特性がほとんど変化しない。Shortスイープとはいっても、一走査の時間は1sで、測定周波数一点あたり、3.91msである。これは振動子のQ値で決まる立上がり時間以上であることを、微小振幅時の波形から確認している。

4. チップ振動子の破壊限界電力の測定結果

図5は、Shortスイープによる共振周波数付近での破壊を示す。スイープする電源電圧を1Vステップで増加させると、サンプルは共振周波数付近で破壊する。破壊直前までの電流変化は、低電圧条件で描く周波数特性の曲線と、ほとんど線形関係にあることが確認できた。電圧をステップ状に上昇させると、破壊は突然に起こり、その前のサイクルまでは、共振周波数や共振抵抗などの特性劣化は観測できなかった。なお、本測定では、共振状態で破壊が発生するものと考え、破壊時の電流と電圧の位相差はないものとして、電力を推定している。表1は、試料の振動子としての初期値および最小破壊電力の実験結果をまとめたものである。いずれも、ほぼ正規分布とみなせる結果であった。

4MHzと8MHzの振動子との最小破壊電力の大きな差異については、焦電現象等を含めて、原因を検討中である。

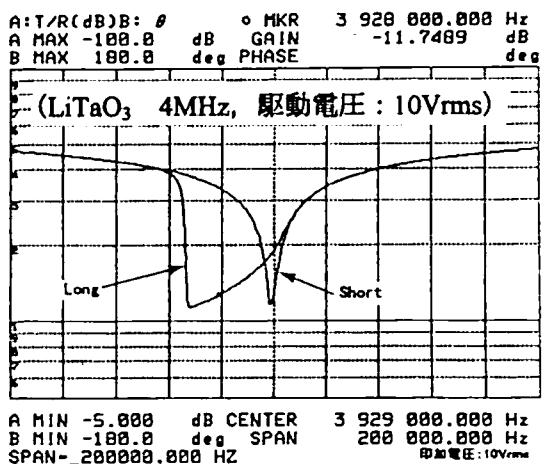


図4 周波数スイープ速度による振動子特性変化

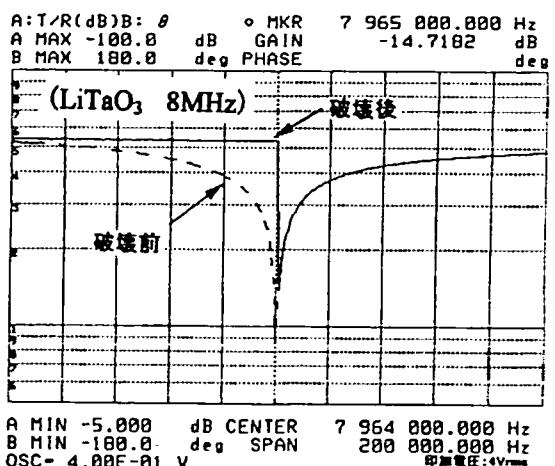


図5 Shortスイープ条件での共振周波数における破壊

表1 LiTaO₃チップ振動子の電気的特性と最小破壊電力

		LiTaO ₃ 4MHz	LiTaO ₃ 8MHz
共振周波数 (kHz)	平均値	3951.3	7970.8
	標準偏差	2.0	8.3
共振抵抗 (Ω)	平均値	58.7	19.1
	標準偏差	12.90	2.49
最小破壊電力(W)	平均値	63.8	0.8
	標準偏差	22.9	0.2
破壊個数		10	10

5. むすび

チップ振動子の破壊限界を再現性よく評価する手法を確立できた。本振動子に関しては、ほぼ正規分布するデータが得られた。今後、破壊現象の観察と組み合わせて、破壊原因などについて調査を進めたい。

[謝辞]

サンプルを提供していただいた富士通メディアデバイス(株)の関係者各位に深く感謝する。

[参考文献]

- (1) Y.Fujiwara and N.Wakatsuki: "LiTaO₃ and LiNbO₃ Strip-Type Resonators" IEEE Trans, Vol.UFFC-34, No.1(1987,1), p.39~44
- (2) 広瀬精二、中村信良、安達義徳、清水洋 “LiNbO₃結晶を用いた振動子の大振幅励振特性” 日本音響学会講演論文集 p.845 (平成3年10月)

水晶板の双晶化処理温度の低温化

野毛 倍 宇野武彦（神奈川工科大）

1.はじめに

ATカット水晶板上にCr,NiCr等の金属薄膜を形成し、熱処理を施すことにより薄膜下部にx軸反転領域（双晶）が形成できる^{1,2)}。また、x軸の反転した領域が非反転領域とは異なる弾性的特性を有するため、双晶領域を意図的に制御、形成する技術は、新しい弹性波水晶デバイスに対して有効である³⁻⁵⁾。

著者らは、集積化弹性波デバイス等への適用を考え、レーザ照射による双晶転換領域の形成方法とその細線化について検討を行っている。双晶領域形成には基板温度、基板厚さ、金属膜の材料、膜厚及びレーザ照射パターン等が関係している。特に、処理温度の低温化は双晶形成装置の構築を容易にするだけでなく、他のデバイスプロセスや半導体材料等との複合化の面からも有効と考えられる。

今回、双晶領域形成過程におけるレーザ照射条件（基板温度、レーザ光パワー、走査回数等）の検討を行い、処理温度の低温化と細線化を試みたので報告する。

2. 热処理による双晶領域形成方法

双晶領域の形成方法として、[1]真空中で熱処理する方法、[2]真空中の熱処理に加え金属薄膜に通電し加熱する方法を検討し、双晶反転領域の形成が可能であることを報告した^{3,4)}。

[1]の方法では、基板の加熱処理温度が510～560℃必要であった。[1]に改良を加え、金属膜部分に電流を流し、ジュール熱を利用した[2]の方法においても、480℃程度の基板の加熱が不可欠であった。これら方法は、適切な処理条件の範囲が非常に狭いため、再現性よく制御す

ることが難しく、処理温度の低温化にも限界があった。デバイス等への適用を考えた場合、制御性に優れ、より微細な双晶領域を形成する方法が必要となる。

3. レーザ照射による双晶領域形成方法

前述の条件を満たす一つの方法として、レーザ光を照射する方法を取り上げ、基板温度350℃前後で再現性良く双晶を形成できることを報告した⁶⁾。さらに、処理温度の低温化、細線化の条件について検討を進めた。

3.1 加熱装置

図1はレーザ照射による結晶軸反転（双晶形成）装置の概略図である。光源には半導体レーザ（最大出力：1W、波長：806nm）を用いている。レーザから発光された光は光ファイバによってチャンバー内に導入される。光ファイバはレンズフォルダにセットされたレンズ系と接続され、ファイバ端から放射された光を集光してサンプルに照射する。サンプルはヒーターを固定した可動式のステージ上にセットし、ステージを所定の速度で移動させることで、レーザ光のスポットを金属膜パターンに沿って走査させる。

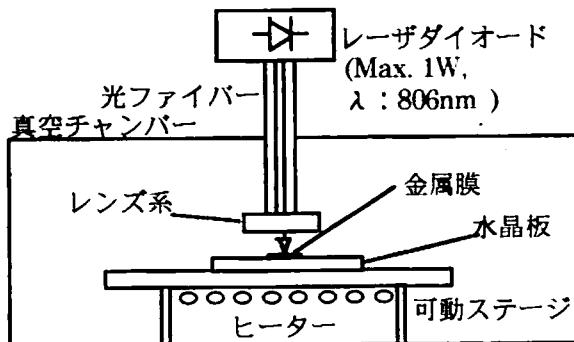


図1 レーザ走査システムの概略図

3.2 双晶形成のメカニズム

図1に示した装置により、レーザ光をサンプルの任意の場所を局所的にレーザ照射することができる。このとき金属膜の光吸収により金属膜の熱膨張による応力が発生するとともに、水晶板の底面と上面に温度差が生じ、基板の厚さ方向の温度勾配が急激に大きくなることでひずみが起こり、x軸が局部的に反転すると考えられる。図2は双晶形成過程の予想図である。双晶領域形成過程を観測する手法については現在検討中である。

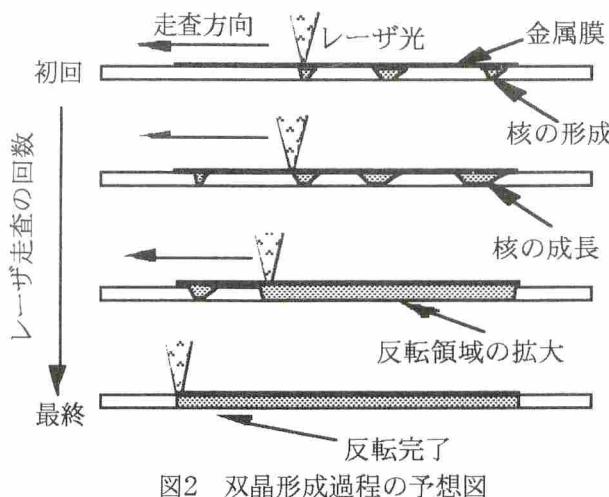


図2 双晶形成過程の予想図

4. 双晶形成時の基板温度とパワーの関係

図3は基板温度に対して照射するレーザ光のパワーを変化させた場合の、x軸反転領域の形成結果を示している。この結果から、結晶軸の反転現象が起こる際の基板温度とレーザ光パワーには関連があり、室温においても、結晶軸反転を起こすことができることが確認された。

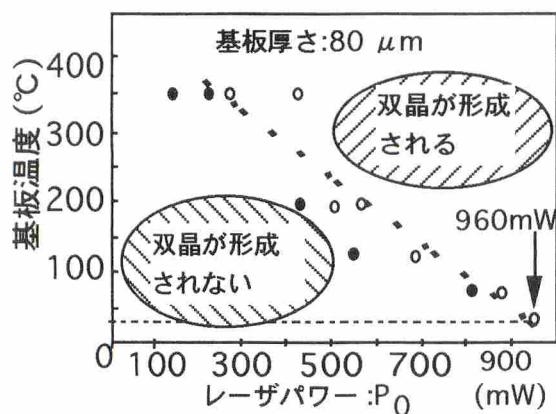


図3 双晶領域形成のための基板温度とレーザ光パワーの関係

しかし、双晶領域を精度よく制御するための最適条件を得ることは容易ではない。図4に350°Cおよび200°C以下で形成された双晶パターンの一例を示す。350°Cでは、金属膜と一致したパターンが得られているが、低温ではパターンが一致していない。現在、200°C以下のパターン最適化の検討を進めている。

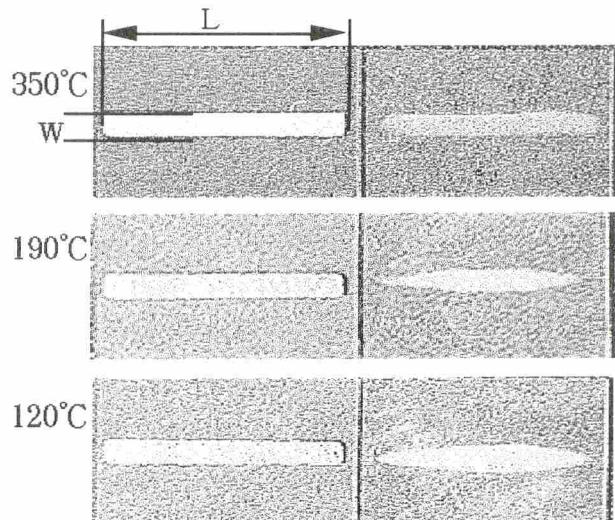


図4 基板温度の低温化と双晶の形成パターン
左側：Cr薄膜 (W : 0.4mm, L : 2.57mm)
右側：明るいグレーの部分が反転領域

5.まとめ

今後、双晶形成の条件の定量化を図るために、金属薄膜の温度分布や温度上昇との関連性を調べる必要がある。金属薄膜の膜厚や基板表面の仕上げ状態も影響を及ぼすと考えられるので、詳細な検討を行う。

謝辞 本研究の一部は神奈川工科大学ハイテクリサーチセンタープロジェクトの一環として行われたものである。

文献 [1] T.Uno : Jpn. J. Appl. Phys. Vol.35, p.2975(1996),[2] T. Uno; Jpn. J. Appl. Phys.,Vol. 36, p.3000(1997),[3] T. Uno; Proc. IEEE Freq. Control Symp., p. 526(1996) ,[4] S. Noge et. al; Proc. IEEE Ultrasonics Symp., p.1043(1997),[5]野毛、宇野：信学技報,US98-108,p.61(1999-02),[6] S.Noge and T. Uno; Jpn. J. Appl. Phys.,Vol. 38, 7A, p.4250(1999)

波動性と粒子性を持つ複素力学変数を用いた 圧電振動子の部分及び全面励振に対する数学的取り扱い方法

大木 道生、戸田 耕司（防 大）

1.はじめに

圧電振動子を等価回路で表す場合、励振方法に応じて異なる表現が必要となる。その表現は、圧電基本式・運動方程式を境界条件の下で解くことにより得られるわけであるが、本稿では、粒子性と波動性を有する複素力学変数の干渉という考え方によつて、運動方程式の代わりにエネルギーを、微積分の代わりに級数を用いて、励振方法の違いをできる限り統一的に扱う方法について論ずる。

2.部分励振の表現

本稿では、矩形状の圧電振動子について論ずる。図1(a), (b)に、それぞれ縦及び横効果を部分的に励振した場合を示す。図のO端子と π 端子の間("Drive 領域")では、縦効果の場合、電束密度 D の法線成分は一定であり、横効果の場合、電界 E の接線成分

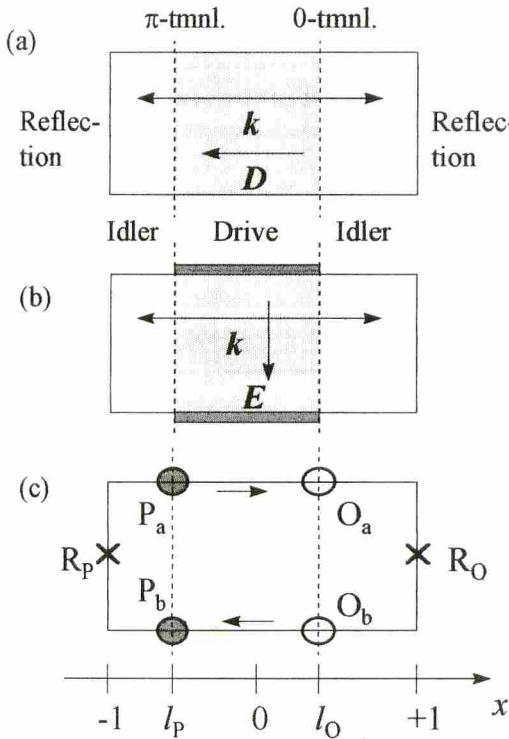


図1 (a)縦効果、(b)横効果の部分励振。

(c) (a),(b)に対するモデル(一種の回路)。

は一定である。波動は、波数 k で伝搬し、2つの機械的境界面で反射を繰り返す。

図1(c)は、図1(a),(b)を複素力学変数 η の周回によって表現した一種の回路である。 η は、 $\eta^* \eta = |\eta|^2$ が(多数個の phonon の)energy に比例し(粒子性)、伝搬すると位相が推移する性質(波動性)を持つとする。回路中に4つの端子 O_a, O_b, P_a, P_b を設け、 η の入出力が行われる。 η は回路を時計周りに減衰しながら伝搬し、4つの端子上で互いに干渉する。図の R_O, R_P は機械的反射を表す。部分励振の仕方は、図1(c)に示す座標で、 (l_p, l_o) のように表される。

3. η の伝搬と干渉の仕方

η の伝搬因子は、次式で与えられるものとする。

$$\begin{aligned} P_a \rightarrow O_a: d_{PO} &\equiv \exp(-j\pi\omega(l_O - l_P)/(2\omega_0)), \\ O_a \rightarrow O_b: d_{OO} &\equiv r_O \exp(-j\pi\omega(1 - l_O)/\omega_0), \\ O_b \rightarrow P_b: d_{OP} &= d_{PO}, \\ P_b \rightarrow P_a: d_{PP} &\equiv r_P \exp(-j\pi\omega(1 + l_P)/\omega_0). \end{aligned}$$

ここで、 ω_0 は固有角周波数。 r_O, r_P は半周あたりの損失、反射時の位相の跳びを表し、

$$r_i = \exp(-\pi/(2Q_i) + j\theta_i), \quad i = O, P$$

とする。 Q_i は energy の蓄積を表すパラメータで、 θ_i は自由端、固定端の場合それぞれ $0, \pi$ とする。回路を1周した場合の伝搬因子は、

$$d \equiv d_{PO} d_{OO} d_{OP} d_{PP}$$

である。1周時の位相の遅れが 2π の整数倍ならば、機械的共振となる。通常の電気回路とは、Kirchhoff 電圧則(KVL), 電流則(KCL) に関して、電流 $\leftrightarrow \eta$ の振幅 \times 群速度、電圧 $\leftrightarrow \eta$ の位相、と対応づければわかりやすい。次表参照。

各端子に入力された η (初期値 = η_0) は減衰を受

	通常の回路	本回路
KVL	電圧 $0/(1\text{周})$	位相 $2\pi/(1\text{周})$ で共振
KCL	電流連続	エネルギー流連続

けながら回路を無限に周回し、各端子上で干渉し、出力される。ただし、 P_a , P_b での入出力時には、 -1 (極性反転因子) を掛ける。例えば、 P_a から入力された η は、次のような無限等比級数として出力される。

出力端子	初項	公比
Oa	$\eta_0(-1)d_{PO}$	d
Ob	$\eta_0(-1)d_{PO}d_{OO}$	d
Pb	$\eta_0(-1)d_{PO}d_{OO}d_{OP}(-1)$	d
Pa	$\eta_0(-1)d(-1)$	d

他の端子からの入力も同様に考え、すべての出力を足した(重ねあわせた)もの($4 \times 4 = 16$ 個の級数の和)が求める結果になる。 η_0 は電気的入力 energy の平方根と電気機械結合係数 k の積に比例すると考えられる。

4. 結果

次の各場合について、結果を示す(図2)。

- (a) 全面励振 ($I_p, I_o = (-1, 1)$)、両端自由。
- (b) 部分励振 ($I_p, I_o = (0, 1)$)、両端自由。
- (c) ($I_p, I_o = (-2/3, 2/3)$)、両端自由。
- (d) ($I_p, I_o = (-1, 1)$)、片端自由・片端固定。
- (e) ($I_p, I_o = (-1/2, 1/2)$)、両端固定。

いずれの場合も、 $\eta_0 = 1$ 、 $\omega_0 = 1$ 、 $Q_0 = Q_p = 25$ とした。圧電的に打ち消し合う場合は共振のピークが出ないという結果になる。例えば、(a)の偶数次共振、(b)の4,8,...次共振、(c)の偶数次及び3,9,...次共振、(e)の奇数次及び4,8,...次共振は消滅する。

5. 考察

ここでは全面励振、両端自由(前節(a))について、主に直列共振回路との関係について考察する。1次共振における η の値と $\omega \rightarrow 0$ における η の値には、次の関係が数値的に確かめられる:

$$\frac{|\eta(\omega_0)|^2}{2Q^2} \frac{\pi^2}{8} \approx |\eta(0)|^2 \quad \text{---(1)}$$

ここで、 $Q = Q_0 = Q_p$ とおいた。一方、1自由度のLCR直列共振系を考え、

$$\eta_{LC} = \sqrt{L/2I} + j\sqrt{1/(2C)}q$$

とおくと、 $|\eta_{LC}|^2$ は回路に蓄積される energy(時間平均)を表す。ここで、 I は振動速度に対応する

電流(実効値)、 q は変位に対応する電荷(実効値)である。この場合、energy 蓄積を表すパラメータ:

$$Q_{LC} = \omega_0 L / R = (1/\sqrt{LC})L/R,$$

とおくと、 V を駆動力に対応する電圧として、

$$\eta_{LC}(\omega_0) = (1/R)\sqrt{L/2}(1+j)V,$$

$$\eta_{LC}(0) = j\sqrt{C/2}V,$$

であるから、

$$|\eta_{LC}(\omega_0)|^2 / (2Q_{LC}^2) = |\eta_{LC}(0)|^2$$

となり、(1)式と類似である。(1)式の乗数 $\pi^2/8$ は、 η が奇数次高次 mode を含んでいることを示す。すなわち、 η は励振可能な各 mode に Fourier 分解できると考えられる。これは、LCR 直列回路を mode の数だけ並列させることに対応する。

以上が η の電気工学的な意味である。ただし、 η は η_{LC} とは異なり、伝搬位相因子を含む。 η の位相は ω が高くなるにつれて遅れていくが、共振周波数の前後では、より急に変化する。

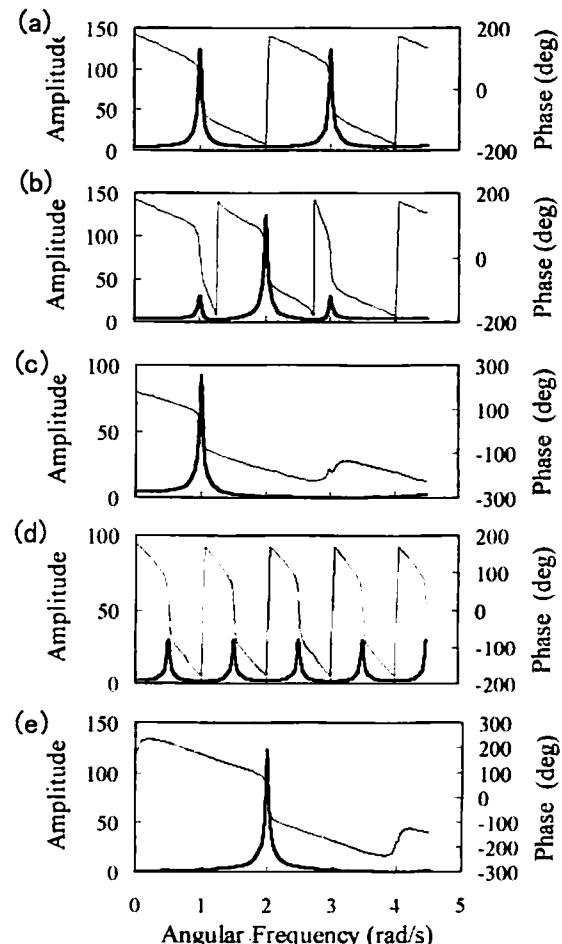


図2 η の伝搬と干渉の結果(本文§4参照)

ユニタリー行列とノイマン級数を用いた 2つの平面波の結合の数学的取り扱い方法

大木 道生、 戸田 耕司 (防 大)

1. はじめに

波動の結合を数学的に取り扱う場合、通常、結合を表現する微分方程式を立て、それを固有値問題として解くことが多い。本稿では、微分方程式を用いず、unitary 行列と Neumann 級数を用いて、2つの平面波の結合を数学的に取り扱う方法について論ずる。

2. 結合と伝搬の表現

図 1(a)に、2つの機械的境界面(0 端子、 π 端子)に、ある反射率で閉じ込められる2つの平面波を示す。ここで、 η_1 、 η_2 はそれぞれのモードを表す複素変数で、複素共役との積 $\eta_1^* \eta_1$ 、 $\eta_2^* \eta_2$ が、それぞれのモードのエネルギーを表すものとする。閉じ込められた波動は、結合しながら、多重反射によって徐々に減衰する。

ある反射率で反射を繰り返しながら結合することは、図 1(b)のように、ある透過率で透過を繰り返す場合と等価であり、本稿では、図 1(a)、(b)の両方と同じ方法で取り扱う。

さて、2つのモードを2成分量として扱う：

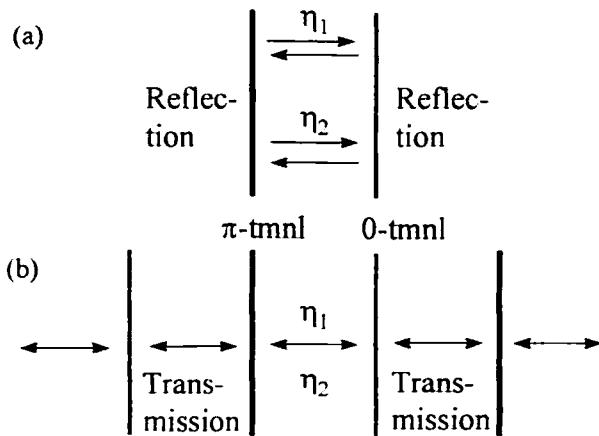


図 1 多重反射または透過する2つのモード

$$\eta = \begin{bmatrix} \eta_1 \\ \eta_2 \end{bmatrix}.$$

波動のエネルギーは $\eta^* \eta$ で表され (η^* は η の Hermite 共役)、

$$\eta^* \eta = [\eta_1^* \quad \eta_2^*] \begin{bmatrix} \eta_1 \\ \eta_2 \end{bmatrix} = |\eta_1|^2 + |\eta_2|^2,$$

となり、各モードの和になる。

2つのモードの結合を表す行列 U を次のように設定する。

$$U = \begin{bmatrix} u_{11} & u_{12} \\ u_{21} & u_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sqrt{1 - |u_{12}|^2} & u_{12} \\ -u_{12}^* & \sqrt{1 - |u_{12}|^2} \end{bmatrix}.$$

結合後のモードを表す2成分量を $\tilde{\eta}$ とすると、

$$\tilde{\eta} = U\eta,$$

によって、結合が表現される。ここで、 U は unitary 性 ($U^+ = U^{-1}$) を持つ。この性質によって、結合前後のエネルギーは不变となる：

$$\tilde{\eta}^* \tilde{\eta} = (U\eta)^+ (U\eta) = \eta^* U^+ U\eta = \eta^* \eta.$$

0 端子から π 端子までの、波動の伝搬と損失

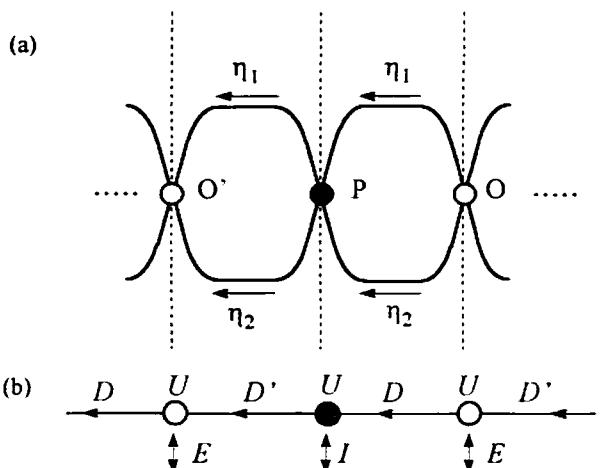


図 2 (a) 結合がある場合の2つのモードを表す変数 η_1 、 η_2 の流れ。O、P は 0 端子、 π 端子。(b) 行列を掛けていく手順。

は次の行列によって表される：

$$D = \begin{bmatrix} r_1 \exp(-j\pi\omega / \omega_{10}) & 0 \\ 0 & r_2 \exp(-j\pi\omega / \omega_{20}) \end{bmatrix}$$

ここで、 ω_{10}, ω_{20} ：結合前の各モードの固有角周波数。 r_1, r_2 ：境界面での反射（または透過）及び伝搬に伴う各モードの損失 ($0 < r < 1$)。π端子から0端子までについても、同様な行列 D' を考える。 D との違いは、 r_1, r_2 の代わりに r'_1, r'_2 とすることだけである。

3. ηの重ねあわせ

各モードが伝搬しながら結合する様子を描いたのが図2(a)である。点O(0端子)から入力された波動は、それぞれのモードで伝搬し、点P(π端子)に到達し、そこで、結合し出力される。また、点Pを通り過ぎた波動は点O'に到達し、そこで結合し出力される。空間周期性より、点Oと点O'は同一である。点O'を通過した波は、次のπ端子に達する。以下、減衰しながら無限にこの過程が続く。点Pに入力された波動も同様。ただし、π端子での入出力時には-1を掛けるものとする（極性の反転）。最後に、両端子でのすべての出力を重ね合せる。

今述べたことを行列の掛け算で行う。規則は次の通りである。（#1）入力2成分量 $\eta = \eta_0$ を各端子に入力する。（#2）0端子における入出力

時には、単位行列 E を η に左から掛ける。（#3）π端子における入出力時には、極性反転行列 $I = -E$ を掛ける。（#4）各端子を通るとき、結合行列 J を左から掛ける。（#5）端子間の伝搬時には、行列 D または D' を左から掛ける。行列を掛けるごとに η は減衰していく。（#6）各端子を通るたびに出力を取り出す。（#7）入力に対するすべての出力を重ねあわせる。出力は、したがって、行列の無限等比級数(Neumann級数)となる。Neumann級数の初項 N_0 及び公比 N_r は次の表のようになる。

入力	出力	初項 N_0	公比 N_r
0	π	$I \ UDU \ E \ \eta_0$	$UDUD'$
π	0	$E \ UD'U \ I \ \eta_0$	$UD'UD$
π	π	$I \ UDUD'U \ I \ \eta_0$	$UDUD'$
0	0	$E \ UD'UDU \ E \ \eta_0$	$UD'UD$

この級数は、次の公式で結果が与えられる。

$$(和) = (E - N_r)^{-1} N_0$$

4つの級数の和が求める結果となる。

4. 結果

図3～4に、結合係数 u_{12} の値によって共振周波数が変化する様子を示す。 u_{12} が大きいほど、また、 ω_{10} と ω_{20} が近いほど、結合の効果は大きい。

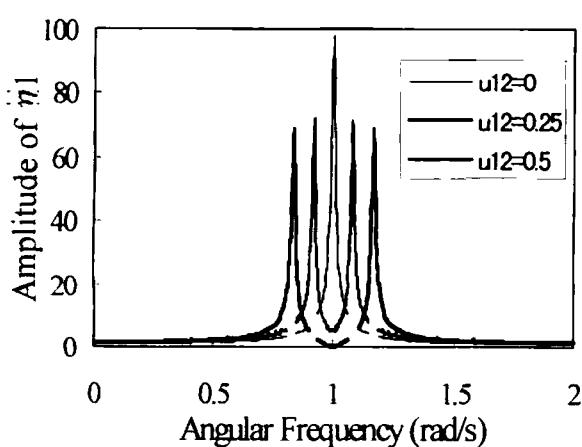


図3 結合係数 $u_{12} = 0, 0.25, 0.5$ の場合における η_1 の振幅の周波数特性。 $(\omega_{10}, \omega_{20})=(1,1)$ のとき。 $r_1=r_2=r'_1=r'_2=0.98$ とした。

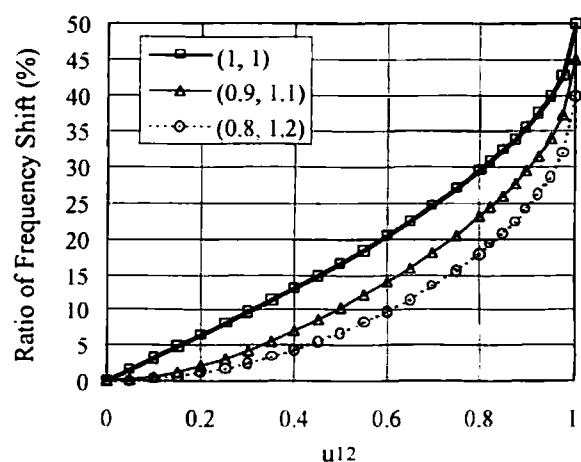


図4 結合係数 u_{12} と共振周波数の変化率 $\Delta\omega_1/\omega_{10}$ の関係。 $(\omega_{10}, \omega_{20})=(1,1), (0.9, 1.1), (0.8, 1.2)$ の3通りについて。

三軸角速度検出・振動ジャイロの基礎的解析

田村 英樹 富川 義朗 (山形大学・工)

1. まえがき 振動ジャイロの利用において多軸角速度検出が必要となる場合、通常は一軸ジャイロを2~3個組み合わせて使用する。しかし一個のジャイロで多軸検出が可能であれば、より有効であると思われる。本文ではこの多軸(三軸)ジャイロについて検討するものである。すなわちダイアフラム型ジャイロを取り上げ、従来の物理モデルを拡張すると多軸ジャイロとなることを示す。次いでコリオリ力を考慮した有限要素法解析を行い、確かに三軸方位角速度が分離検出可能との結果を得た。以下それらの結果について報告する。

2. 三自由度バネ-質量系モデル Fig. 1(a)は振動ジャイロの基本物理モデルである。これはx-y面内の二自由度をもつバネ-質量系であり、一軸方位角速度を検出する場合には十分である。しかし多軸方位検出の為には変位の自由度を増したFig. 1(b)の三自由度モデルが必要となる。慣性力を含む運動方程式は、外力 $F = \{F_x, F_y, F_z\}$ 、変位 $r = \{x, y, z\}$ 、質量 m 、回転角速度 $\Omega = \{\Omega_x, \Omega_y, \Omega_z\}$ とすれば以下の式(1)となる。

$$m \ddot{r} = F - 2m \Omega \times \dot{r} - m \Omega \times (\Omega \times r) - m \dot{\Omega} \times r \quad (1)$$

質量が Ω より十分大きい振動角周波数 ω ($\gg |\Omega|$) で定常振動するとき、右辺第三項の遠心力と第四項の Ω の時間変化は無視できる。従って各成分は近似的に

$$m \ddot{x} = F_x - 2m(\Omega_y \dot{z} - \Omega_z \dot{y}) \quad (2.a)$$

$$m \ddot{y} = F_y - 2m(\Omega_z \dot{x} - \Omega_x \dot{z}) \quad (2.b)$$

$$m \ddot{z} = F_z - 2m(\Omega_x \dot{y} - \Omega_y \dot{x}) \quad (2.c)$$

と表される。すなわち三軸自由度のバネ-質量系では、特定の一方への変位速度が与えられると、その変位方向に直交する二軸方位の回転角速度が検出可能である。式(2)はまた単一の質量要素のみでも、直交する二つの速度成分が与えられるならば三軸方位の角速度が検出できる事を示している。本文ではそのような単一の質量要素を用いる方法を検討する。

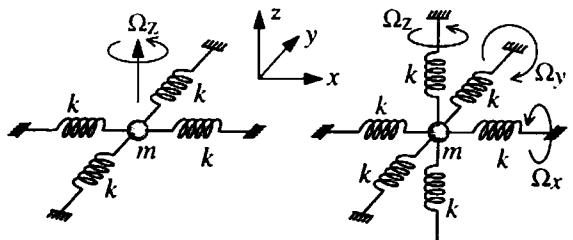
ここで外力 F の成分をバネの復元力 $F_k = -2kr$ と駆動力 $F_D = \{F_{Dx}, F_{Dy}, F_{Dz}\}$ とする。また F_{Dx} と F_{Dy} を90度の位相差で駆動するとき、質量の軌跡はFig. 2(a)のような円を描く。このとき式(2)は

$$m \ddot{x} + 2kx = |F_D| \cos \omega t + 2m \Omega_y \dot{y} \quad (3.a)$$

$$m \ddot{y} + 2ky = |F_D| \sin \omega t - 2m \Omega_z \dot{x} \quad (3.b)$$

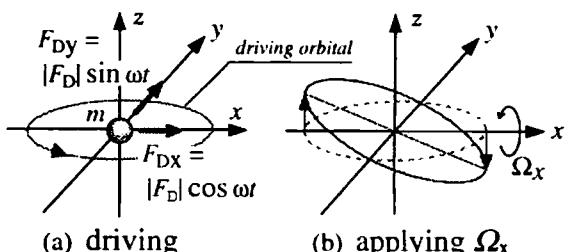
$$m \ddot{z} + 2kz = -2m(\Omega_x \dot{y} - \Omega_y \dot{x}) \quad (3.c)$$

と書き換えられる。すなわち Ω_z が印加されると式

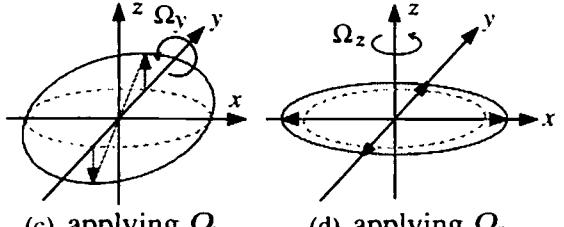


(a) 2-degree-of-freedom model. (b) 3-degree-of-freedom model.

Fig. 1 Basic models of vibratory gyro.



(a) driving (b) applying Ω_x



(c) applying Ω_y (d) applying Ω_z

Fig. 2 Orbitals of the inertia-motions.

(3.a)(3.b)よりFig. 2(d)のように軌道半径が拡大あるいは縮小する。また Ω_x, Ω_y が印加されると式(3.c)から、それぞれFig. 2(b), (c)のように z 方向の力が生じて軌道が傾く。また \dot{x} と \dot{y} が直交信号であるから、信号処理によって分離可能である。従って三軸角速度が検出できる。以下は具体例である。

3. ダイアフラム型による構成例 共振モードを利用する場合、三自由度ジャイロ構成には三つのモードの縮退が必要である。そのような利用が可能な構造例として付加慣性体を有するダイアフラム型振動子がある^{2,3}。ここではFig. 3に示す三つのモードを利用する。ダイアフラム中央に取り付けられた慣性体が前述の質量要素に相当し、Fig. 3 (a), (b), (c)のモードが慣性体にそれぞれ $z, x,$

Basic analysis of a vibratory gyro-sensor for detection of 3-axis angular velocities.

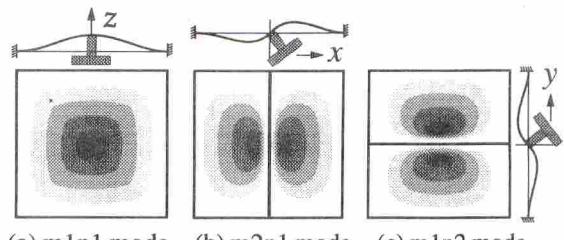
: Hideki Tamura and Yoshiro Tomikawa, Yamagata University

y 方向への自由度を与える。これら利用モードのうち(b)m2n1, (c)m1n2は同型縮退モードであり共振周波数は一致する。さらにこの両モードは付加慣性体の質量と慣性モーメントの比を調整することによって共振周波数を下げて、(a)のm1n1モードとも縮退できる。すなわち三モードの縮退が可能である。

4. 有限要素法による動作解析 最近ではコリオリ力を考慮した有限要素法解析の結果が実験ともよい対応をするとの報告があり^{4), 5)}、本研究でもまず数値解析によって動作検証を行った。解析にはANSYSを利用しコリオリ力の効果は内蔵言語機能を用いて適用した。手順として、まず電圧を印加して調和解析を行い各節点の振動速度を得る。次に各節点の質量、角速度と振動速度からコリオリ力を算出する。その後、電圧印加と共に算出したコリオリ力を各節点に調和外力として与えて解析を行う。**a. 解析モデル** Fig. 4は解析に用いたモデルである。ダイアフラム部分の周辺端部は4辺とも固定する。ダイアフラム部の上面(慣性体のない側)半分は圧電材料とし、その分極は面垂直正方向とした。ダイアフラムの中性面全体にGND電位、上側表面には8つの電極を設けた。中性面以下は慣性体も含めて非圧電材とした。このモデルではm1n1モードの中心周波数は約4.1kHz、m2n1モードとの離調は約28Hzであった。Fig. 5はジャイロ出力信号の分離に用いた演算に相当する検出系である。同図の電極②から電極⑤までを駆動に用いる。Fig. 2(a)の駆動条件に合わせ、慣性体の重心を旋回させるように番号順に90度づつ位相をずらして以下の電圧を印加する。

②: $1+j0$, ③: $0+j1$, ④: $-1+j0$, ⑤: $0-j1$ (V)
ジャイロ信号検出にはここでは電極⑦と⑨の出力電圧 V_7, V_9 を用いた。出力端子Aでは $V_7 + V_9$ を位相調整したものをcosで同期検波、出力端子Bは同様にsinで同期検波した。また出力端子Cでは $V_7 - V_9$ を同期検波したもののから、無回転時の出力が零になるようにバイアス分を引いた。**b. 解析結果** 分離後の出力信号をまとめてFig. 6に示す。印加角速度が Ω_x の場合には出力信号A, Ω_y では出力信号B, Ω_z では出力信号Cがそれぞれジャイロ信号として得られている。それ以外の成分は4~7桁以上小さくほぼ分離がなされている。

c. 検討課題 Fig. 6にて Ω_z の検出信号C(Ω_z)は、m1n1モードを利用する他の検出信号と比べて小さいが、これは検出電極⑦, ⑨がm1n1モードと比べてm2n1, m1n2モードを強く検出できない事に起因する。また $V_7 + V_9$ は Ω の大きさによって振幅だけでなく、わずかに位相も変わるために Ω_x と Ω_y の分離は完全とは言えない。これらに関しては今後更に検討を要する。



(a) m1n1 mode (b) m2n1 mode (c) m1n2 mode

Fig. 3 Modes of diaphragm.

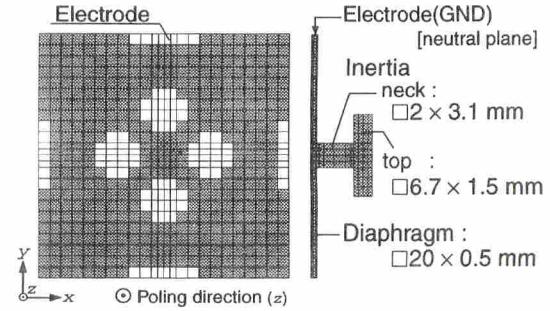


Fig. 4 Analysis model of diaphragm vibrator with additional inertia.

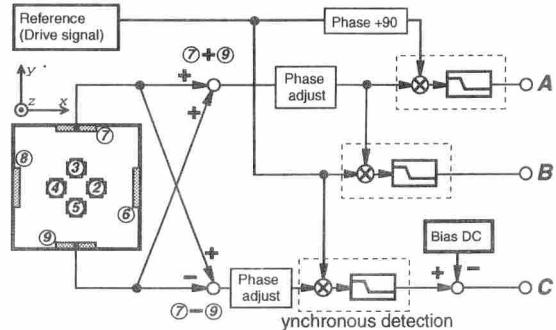


Fig. 5 Detection and separation system of 3-axis gyro-signals.

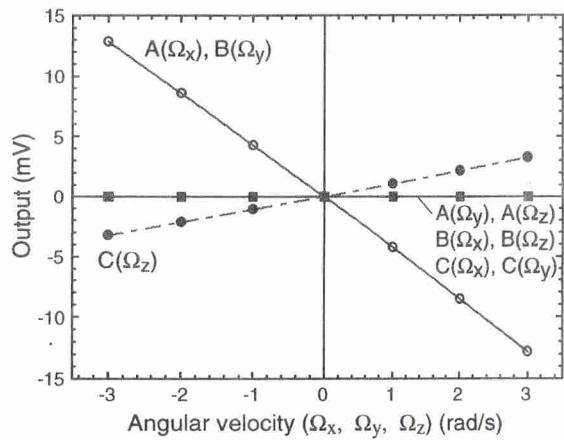


Fig. 6 Output voltages with relation to each axis angular velocity.

参考文献

- (1)"弹性波素子技術ハンドブック", オーム社 pp.491-494 (1991)
- (2)田村 他:J. J. A. P., Vol. 37, No. 5B, p. 2859- (1998)
- (3)田村 他:IEEE Ultrasonics Symposium p. 476- (1998)
- (4)加川 他:IEEE Trans. UFFC, 43, 4, p. 509- (1996)
- (5)工藤:日本音響学会講演論文, 3-P-14, p. 1005- (1999/3)

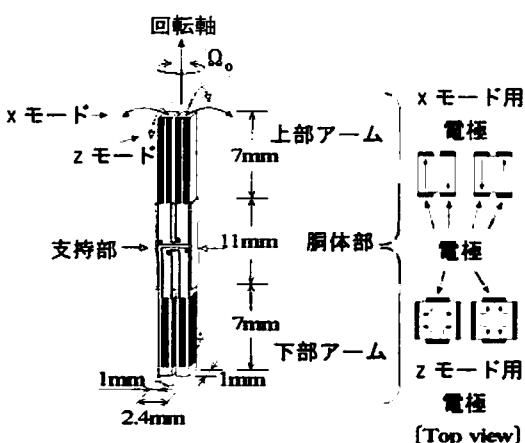
PC-19

H形 LiTaO₃压電ジャイロの温度特性補償法の検討

千葉 光晴 若月 昇 (石巻専修大学・理工)

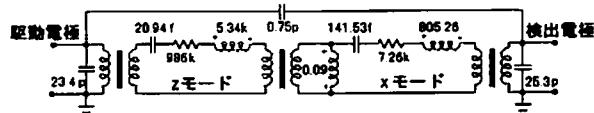
1 まえがき

压電ジャイロにとって、感度や直流ドリフトの温度特性改善は重要課題である。この温度特性は、駆動振動モード、検出振動モード、支持特性等が複雑に絡み合って生じる。本報告は、H形 LiTaO₃压電ジャイロにおいて、支持部の影響を受け難い面内振動モードの安定性に着目し、駆動モード非共振、検出モード共振条件¹⁾での感度及びドリフトの温度特性補償方法を検討する。

図1 H形 LiTaO₃压電ジャイロの構成

2 素子構成と等価回路

図1に、H形 LiTaO₃压電ジャイロの構成を示した。上部アームには、面内振動のxモード（音さ形振動）用電極、下部アームには、面垂直振動のzモード（H形振動）用電極を配置した構成である。この対称性の良い構造は、両モード間の不要な機械的結合を抑圧し、漏れ出力を大幅に低減した。さらに、上下の電極は、対応するそれぞれのモードに対しては大きな電気機械結合係数を有するが、直交した相手の振動モードとは不要な電気機械結合係数がゼロまたは無視できる大きさである²⁾。これらの特徴を基に、インピーダンス及び伝達特性の測定から図2に示した機械的結合、静電的結合を含む等価回路を算出した。図3は、等価回路

図2 H形 LiTaO₃压電ジャイロの等価回路

Temperature self-compensated lithium tantalate piezoelectric gyroscope for higher sensitivity and stability

Mitsuharu Chiba, Noboru Wakatsuki (Faculty of Science and Engineering, Ishinomaki Senshu University)

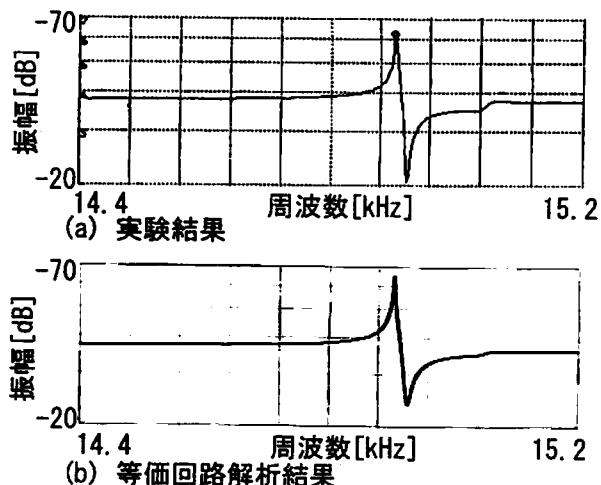


図3 漏れ出力の伝達特性

による伝達特性の解析結果と実験結果の比較である。広い周波数範囲で両者が良く一致している。

3 素子の温度特性

それぞれの振動モードについて、入力インピーダンスの温度特性を30~90°Cの範囲で測定した。両モードの共振周波数の温度変化を図4に示した。xモードは固定支持なし条件での場合とほとんど同じ特性を示した。zモードは、固定支持なし条件での測定値25ppm/°Cより、かなり大きな変化を示した。また、両モードのQ値の温度変化を図5に示した。xモードは、ほぼ変化しないのにもかかわらず、zモードは温度の上昇とともに大きく変化している。これらは、エポキシ樹脂による支持部の影響と考えた。xモードの振動変位が素子側面中央部の支持部にまったく存在しないのに対し、zモードはわずかな変位が存在する事と対応している。

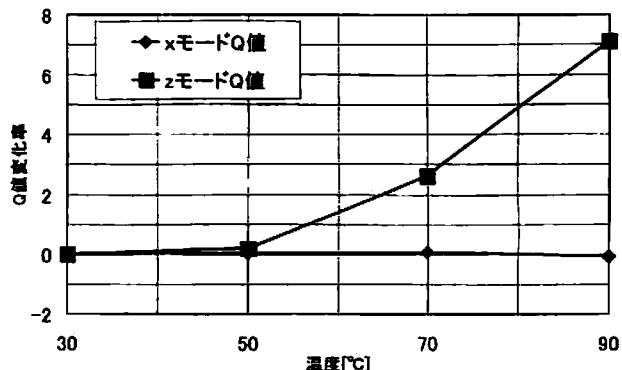


図4 共振周波数の温度依存性

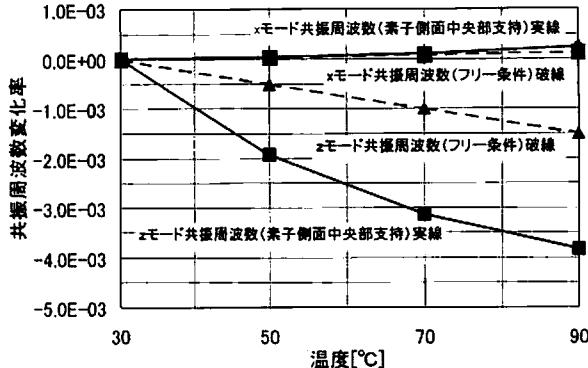


図 5 Q 値の温度依存性

4 非共振駆動・共振検出による温度特性補償

4. 1 駆動モードモニタ用トランジスタ

本研究では、x モードの共振周波数で z モードを駆動し、コリオリ力によって生じる x モードを検出する。従って、温度に安定な x モードが常に共振条件であるので、検出側の特性変化はないと見なせる。しかし、z モードは、温度変化と共にインピーダンス特性が大きく変化する。通常、圧電ジャイロは、駆動信号を基準とした同期検波によって検出を行う。従って、温度変化によって駆動信号と駆動モードの振幅や位相の関係が変化するため、これが問題となる。そこで、駆動モードの粒子速度をモニタするトランジスタ電極を追加し、その出力を基準とした同期検波を検討した。

ここでは、駆動検出電極間の不要な静電容量を無視した図 6 の等価回路によって、漏れやコリオリ力の出力について検討する。但し、z モードの共振周波数が 1°C 当り 25ppm 变化するものとし、ジャイレータの係数は 100 (1V_{pp} 駆動、角速度 3deg/s 相当) とした。また、機械的漏れ結合は温度依存性がないものとした。

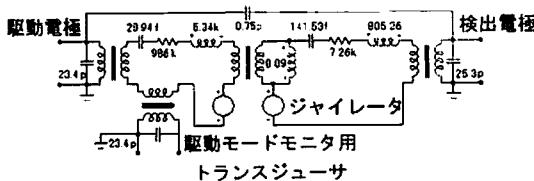


図 6 駆動モードモニタ用トランジスタを加えた等価回路

4. 2 ドリフトの温度特性の検討

温度変化によって振動子の特性が変化すれば、漏れやコリオリ力による出力の位相が変化し、ドリフトを生じる。そこで、振動モードモニタ用トランジスタによって、駆動モードを検出し、同期検波の基準信号とすれば、ドリフトを抑制できる同期検波が可能と

なる。図 6 の等価回路において従来の同期検波出力と、前述の方法による同期検波出力の温度特性の等価回路解析結果を図 7 に示した。

4. 3 感度の温度特性

漏れやコリオリ力による出力は、駆動モードの振動速度に比例する。従って、駆動モードモニタ出力の振幅を一定とすれば、駆動側の振動速度は常に一定となり、感度の温度依存性が補償される。前述のドリフトの抑制に加え、感度の温度依存性を補償した等価回路解析結果を図 7 に示した。

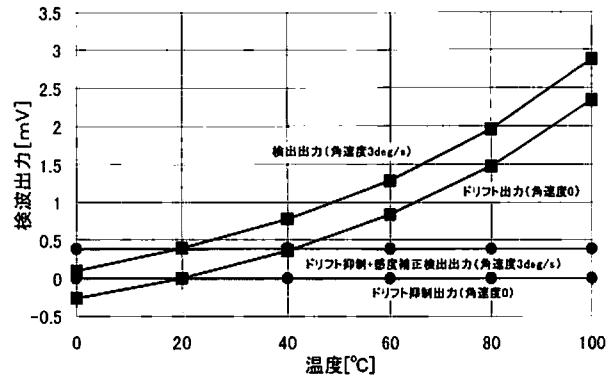


図 7 ドリフト及び感度の温度特性補償

5 むすび

H 形 LiTaO₃ 圧電ジャイロの x モードは、共振周波数や Q 値が温度に対し安定である。しかし、z モードの共振周波数や Q 値は、支持の影響等で複雑な変動を示す。その対策として、駆動モードモニタ用トランジスタの導入による自動的な温度特性補償方法の可能性を示した。今後は、本提案の実現に向けて、x モード共振周波数での自励発振回路の構成、静電的結合の抑圧、機械的結合の温度依存性について検討する。

謝辞

本研究にあたって、ご助言いただいた本学理工学部皆原澄夫教授、工藤すばる講師に深く感謝致します。

参考文献

- 1) H. Tanaka, N. Wakatsuki : "Improving the Sensitivity of H-type LiTaO₃ Piezoelectric Crystal Gyroscope , " IEICE TRANS . ELECTRON . , vol. E82-C, No. 1, pp. 60-65, 1999
- 2) H.Tanaka, N.Wakatsuki : "Electromechanical Coupling Coefficients for a New H-type LiTaO₃ Piezoelectric Gyroscope , " Jpn. J. Appl. Phys. , vol. 37, pp. 2868-2871, 1998

单一共振モードを利用した新しい音さ型振動ジャイロの構成*

菅原澄夫(石巻専修大・理工)、富川義朗(山形大・工)

1. まえがき

低背化を図った薄い平板型の低周波振動ジャイロスコープ(以下、振動ジャイロと略)が要求されている。ここでは、このような構成の一例として2脚音さの面内一つの振動モードだけを利用した新しい構成を提案する⁽¹⁾。そして、その共振周波数や振動変位を有限要素法解析し、支持特性の優れた構造を明らかにすると共に、ジャイロ特性の実験的検証も行い、本構成は角速度センサとして動作することを明らかにする。

2. 振動ジャイロの構造

図1は提案する2脚音さ型振動ジャイロの基本構造で、両アームの先端に左右非対称に質量が付加された特徴ある構造をしている。この構造を利用すると、音さ面に垂直なz軸回りの角速度 Ω_0 が検出できる。図2はその動作原理で、従来のように2つの振動モードを接近させて使用するのではなく、ただ一つの振動モードだけを利用すると言う大きな特徴を有する。すなわち、図2(a)の実線のようにアームをその基本モードで振動させた状態で、音さ面に垂直に角速度 Ω_0 を図示のように印加させると、アーム先端の付加質量部に誘起されたコリオリ力 F_c により、実線の変位は増加して破線のようになる。一方、 Ω_0 が逆方向に印加された場合には、変位は同図(b)の破線のように減少する。したがって、印加角速度 Ω_0 の大きさ、方向により、変位の大きさが基準値から変化することになり、角速度センサが構成できる。

3. 解析及び実験結果

振動ジャイロの基本構造に対する各部寸法を図3及び表1のように与え、その共振周波数と支持部となる底部端の振動変位の有限要素法解析を行った。振動ジャイロの材質は最終的に圧電単結晶などの利用も考えられるが、実験の容易さからここではステンレススチール(SUS-3)を用い、そのヤング率、密度、ポアソン比をそれぞれ $E = 1.99 \times 10^{12}$ dyne/cm²、 $\rho = 7.9$ g/cm³、 $\sigma = 0.34$ と与え、解析ソフトはダイナス社のPIEZO-plusを使用した。

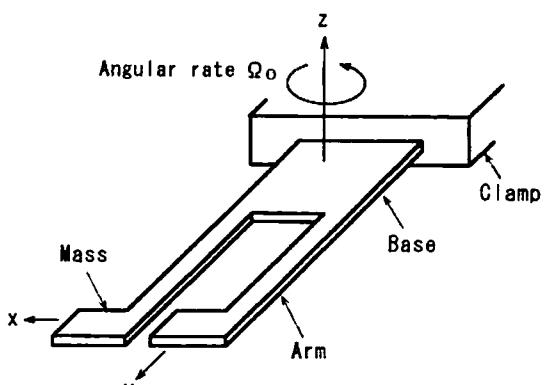


Fig.1 Construction of vibratory gyro.

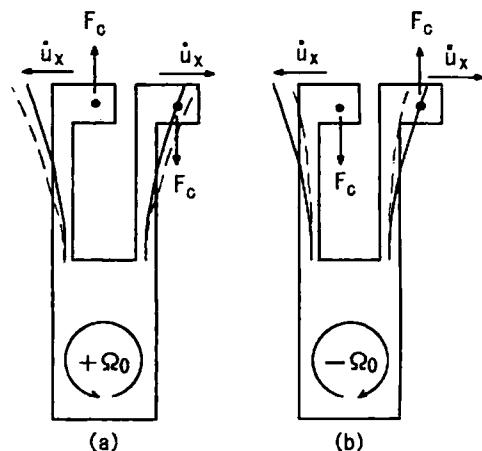


Fig.2 Modes of vibration.

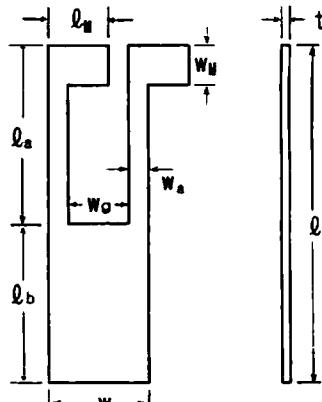


Fig.3 Structure of vibratory gyro.

Table 1: Dimensions of vibratory gyro.

l	55	w_M	3.75
l_a	25	w_a	2.5
l_b	30	w_g	5.75
l_M	6.25	t	1
w	10.75		

* Construction of a New-Type Tuning Fork Vibratory Gyroscope Using a Single Resonance Mode.
By S.Sugawara (Izinomaki Senshu University) and Y.Tomikawa (Yamagata University).

解析結果によると、基本構造の共振周波数は2.2149kHzとなり、底部端のx、y軸方向の最大変位比は $u_x/u_{x0}=-2.38 \times 10^{-3}$ 、 $u_y/u_{x0}=-1.13 \times 10^{-3}$ (u_{x0} :アーム先端変位)と小さいことが分かった⁽²⁾。この変位比をさらに低減させるため、図4のように基本構造の底部形状を種々変えた場合の変位比を解析した。図5は図4(a)において付加幅 w_{b1} を変えた場合の結果で、 w_{b1} の増加と共に変位比は減少する。しかし、 $w_{b1}=1.5mm$ 以上では u_y/u_{x0} の低減効果はあまり期待できないので、以下では $w_{b1}=1.5mm$ としてさらに他の低減化を併用することを試みた。即ち、図4(b)のように底部の左側に $w_{b2}=1.5mm$ 、 $l_{b2}=22mm$ の付加部を設けた後、さらに同図(c)のように底部右側に幅 w_{b3} 、長さ l_{b3} の付加部を設けた場合を検討した。図6がその結果で、幅 $w_{b3}=1.5mm$ の場合 $l_{b3}=28mm$ のとき底部の最大変位比は $u_x/u_{x0}=-6.17 \times 10^{-4}$ 、 $u_y/u_{x0}=-3.71 \times 10^{-4}$ に低減できることことが分かった。

一方、図7は図3の基本構造を用いて印加角速度 Ω_0 に対する同期検波出力 $\Delta V_2'/V_1$ の関係を実測した結果で、図示のような直線特性となることから本振動ジャイロが角速度センサとして動作することが確かめられた。ここで、振動ジャイロの駆動及び検出はアーム根元に微小圧電セラミックスを接着して行った。

4. あとがき

単一の面内振動モードだけを利用する新しい2脚音さ型振動ジャイロ構成を提案し、振動ジャイロとして動作することを実験的に検証した。アーム先端に左右非対称に付加された質量の音さ底部端変位に与える影響は、底部形状を変化させることによりかなり補償できることも明らかになった。なお、本構成は温度特性の良好な振動モードだけを利用できるので、高安定センサとなる可能性がある。

謝辞 解析の一部を担当した石巻専修大学理工学部・平成10年度卒研生・阿部雄一君と御討論頂いた同大学・若月昇教授、工藤すばる講師に御礼申し上げる。また、本研究には平成11年度文部省科学研究費補助金(基盤研究(C)、No.11650057)の援助を受けたことを付記する。

参考文献(1)菅原、富川:信学技報、No.US97-56, pp. 21-28 (1997-09). (2)菅原、富川:音響学会講論集(II), No.3-P-15, pp. 1007-1008 (1999-03).

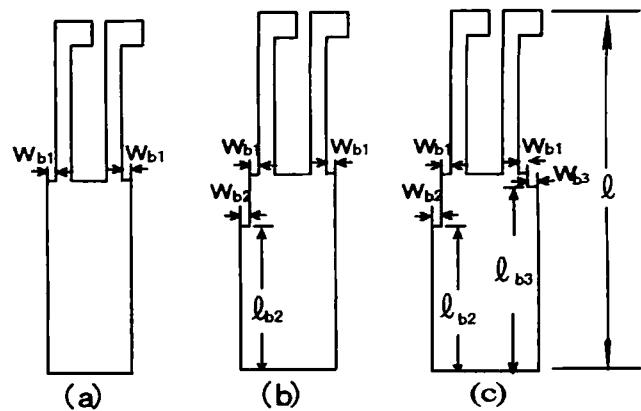


Fig.4 Modification of base part.

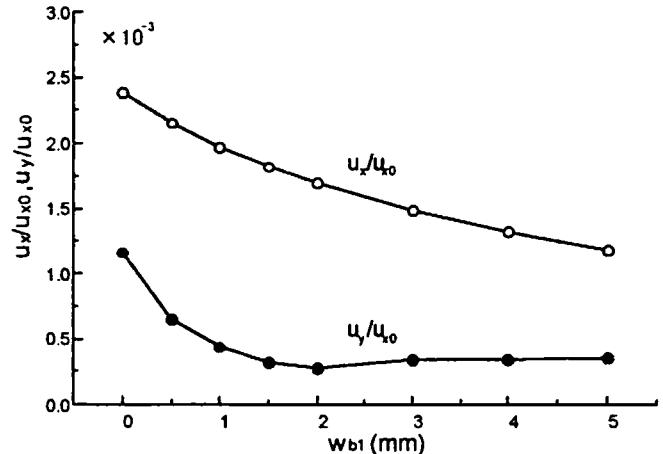


Fig.5 Calculated characteristics of $u/u_{x0}-w_{b1}$.

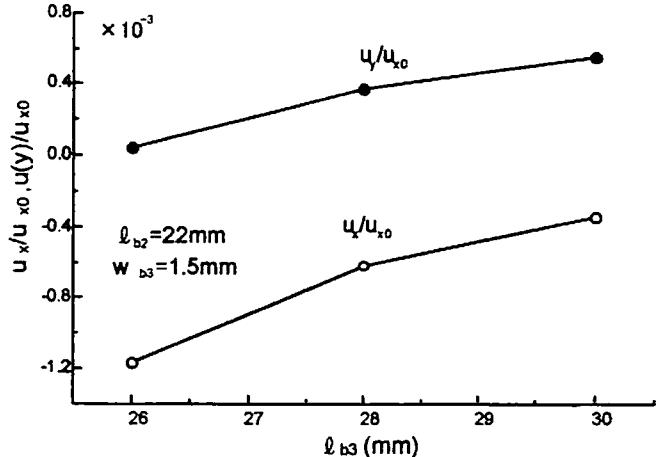


Fig.6 Calculated characteristics of $u/u_{x0}-l_{b3}$.

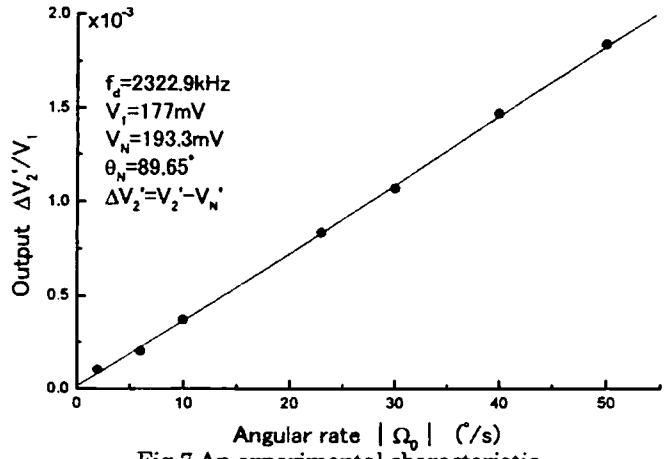


Fig.7 An experimental characteristic.

マルチモード水晶ガスセンサ*

五箇 繁善, 岡部 究, 渡部 泰明, 関本 仁 (東京都立大学大学院)

1 はじめに

圧電振動子の質量付加効果を利用した微量質量センサに関し、今まで多くの研究がなされている。[1] 特に振動子表面上に感応膜を塗布し共振周波数の変化から付着物質の種類・濃度を推定するセンサは、感応膜の選択により特定の気体・液体の識別に利用されている。振動子を利用したガスセンサの問題点として、1) 振動子自身の周波数エージング、2) 温度変化に伴う測定誤差、および3) 被検出ガスの種類に応じた数のセンサが必要が挙げられる。筆者らは上記1) および2) を解決する方法として振動子の副振動を積極的に利用したマルチモード微量質量センサを提案している。[2] これは、振動子の主振動周波数と副振動周波数のエージング特性の事前測定およびそれらの温度特性の差異を利用して、質量検出誤差を補正するものである。この報告では振動子表面上に直接、固体を付着させ実験を行っている。

本論文では、この研究をさらに発展させ振動子表面上に感応膜を塗布したマルチモード水晶ガスセンサに関する基礎的検討について報告を行う。このガスセンサは、振動子の振動変位に対応したパターンに基づき感応膜を配置することで、より正確な誤差補正を可能にするものである。さらに吸着特性が異なる複数の感応膜をモードパターンに合わせて振動子上に配置すれば上記3) も解決可能となる。

はじめに、主振動近傍のスプリアス振動モードを利用したガスセンサの概略と感応膜配置法について述べる。次に実験方法と実験システムおよび実験に使用した水晶振動子センサの作成方法について述べる。最後にポリイミドを感応膜とした実験結果が示され、考察および今後の展望が述べられる。

2 センサの構造と感応膜配置方法

水晶振動子には広く知られるように主共振以外にインハーモニックや厚み屈曲など多くの副共振が存在する。各共振は固有の振動モード・変位を持って

いるので、質量付加位置を適当に設定することにより特定のモードのみに質量感度を持たせることが可能となる。既に筆者らはパルスレーザによる外部応力感度測定[3] が質量付加位置決定に有効であることを示している。[2] ここでは、このパルスレーザ測定法による結果を感応膜配置の指標とした。

3 実験方法

図1は実験に用いたAT-cut円形基本波振動子である。振動子の直径は8mm、共振周波数は約11MHz、感応膜を塗布しない状態での主振動のQは約10万、抵抗は約10Ωである。

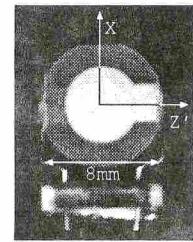


図1: AT円形基本波振動子

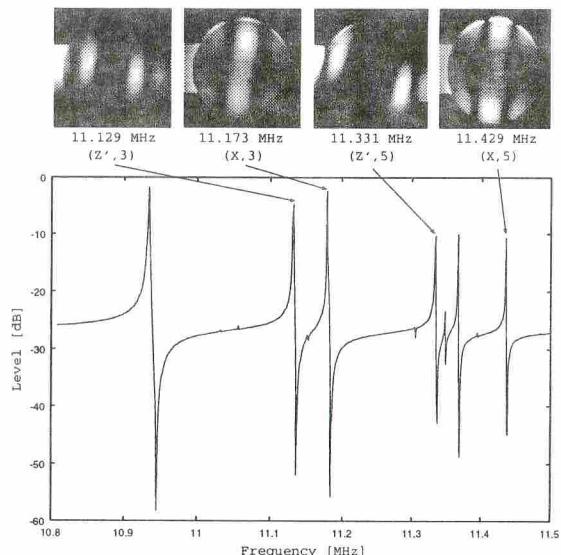


図2: 主振動付近の周波数応答と応力感度

図2は、主振動付近の周波数応答と応力感度測定結果を示している。各インハーモニックモードに付された括弧は(伝搬方向(X, Z'), 次数)を表している。図2より、X伝搬モードでは中心部分X方向に外部応力感度が高く、Z'伝搬モードではサポートに近い部分の感度が高いことが分かる。従って感応膜を中

*Quartz crystal microbalances using multiple resonance modes: S. Goka, K. Okabe, Y. Watanabe and H. Sekimoto, Graduate School of Engineering, Tokyo Metropolitan University, 1-1 Minamiosawa Hachioji-shi, Tokyo, 192-0397 Japan

央付近に配置すれば前者での検出感度が高く後者の感度は低くなり、中央部を除く部分に感応膜を配置することで、この逆の効果が得られると考えられる。

ここでは感応剤として二酸化炭素吸着に優れたポリイミド(FAP)を用い、THFで溶解して図2の結果を基に振動子表面上に部分的に塗布した。次式(1)はこの材料の構造式である。

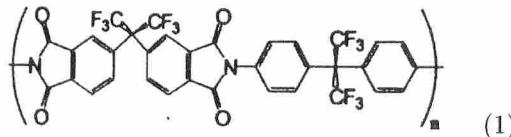


図3に実験装置の概要を示す。50°C($\pm 0.05^\circ\text{C}$)に保たれた恒温槽内に試料ケースを配置した。そのケース内に一定の時間をおいて二酸化炭素を還流し。各モードの共振周波数変化を記録した。また振動子の共振周波数は伝送法で測定している。二酸化炭素の流量は約1l/minである。

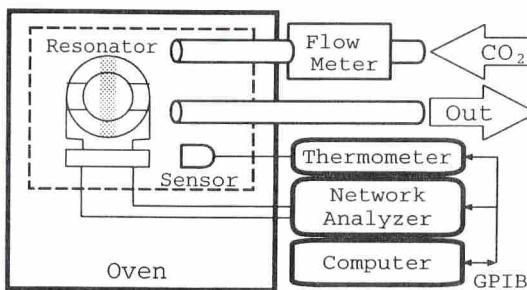


図3: 実験装置の概要

4 実験結果

図4,5に実験結果を示す。図4はZ'方向伝搬モードでの検出感度が高くなるように感応膜を配置した場合、図5はX方向伝搬モードで検出感度が高くなるように配置した場合の共振周波数変化を示している。各図に付された図は、それぞれの感応膜位置を示している。ここでは、外部応力感度の感応膜配置への有効性を確認することを目的としているため、単純な帯状に感応膜を塗布した。この結果より、図4では(Z',3)モードと(Z',5)モードでは検出感度が高く、他のモードでは低いことが分かる。反対に図5では(X,3)モードと(X,5)モードでは検出感度が低くなっていることが分かる。すなわち外部応力感度測定が感応膜配置に有効であることが示された。

5 まとめ

マルチモード水晶ガスセンサを構築する際、パルスレーザによる外部応力感度分布測定が感応膜配置に有効であることを実験により示した。ここでは、その有効性を示すことを目的としているため、単純な

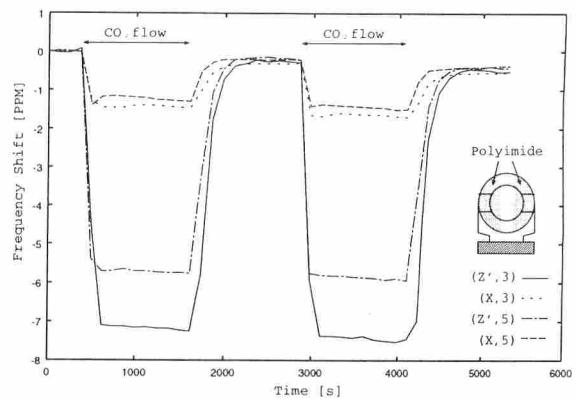


図4: 実験結果(中心部分のポリイミドを除去)

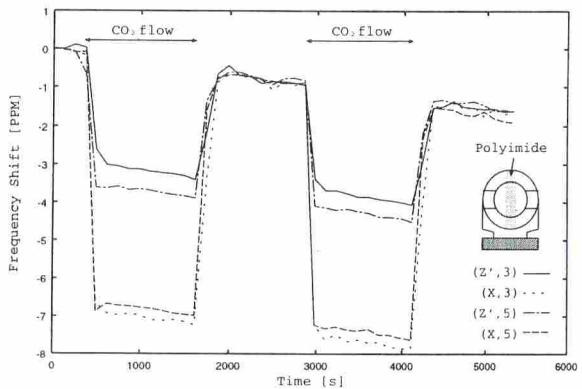


図5: 実験結果(中心部分にのみポリイミドを塗布)

感応膜パターンを振動子状に配置したが、複数モード間で感度差が最大となるように膜配置を行うことで、性能の良いマルチモードセンサの構築が可能になると思われる。温度補償等の応用と併せて今後の課題とした。

参考文献

- [1] E.P.EerNisse, et. al. Survey of bulk resonator sensor technologies. *IEEE Trans. Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, pp. 323–330, 1988.
- [2] S.Goka, Y.Watanabe and H.Sekimoto. Stress sensitivity distribution measurement using a low-frequency sound wave and its application to quartz crystal microbalances. *Jpn.J.Appl.Phys.*, Vol. 36, 1, 5B, pp. 3178–3179, 1997.
- [3] Y.Watanabe, H.Sekimoto and Y.Oomura. Laser-diode-based mode-shape measurement system for very-high-frequency quartz resonators. *Jpn.J.Appl.Phys.*, Vol. 34, 1, 1, pp. 216–217, 1995.

水晶振動子ガスセンサ応答時定数解析

斎藤敦史, 野村 徹, 星 博房, 前田 洋, 浅利征宏 (芝浦工大)

1. はじめに

弾性波素子（水晶振動子, 弾性表面波）に有機薄膜等（以下、感應膜）を塗布したガスセンサは、感應膜のガス吸着特性によりセンサ応答特性を変化させることができる。しかし、ある種のガスを測定対象とした場合、それに適した感應膜を選択する手段は確立されていない。

本報告では、測定ガス対象に適した感應膜を選択する際の基準を設けることを目的とし、感應膜の吸着特性を数値化することを試みた。水晶振動子ガスセンサの時系列応答は、電気回路におけるLCR回路の過渡現象と類似しており、過渡現象を解析することでL, C, およびRにより吸着現象を数値化することを検討した。その結果、同解析によって吸着現象の特徴を抽出することが可能であることがわかった。

2. 実験方法

過渡現象解析の有効性を示すために、単純な吸着現象であり特別な吸着サイトを持たないセンサを用いることにした。このようなセンサを作製することは困難であるが、ここでは感應膜を塗布しない水晶振動子をセンサとして用いた。この場合、電極である銀表面にガス分子が吸着することになるが、感應膜が存在しないため膜中へのガス分子吸収がなく、均一な金属表面であると仮定すれば特別な吸着サイトは存在しないことになる。水晶振動子にはAt-cut、共振周波数10MHz、銀電極のものを用い、水晶板は鏡面研磨を施してある。水晶振動子を図1に示す測定システムに挿入し、揮発性有機溶媒に対する応答を測定した。ここで、センサは発振回路中の1素子として挿入されており、ガス分子の吸着による発振周波数変化がセンサ応答とな

る。

センサ、測定チャンバ測定、およびサンプルガスを生成するサチュレータは、恒温槽内に保持され、一定温度(18°C)に保たれている。揮発性有機溶媒には、炭素数の異なる6種類のAlcohol (ethanol, 1-propanol, 1-butanol, 1-pentanol, 1-hexanol)を用いた。各アルコールに対する水晶振動子ガスセンサの時系列応答を図2に示す。同図より吸着平衡時（センサ応答安定時）の周波数変化量は大きな変化が見られないものの、その応答時定数には差が生じていることがわかる。

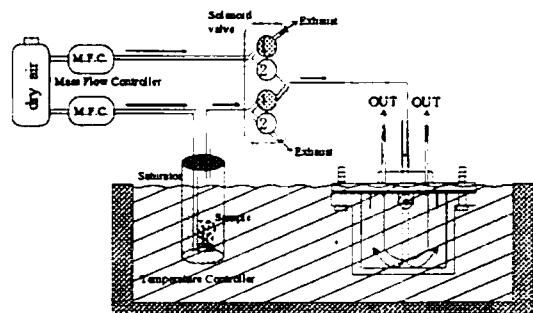


図1 測定システム

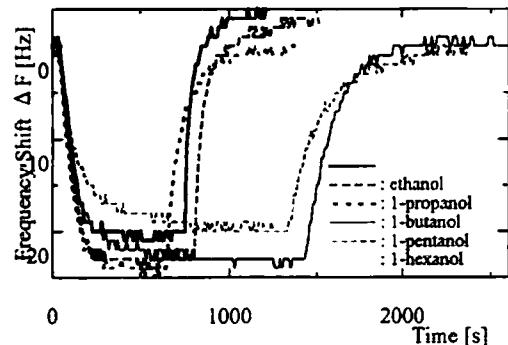


図2 アルコールに対するセンサ応答

3. 過渡応答解析

図2に示したセンサ応答は、LCR直列回路の過渡応答に類似していると考えた。実際の吸着現象の説明にL, C, およびRを用いる場合、

*Transient Response Analysis of QCM Gas Sensor Response: A.Saitoh, T.Nomura, H.Hoshi, H.Maeda, Y.Asari. Shibaura Inst. of Tech

それぞれの吸着現象における物理的意味を十分に考慮しなければならない。ここでは、 L をチャンバ内におけるガス導入直後から定常状態までのガス濃度変化を表す項とした。これによつてセンサ応答は時間遅れを生じる。また、 C は感應膜中におけるガス分子の吸着容量を示し、感應膜中の吸着サイト数を表すものとした。さらに、 R はガス分子の感應膜への吸着力に関係するものとし、 R および L によりセンサ応答安定までの時間が決定されると仮定した。

上記のように、 L 、 C 、および R を仮定し、以下の過渡応答式を用いて最小二乗法により応答時系列データに適したパラメータを算出した。

$$q = CE[1 - e^{-\alpha} \cdot (1 + \alpha)] \quad (1)$$

$$q = CE \left[1 - e^{-\alpha} \cdot \frac{1}{\beta} \{ \beta \sinh(\beta t) + \alpha \cosh(\beta t) \} \right] \quad (2)$$

ここで式中の各パラメータは以下の通りである。

q : 吸着分子数

C : 吸着容量

E : サンプル濃度に比例する値

$\alpha : R/2L$ (= 応答時定数 τ)

$$\beta : \sqrt{\frac{R^2}{4L^2} - \frac{1}{LC}}$$

両式は共に LCR 直列回路の過渡現象を示す二次の微分方程式から得られるものであり、式(1)は、critical case を、式(2)は logarithmic case をそれぞれ表す式である。これら両式を用いて解析を行つた。ただし、実際の計算では式(2)のみを用い、 $\beta=0$ と算出された場合のみ式(1)を使用した。

4. 結果および考察

前節で述べたように LCR 直列回路の微分方程式を解くと前述の式(1)、(2)（自由振動を示す解は除く）が得られる。今回測定したガスサンプルは炭素数 2～6 個の alcohol であるが、ethanol および 1-propanol の場合は式(1)で、他

の 3 つの場合は式(2)で近似された。これに関する詳細な検討は今後の課題であるが、吸着状態の差であると考えられる。図 3 に実測データとシュミレーション結果の比較を示す。同図には、式(1)で近似された例として ethanol を、また式(2)で近似された例として 1-butanol を示した。図からわかるように両者はよく一致しており、水晶振動子ガスセンサの応答を LCR 回路の過渡現象によって表すことが可能であることがわかる。

他のサンプルに関しても同様に実測データと計算結果の間に良い一致を見ることができた。

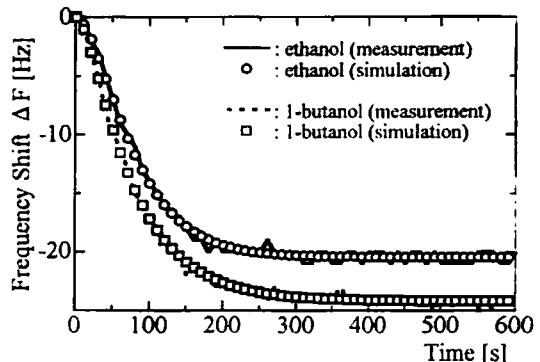


図 3 測定データとシュミレーションの比較

5. まとめ

本報告では、高分子薄膜を塗布した水晶振動子の応答時系列データを過渡解析することにより、水晶振動子ガスセンサのガス分子吸着特性数値化を試みた。

ガス分子の吸着過程は LCR 直列回路の過渡応答として表現することができる事が確認された。また、 L 、 C 、および R はそれぞれに与えた物理的意味からも吸着現象を表すパラメータとして適當であり、これらを用いることで感應膜の吸着特性を数値化できることが確認された。上記の値は、感應膜を選択する際の基準とすることができる。

参考文献

- 1) G.Sauerbrey, Z.Phys., 155, 1959, p.206.
- 2) 岡部昭三 著、"過渡現象", 学文献社.

2 端子対 SAW 共振器を用いた溶液センサの特性

野村 徹 斎藤 敦史 堀越 康敬
芝浦工業大学工学部

1. はじめに

弾性表面波 (Surface acoustic wave:SAW) デバイスは、その伝搬特性が伝搬面上の条件によって大きく変わることで知られている。これを利用した SAW センサには、遅延線素子が用いられることが多いが、挿入損失が大きい欠点がある。遅延線に似たデバイスに共振器がある。共振器は Q 値が高く、低損失であるため、高感度で安定なセンサが期待できる。ここでは、SH (Shear horizontal) -mode SAW を用いた 2-port SAW 共振器を液体中で動作させ、液相センサとして共振器を用いる事の有効性を示す。また液体のフロー系システムを構成し、流体の計測を行い、溶液のイオンや濃度の識別が可能なことを示す。

2. SH-SAW 共振器液体センサ

2-port 共振器は、SAW を反射させて定在波を作る為の 2 つの反射器と、その反射器間に定在波と強く結合するように配置された入出力用の 2 つの IDT からなる。Fig. 1 に本実験に用いた共振器の構造と液体センサの概略を示す。共振器は、共振周波数を 40MHz、反射器のストリップの数は 200 本とし、基板には SH-SAW 用の 36° YX LiTaO₃ を用いた。本共振器センサの特徴は、2 つの IDT 間の空洞部分のみを液体との干渉領域としていることで、ごく少量の試料液体でのセンシングが可能なことである。

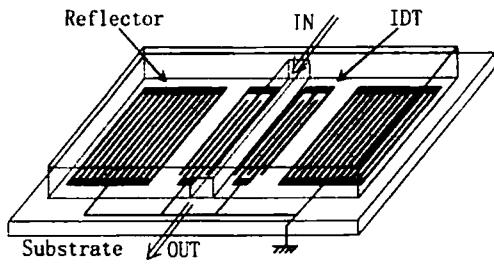


Fig. 1 液相用 2-port 共振器センサ概略

3. センサの感度

液体の物性が SAW の伝搬に与える影響には、導電率や誘電率の電気的効果と、質量や粘性等の機械的効果がある。低濃度の液体の場合には、誘電率変化や機械的効果による変動は小さく無視できる。このような場合の SAW センサの感度は、SH-SAW の速度変化で表わすと、塩川等により次のように与えられる⁽²⁾。

$$\frac{\Delta V}{V} = -\frac{K_s^2}{2} \frac{(\sigma'/\omega)^2 + \epsilon_0(\epsilon_r' - \epsilon_r)(\epsilon_r' \epsilon_0 + \epsilon_p'^2)}{(\sigma'/\omega)^2 + (\epsilon_r' \epsilon_0 + \epsilon_p'^2)}$$

K_s^2 : 電気機械結合係数、 ϵ_r' : 試料液体の比誘電率
 ϵ_r : 基準液体の比誘電率、 ϵ_p' : 基板の実効誘電率
 ϵ_0 : 真空の誘電率、 σ' : 試料液体の導電率

Fig. 2 に導電性液体(KCl)の導電率に対する伝搬速度の変化を示す。尚、図中の点は実測値であり、実線は前述のセンサ感度式より導出したものである。伝搬速度は、導電率の増加とともに徐々に減少し、1[S/m]付近で飽和している。これは、基板表面が電気的に短絡された状態になっている事を示している。また、伝搬速度の変化は理論と同じ変化を示しているが、変化の割合小さい。これは空洞部分にのみ液体が負荷されていることによる。このように、液体の導電率を変化により、伝搬特性が変化し、センサとして動作する。

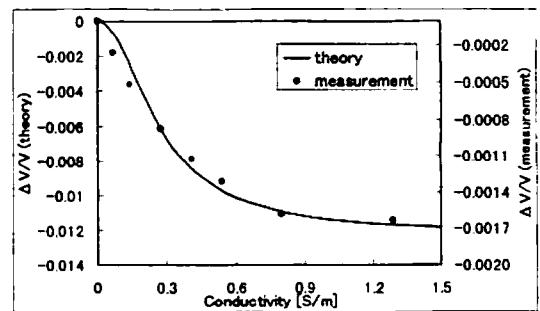


Fig. 2 導電率変化による伝搬速度の変化

4. フロー系システム

本センサでは、微少量の試料で測定が行えることが分かった。そこで、次にフロー系システムを構成し、過渡応答を調べた。

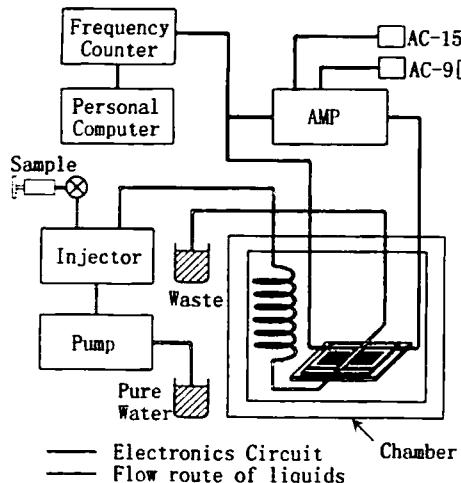


Fig. 3 に液相用 2-port 共振器センサを用いたフロー系システムの概略図を示す。ポンプにより基準液体となる純水をキャリアとして、流量 0.5 [ml/min.] で流し、この流れにインジェクタから一定量の試料液体 (2.5ml) を注入するようにした。応答は発振回路構成により共振周波数の変化を調べた。試料液体には、3種類のイオン水溶液 (導電率 : 0.18[S/m] に調整) を用いて、それぞれ 2 回ずつ測定を行った。ここでは、立ち上がり部分 (純水から試料液体に切り替わる部分) に着目し、この部分の拡大した図を Fig. 4 に示す。同じイオン溶液では変化に差がなく、異なるイオン溶液では応答に差がでている。

次に、導電率の異なる KCl 水溶液を用いて同様の実験を行った。この時の立ち上がり部分の拡大図を Fig. 5 に示す。過渡応答のピーク値は、各イオン溶液の導電率に関係なくほぼ一定値を示しているが、ピークに達するまでの時間、及び変化の傾きに違いが表れており、導電率が高い程ピークに達するまでの時間が早くなり、変化も鋭くなっている。

以上のように、フロー系ではイオン水溶液の種類や導電率を変化させると過渡応答に差ができる事が分かる。このことは過渡応答を調べる事により、イオンの識別が可能であることを示している。また、

いずれの変化も安定しており、このセンサシステムは液体の音波物性の評価に有効であった。

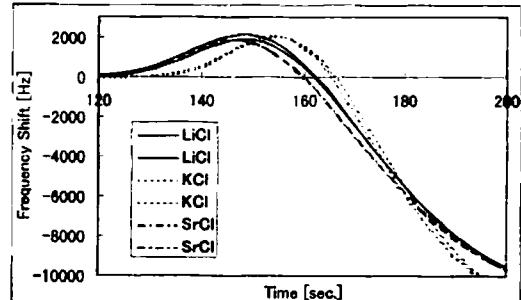
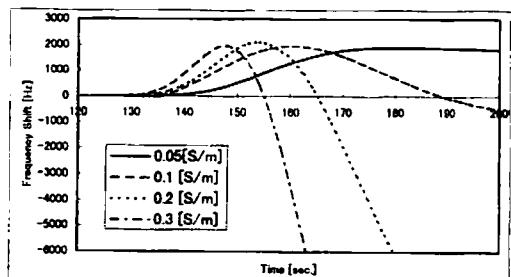


Fig. 4 各イオン水溶液の過渡応答 (立上がり部分)



4. まとめ

2-port SH-SAW 共振器を用いて液体のセンシングを試みた。その結果、2-port SH-SAW 共振器はごく少量の液体で、高感度で安定なセンシングができる事が分かった。特に液体フロー系システムを構成し、その基本動作を調べた結果、少ない流量で安定した動作をするセンサが得られ、流体センサとしての有効であることを示した。また、流体の場合には、溶解している分子の種類や濃度により、その過渡応答に差が表れることが分かった。今後は、この過渡応答を検討することにより、分子の拡散や吸脱着等を調べる必要がある。

参考文献

- (1) P. S. Cross and R. V. Schmidt, "Coupled surface-acoustic-wave resonators," Bell Syst. Tech. J., vol. 56, pp. 1447-1482, 1977.
- (2) 塩川, 森泉, "弾性波デバイスを用いた化学センサ", 電学論C, vol. 111, no. 9, p. 357, 1991.

PE-1

レーザブレイクダウンによる 球面超音波の発生と伝播の可視化

土居 元紀, 大城 理, 千原 國宏 (奈良先端科学技術大学院大学)
上田 大輔, 杉浦 忠男, 河田 聰 (大阪大学)

1. はじめに

開口合成法による超音波瞬時3次元再構成法[1]において、送波される球面超音波は計測空間に広がるように極めて指向性が低いことが求められる。

従来のセラミックや高分子材料による圧電振動子では、指向性を低くしようとした場合、同一の周波数においては振動子を小さくすることが必要であり、そのため音圧の低下を招く。さらに、超音波が広く拡散するため、音圧が著しく低下し、物体の反射波を受波することが不可能だった。

そこで、従来の圧電振動子とは異なり、指向性を全く持たない超音波として、レーザブレイクダウン現象[2]において発生するブレイクダウン音響波に注目した。レーザブレイクダウン現象とは、パルスレーザから発振された励起光をレンズで集光すると焦点領域のエネルギー密度が非常に高くなり、その領域に存在する微粒子が誘電破壊を起こしプラズマ化する現象である。このとき、光と音響波が発生する。

実験により、レーザブレイクダウン現象により発生する超音波の性質を調べ、その伝播を可視化したので、これを報告する。

2. 超音波計測実験

実験装置を図1に、計測の様子を図2に示す。パルス Nd:YAG レーザ(波長 1064nm, パルス幅 8ns, 繰り返し 10Hz, パルスエネルギー 180mJ)からの光をレンズで集光して、水槽内で焦点を結ぶ。水槽中の焦点付近はポリスチレンビーズ(径 200nm)を分散した水で満たしてある。レーザ光が収束する付近のポリスチレンビーズはレーザブレイクダウンを起こす。このとき発生する超音波を PZT ニードルハイドロホンで受波し、オシロスコープで受波信号を獲得する。なお、レーザ発生時のトリガ信号が、オシロスコープに与えられており、そのトリガにより、計測を開始している。

計測領域は、レーザブレイクダウンの生じている点を原点として、x軸をレーザ光と直交する水平方

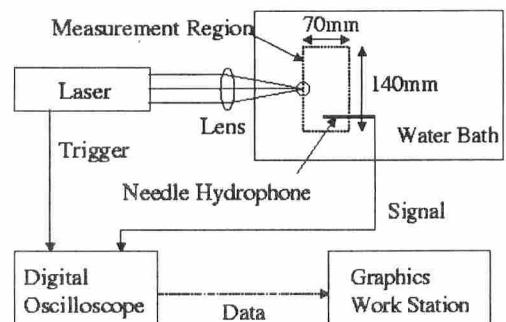


図1 実験装置

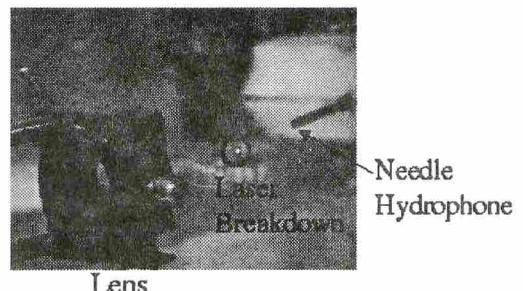


図2 計測の様子

向、y軸をレーザ光と直交する垂直方向、z軸をレーザ照射方向とした3次元の直交座標系において、 $-70\text{mm} < x < 70\text{mm}, 0\text{mm} < y < 70\text{mm}, 0\text{mm} < z < 70\text{mm}$ の領域を 10mm おきに計測した。なお、x軸はレーザに向かって左手を正、y軸は上向きを正とする。各計測点での計測は同時には行えないで、各点にハイドロホンを手動で移動し、その度にレーザブレイクダウンを生じさせ、計測した。なお、レーザブレイクダウンの生じている点から 20mm 以下の距離の点はハイドロホンの保護の為、計測しなかった。

受波信号の一例を図3に示す。ほぼ 5MHz の単波長パルスがあり、大きなリングングは存在しない。

レーザブレイクダウンの生じている点から等距離(50mm)にある 8 点で計測した信号について調べたところ、音速を 1483m/s として、超音波が 50mm 伝播する時間($33.7 \mu\text{sec}$)に対し、前後 $2 \mu\text{sec}$ (約

Generation of Ultrasound Spherical Wave by Laser Brakedown and Visualization of the Ultrasound Propagation:
M. Doi[†], O. Oshiro[†], K. Chihara[†], D. Ueda[‡], T. Sugiura[‡], S. Kawata[‡],
[†] Nara Institute of Science and Technology, [‡] Osaka University

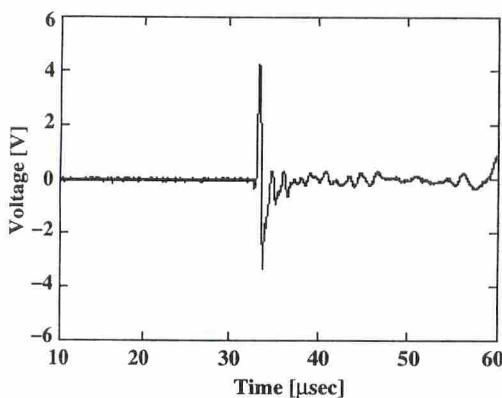


図3 受波信号

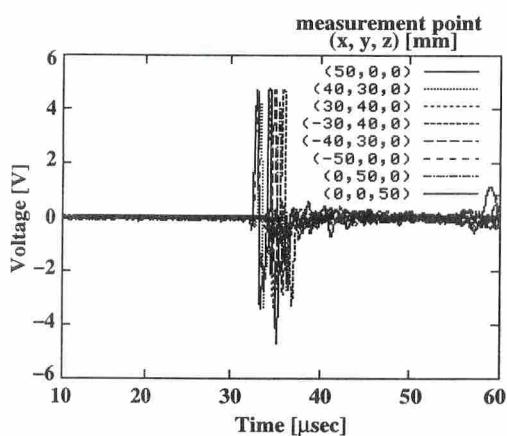


図4 音源より等距離の8点での計測結果

3mm相当)以内の誤差の範囲内に8点での明確な単波長パルスのピークが存在した(図4)。3mmの変動は計測誤差の範囲内である。また、レーザブレイクダウン現象の度に、同じ計測点でも信号の振幅が変化するため、厳密な音場強度分布は得られていないが、等距離にあるどの計測点についても大きな減衰はみられない。これらのことから、3次元計測の用途に十分な振幅を持つ無指向性球面超音波が生じていることが分かった。

3. 可視化

無指向性球面超音波が生じていることを視覚的に確認するために、各計測点で得られた波形より、球面超音波の伝播を動画像で可視化した(図5)。可視化の方法として、各時刻における各計測位置のハイドロホンの出力を点の濃度値に対応させると同時に、出力の値に応じて点の位置をわずかに波の進行方向に移動させ、水面の波紋が広がるように球面超音波が3次元的に広がっていく視覚効果を与えた。これにより、無指向性球面超音波の伝播を視覚的に確認できた。

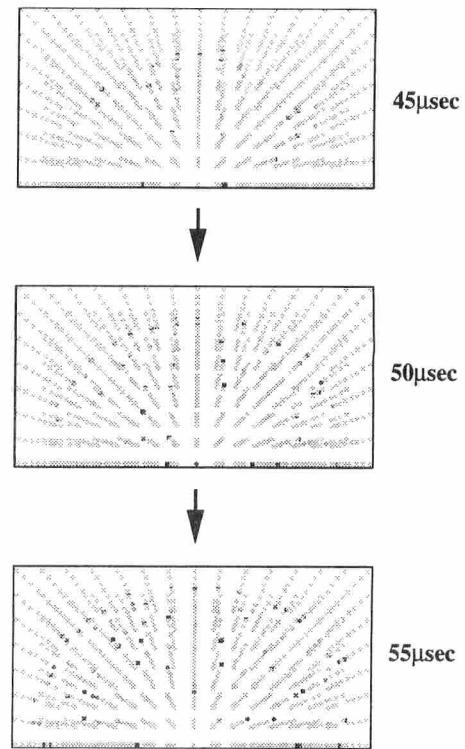


図5 球面超音波伝播の可視化画像

4. おわりに

レーザブレイクダウン現象により発生する超音波を計測した結果、無指向性球面超音波の発生が確認された。この球面超音波の受波信号は、3次元計測の用途に十分な振幅を持つ。また、圧電振動子に見られるような大きなリングングを含まないため、3次元計測において高い空間解像度を得ることが期待できる。そして、伝播の様子を可視化し、視覚的に無指向性球面超音波の伝播を確認した。

今後、この球面波により3次元形状計測を行い、生体計測への応用を探る予定である。

本研究の一部は日本学術振興会未来開拓学術研究推進事業「生体の計測と制御」の援助により行われた。

参考文献

- [1] 真溪 歩, 他: “超音波マイクロリングアレイプローブを用いた前方3次元可視化”, 電気学会論文誌E, センサ・マイクロマシン部門, 117, pp.359-363 (1997).
- [2] M.Nakamura, et.al.: “Highly anisotropic light emission from micro laser breakdown of microparticles in water”, Nature, Vol.366, pp.138-141 (1993).

PE-2

TiO₂微粒子系の光音響スペクトル

豊田 太郎、河野 寛、沈 青（電通大 量子・物質）
小寺 昭彦、大森 将弘（昭和電工 総研）

1. はじめに

近年、二酸化チタン(TiO₂)は光エネルギー変換用材料としてのみでなく、光触媒への応用が活発に研究されている。TiO₂にバンドギャップ以上の大きなエネルギーを持つ光を照射すると、伝導帯に電子が、価電子帯に正孔が生成される。このように生成された電子・正孔対は、水を酸化還元して水素と酸素を発生させる。このように TiO₂を用いない場合に比べて、はるかに長波長の光(低いエネルギー)で、水は光分解される(光触媒反応)¹⁾。現在、このような人工光合成システムの要素を備えた光触媒と、その助けによる常温化学工業の出現が強く期待されている。

一般に光触媒を含む光材料の検討には、光吸收とその後の励起エネルギーの緩和過程を、総合的に捉える必要がある。ここで微粒子状の光触媒のような試料では、その大きな光散乱性のために、従来の透過法や拡散反射法等の測定法では精度の高い光吸收情報を得るのが困難であった。光熱変換(photothermal、略して PT) 分光法は、脱励起に伴う無輻射遷移過程による熱エネルギーを反映するため、粉末系のような不透明かつ光散乱の強い系に対しても光吸收とエネルギー緩和に関する情報を得ることが可能となる。発生した熱エネルギーを検出する方法には、様々な手法があるが、今回熱エネルギーを音響信号に変換して検出する光音響(photoacoustic、略して PA) 分光法を TiO₂粉末系に適用し光吸收情報を得ることを試みた。PA 分光法は PT 分光法の中で歴史も古く、解析も簡単なモデルを適用して行うことが出来る。PA 分光法では、粉末やセラミックスのような不透明かつ光散乱の大きな試料に対しても、有効であることが知られている²⁻⁴⁾。

2. 実験法

TiO₂粉末は、ルチル型とアナターゼ型のものを対象とした(平均粒径は両者ほぼ等しく、およそ 40 nm)。

アナターゼ型のものについては、粒径の異なる 2種類の粉末(前述の 40 nm の他に 11 nm)について測定を行ない、PA スペクトルの粒径依存性について検討を行なった。PA 信号の飽和を防ぐ目的で、TiO₂粉末を KBr 中に微量(約 1/80 程度)攪拌・混合し、その後錠剤成形したものについて測定対象とした。

PA 測定は通常のマイクロフォン法で行なった。光源には 300 W 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ショッパーにより強度変調され、密封された Al 製 PA セル中の試料に照射した。外部からの振動防御のため、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 比の向上が図れた。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信号強度と位相の検出を行なった。測定波長範囲は 320-600 nm、変調周波数は 33 Hz で行なった。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。

3. 結果と考察

図 1 と図 2 に、それぞれルチル型とアナターゼ型の PA 信号強度(●)と位相(□)スペクトルを示す。それぞれ 3.0 eV、3.2 eV 付近から信号強度の立ち上がりが見られると共に、位相スペクトルに極小が見られる。高エネルギー側の位相の進みは、光吸収係数増加に対応する吸収長の減少のためと考えられる。また低エネルギー側での進みは、信号強度の減衰に伴う装置系のノイズの影響と思われる。ここで、PA 信号は飽和せず光吸収係数に比例すること、ならびに TiO₂のバンド構造が直接遷移型であることを仮定して、それぞれの PA 強度スペクトルからバンドギャップを求めた。その結果、バンドギャップはそれぞれ 3.06 eV、3.20 eV と求まった。これらの値は、単結晶で得られている値と良く一致し、PA 分光法の有効性を示している。PA スペ

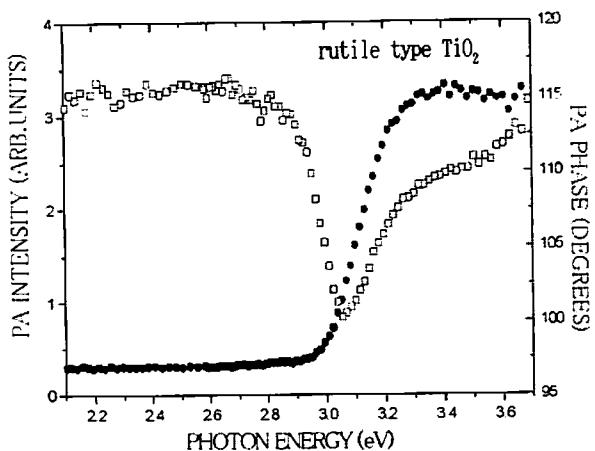


図1 ルチル型 TiO_2 粉末の光音響スペクトル
(●: 強度; □: 位相)

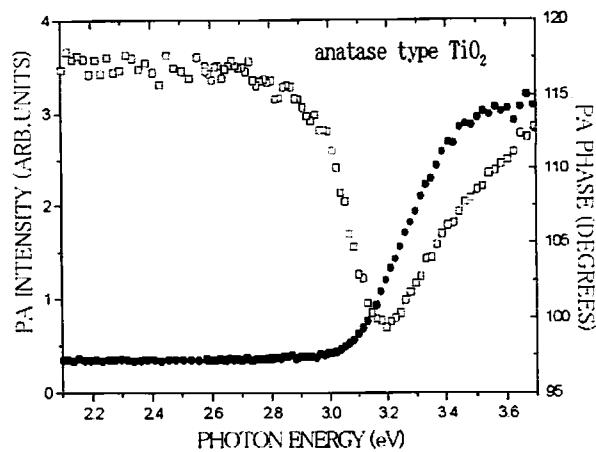


図2 アナターゼ型 TiO_2 粉末の光音響スペクトル
(●: 強度; □: 位相)

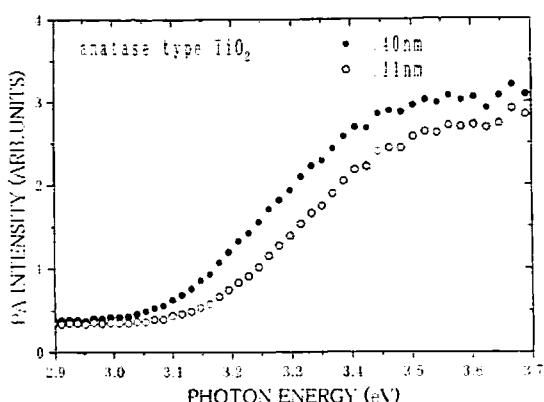


図3 アナターゼ型 TiO_2 粉末の光音響強度スペクトル
(●: 平均粒径 40 nm; ○: 平均粒径 11 nm)

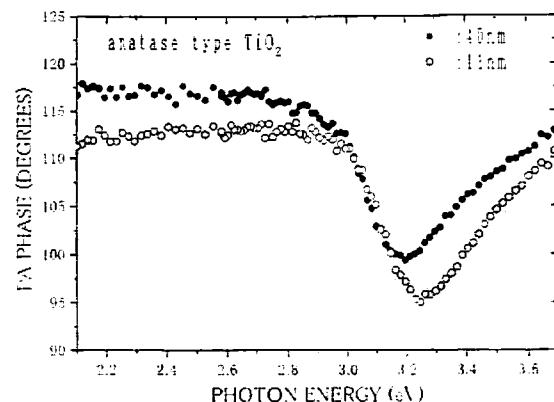


図4 アナターゼ型 TiO_2 粉末の光音響位相スペクトル
(●: 平均粒径 40 nm; ○: 平均粒径 11 nm)

クトルで特徴的な事実は、位相スペクトルでの極小点が、上記で求めたバンドギャップの値と良く対応する点である。したがって、KBr中に粉末を微量分散させた系を作製することで、位相スペクトルから比較的簡単にバンドギャップを見積もることが可能となることが示唆されている。図1と図2から、バンドギャップ以下のエネルギー領域ではPA信号強度が指数関数的に変化することがわかった。一般にバンドギャップ以下の指数関数的勾配は、不純物を含む各種欠陥の情報を反映することが知られている。ルチル型に比べて、アナターゼ型の場合の指数関数的勾配はゆるやかである。この事実は、製造過程等で発生する欠陥生成がルチル型に比べて大きいことを示唆している。

図3に、平均粒径40 nm(●)と11 nm(○)のアナターゼ型 TiO_2 粉末のPA信号強度スペクトルを示す。平均粒径の減少に伴い、バンドギャップは高エネルギー側にシフトする。前述と同様にしてそれぞれのバンド

ギャップを見積ると、3.20 eV (40 nm)、3.25 eV (11 nm)となり、粒径の減少に伴いバンドギャップが増加する。この事実は、電子と正孔が微粒子の箱の中に閉じ込められた結果、量子サイズ効果が出現することを示唆している。図4に、同様の系のPA信号位相スペクトルを示す。強度スペクトルに対応して、極小位置も高エネルギー側にシフトし、同様に量子サイズ効果の可能性を示唆している。

本研究の一部は、文部省科学研究費補助金(No.09650887)の援助を得て行われたものである。

参考文献

- 1) A.Fujishima et al., Bull.Chem.Soc.Jpn. 48, 1041 (1975).
- 2) A.Rosenzweig, Phys.Today 28, September 23 (1975).
- 3) P.Helander, J.Appl.Phys. 54, 3410 (1983).
- 4) T.Toyoda et al., Jpn.J.Appl.Phys. 37, 2827(1998).

PE-3

透過型光音響法による CdInGaS₄の熱物性と電子物性の評価

沈 青、豊田 太郎（電通大、量子・物質工学科）

1. はじめに

多元化合物半導体 CdInGaS₄ は、発光材料・光導電材料・光起電力材料として検討されており、光デバイスや光センサへの応用に可能性を持っている[1,2]。これらの応用には CdInGaS₄ 結晶の電子物性（光励起キャリアの寿命やキャリア拡散率及び表面再結合速度）と熱物性（熱拡散率）に関する情報は重要である。一方、光音響分光法（PAS）は、光励起後の無輻射遷移緩和による熱エネルギーを測定するため、様々な試料の光物性、熱物性と電子物性を非接触・非破壊的に評価することに有効である。半導体試料に対して、光照射面と異なる対面での PA 信号（透過 PA 信号）が、熱拡散とキャリア拡散による信号からの寄与と考えられる。入射光の変調周波数を変化させることによって、熱拡散とキャリア拡散の信号を分離することができ、熱物性と電子物性とを同時に評価する可能性がある[3]。我々がすでに、CdInGaS₄ 試料の光変調周波数依存性を測定し、半導体に関する熱拡散とキャリア拡散を考慮した PA 信号の解析とフィッティングすることによって、その熱拡散率と光励起キャリアの寿命とキャリア拡散率及び表面再結合速度を求めることを試みた[4]。今回、さらに熱拡散、キャリアの表面再結合およびバルク再結合による PA 信号を別々に解析し、CdInGaS₄ の透過 PA 信号は主にキャリアの表面再結合に起因することを解明した。

2. 実験結果

CdInGaS₄ の構造は層状であり、六方晶単位胞で考えると、 $a = 0.3858\text{nm}$ 、 $c = 3.70\text{nm}$ と c 軸方向に極めて細長い構造になっている。本研究で用いた CdInGaS₄ 単結晶は東京理科大学工学部、入江・遠藤研究室により提供されたもので、単純凝固法により結晶成長されたものである。

光音響分光装置を通常のものを用いた。光音響信号の測定は、従来の方法と異なり、図 1 に示すような配置（光が試料の裏面に入射する透過型）を行った。光波長を 450 nm に設定し、光変調周

波数を 12Hz から 400Hz まで変化させて、PA 信号の変調周波数依存性を測定した。異なる厚さの CdInGaS₄ の実験結果を図 2 に示す。光が試料表面に入射する配置で得られた PA 信号強度は変調周波数 f に反比例することが分かる[4]。これに対して、図 1 の配置では、変調周波数の増加とともに PA 信号はある周波数まで減少し、その後増加した。試料の厚さの増加と共に、PA 信号の最小値に対応する周波数(f_{min})は小さくなる。理論解析によって[3, 4]、 f_{min} での熱拡散長は約試料の厚さの 1/5 であることがわかった。また、 f_{min} より小さい周波数で得られた PA 信号は主に熱拡散過程に支配され、 f_{min} より大きい周波数で得られた PA 信号は光励起キャリアの拡散過程に寄与される。このように、変調周波数を変化することによって熱拡散とキャリア拡散による PA 信号を分離して測定することができる。

3. 理論解析と考察

半導体に光を入射すると、過剰キャリア（光励起キャリア）が生成し、その後再結合しながら熱エネルギーを放出する。光励起キャリアの生成と緩和過程が以下のようになる。

- ①バンドギャップ E_g より大きいエネルギーの電子のバンド端への無輻射緩和過程（発熱 Q1）、
 - ②光励起キャリアの拡散過程、
 - ③バルク内でのキャリア再結合過程（発熱 Q2）、
 - ④表面でのキャリア再結合過程（発熱 Q3）。
- 以上の過程①、③と④では、熱が発生する。キャリアの表面再結合速度、キャリアの拡散長 μ_e と熱拡散長 μ_s （変調周波数 f に依存する）の値によって、裏面での温度変化（すなわち、PA 信号）は発熱過程①、③と④のいずれかが強く影響される。従って、変調周波数を変化させながら裏面での PA 信号を測定すれば、キャリア拡散と熱拡散および表面再結合に関する情報が得られる。

一次元モデルを用いて、試料中の光励起キャリア拡散方程式と熱拡散方程式およびそれらの境界条件を利用して試料中の温度変化 $T(x)$ を計算した[4]。PA 信号は試料表面での温度上昇に比例するから、PA 信号が変調周波数 f 、試料厚さ L 、熱拡散率 α 、キャリア拡散率 D と寿命 τ 、および表面再結合速度 s_B と s_g の関数である。したがって、PA 信号の解析と実験結果とフィッティングすることによって、 CdInGaS_4 の熱拡散率 α ($5.0 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$)、光励起キャリアの寿命 τ (1ms)、キャリア拡散率 D ($0.27 \text{ cm}^2/\text{s}$) および表面再結合速度 s (150 cm/s) を求めることができた。図3は(光が試料裏面に入射する配置で) 厚さ $160\mu\text{m}$ の試料の PA 信号周波数依存性の実験と理論曲線である。点線は実験結果で、直線は理論結果である。以上のパラメータを用いて、熱

源 Q1, Q2 と Q3 による PA 信号強度の変調周波数依存性を計算した。その結果を図4に示す。この結果から、我々の実験条件では CdInGaS_4 の透過 PA 信号は主に表面再結合による熱源に起因することが分かった。これは CdInGaS_4 のバンドギャップ E_g (2.5 eV) は大きいと光励起キャリアの寿命は大きい ($\sim 1\text{ms}$) ためだと考えられる。

参考文献

1. G.B. Abdullaev, N.D. Dzhuraev, V.B. Antonov, R.Kh. Nani and E.Yu. Salaev: Sov. Phys.-Semicond., 7 (1974), 1428-1430.
2. T. Toyoda and K. Kato: Jpn. J. Appl. Phys., 35 (1996), 2912-2915.
3. M.D. Dramicanin, Z.D. Ristovski, P.M. Nikolic, D.G. Vasiljevic and D.M. Todorovic: Phys. Rev. B, 51 (1995), 14226-14232.
4. Q. Shen and T. Toyoda, J. Appl. Phys., (to be published).

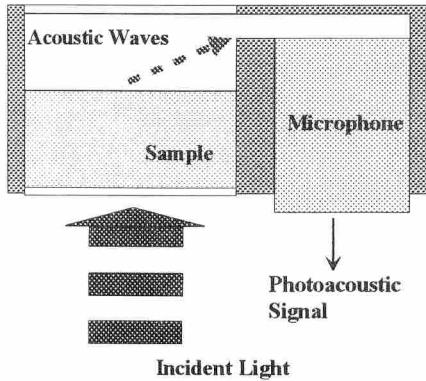


図1 光が試料の裏面に入射する模式図

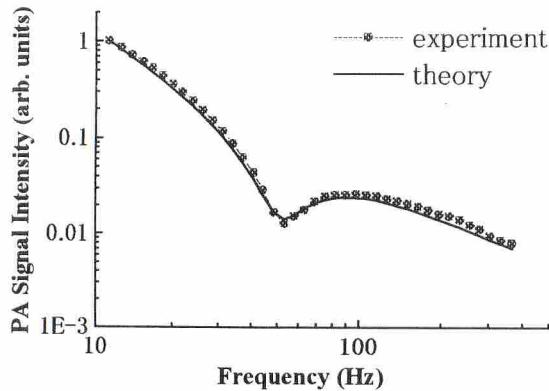


図3 厚さ $160\mu\text{m}$ の CdInGaS_4 試料の PA 信号周波数依存性の実験と理論結果

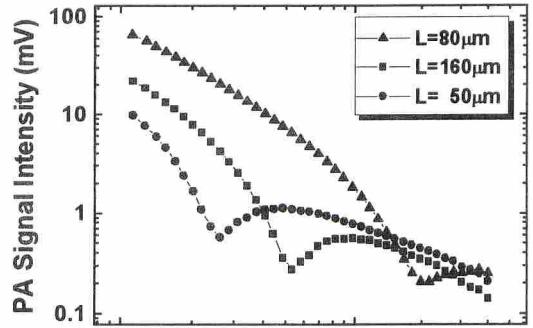


図2 CdInGaS_4 試料の光音響信号強度の変調周波数依存性

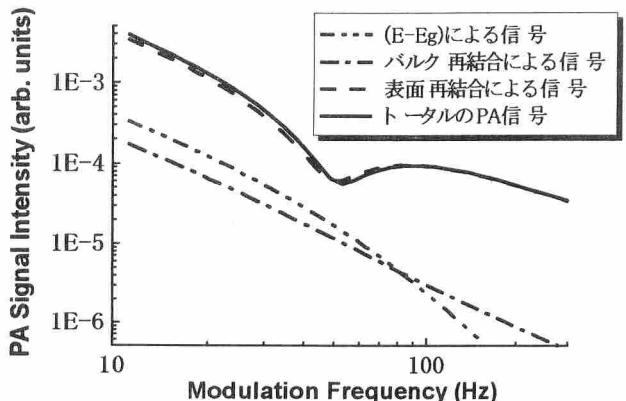


図4 $E-E_g$ (Q1), バルク再結合 (Q2) と表面再結合 (Q3) による PA 信号強度およびトータル信号強度の変調周波数依存性

得永 嘉昭 中井 剛 諏訪 彰 町田 誠 田口 賢一 洪 隆泰 (金沢工業大学)
南出 章幸 (金沢高専)

1.はじめに

前回のシンポジウムで金属薄膜のphoto-thermal研究のための新しい技術として Nonradiative Surface Plasmon Thermal Wave(以下NSPTW) Microscopyを提案した^{1,2)}。この方法によって、数mW程度のHe-Neレーザ光源でもphoto-thermal効果を十分に起こすことが可能となり、従来困難とされた金属薄膜に関する光音響研究への道を開くことができた。しかし、金属薄膜にNonradiative Surface Plasmon(以下NSP)からThermal Waveへの変換についての情報はあまり解明されておらず、現在その第一歩として高エネルギー NSP を発生させるために必要な膜厚とレーザ光の波長との関係についての定量化を試みている。

本稿では高エネルギーの NSP を形成するためには必要な膜厚と使用レーザ光の波長との関係を検討した結果について銀薄膜を中心に報告する。

2.NSPTW 発生の原理

プリズムにsurface plasmonが発生するような角度でレーザ光を入射することで金属薄膜内へレーザフォトンがトンネリングし、そこに photon-electron 相互作用によって電子のプラズマ状態を発生させることが可能になる³⁾。そのプラズマ状態はさらに electeron-phonon相互作用によって空間的に局在した熱源を形成する。図1は NSPTW の発生部分の原理図を示す。

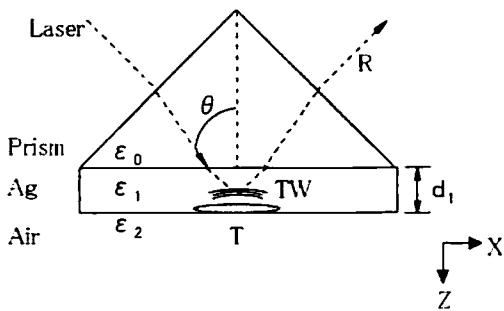


図1 Surface Plasmon Thermal Wave 発生原理

3.シミュレーション方法

Kretschmann 配置のプリズム底面の銀薄膜に波長の異なるレーザ光を入射した場合の反射率を測定して、薄膜内のエネルギー吸収率を推定しているが、この方法では NSP の直接情報を得ることはできない。そのため、金属薄膜と空気の境界でのレーザ光の到達エネルギー（透過エネルギー）を(1)式を用いて、入射角に対する透過エネルギー(T)の推定と、反射率と透過エネルギーの関係についてそれぞれシミュレーションをおこなった⁴⁾。H_y は NSP の磁界成分、ε_i は各層の誘電率、d₁ は金属薄膜の膜厚をそれぞれ示す。

$$T = \frac{\left| H_y \left(\frac{2}{1} \right) \right|^2}{\left| H_{y0} \left(\frac{0}{1} \right) \right|^2} = \frac{t_{01}^P t_{12}^P \exp(i k_{z1} d_1)}{1 + r_{01} r_{12} \exp(2 i k_{z1} d_1)} \quad (1)$$

ここで t_{ik} , r_{ik} , k_{zi} , k_x は次式で与えられる。

$$t_{ik}^P = 1 + r_{ik}^P \quad (2)$$

$$r_{ik}^P = \frac{\left(\frac{k_{zi}}{\epsilon_i} - \frac{k_{zk}}{\epsilon_k} \right)}{\left(\frac{k_{zi}}{\epsilon_i} + \frac{k_{zk}}{\epsilon_k} \right)} \quad (3)$$

$$k_{zi} = \left[\epsilon_i \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 - k_x^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4)$$

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_0} \sin \theta \quad (5)$$

一方、反射率は、(6)式により与えられる。

$$R = \frac{r_{01}^P + r_{12}^P \exp(2 i k_{z1} d_1)}{1 + r_{01} r_{12} \exp(2 i k_{z1} d_1)} \quad (6)$$

4. シミュレーション結果とその検討

図2は、膜厚を変化させた時の入射角に対する透過エネルギーのシミュレーション結果を示す。レーザ波長1000[nm]の時、透過エネルギーが最大となる入射角は42.07°(膜厚60[nm])であることがわかった。また、透過エネルギーはそれぞれの波長においてNSPが発生する臨界角で最大値を示している。さらに入射レーザ波長が大きくなると半値幅も狭くなることが明らかになった。

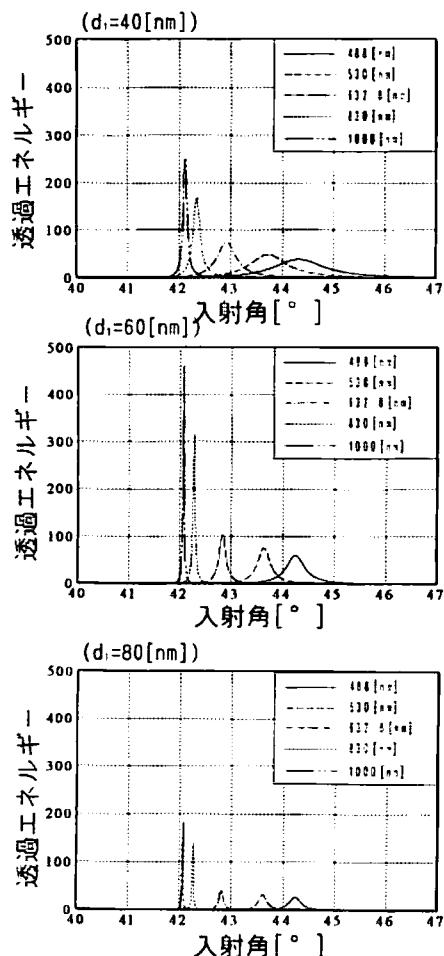


図2 入射角に対する透過エネルギーの関係

図3は、各膜厚の反射率と透過エネルギーの関係のシミュレーション結果を示す。同じ反射率でも使用レーザ波長によって透過エネルギーが大きく異なることがわかった。

これらのシミュレーション結果より銀薄膜に関しては膜厚 $d_1=60[\text{nm}]$ 程度で近赤外領域のレーザ光源を用いるほうが、透過エネルギーを非常に強くできることが明らかになった。

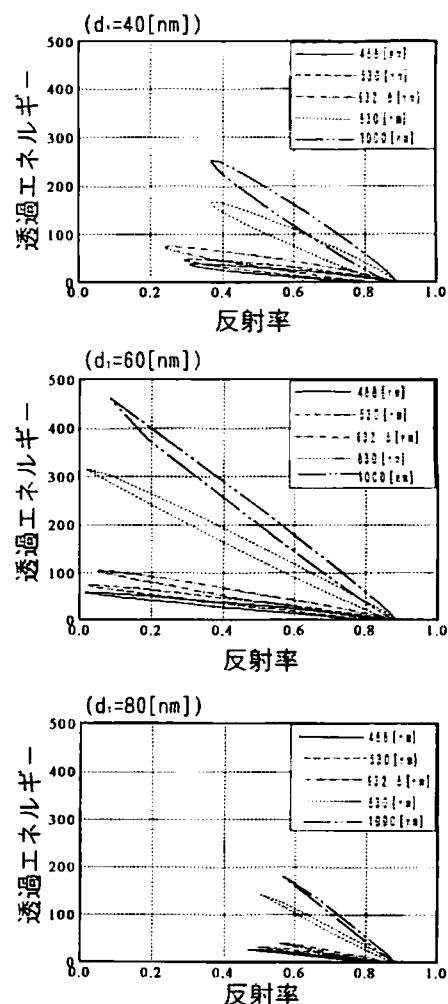


図3 反射率と透過エネルギーの関係

5. あとがき

以上、高エネルギーNSPを形成するために必要な膜厚と使用レーザ光の波長との関係についてシミュレーションした結果と検討を行った。

謝辞

本研究の一部は文部省(日本学術振興会)科学研究費補助金「基盤研究(C)(2)」の補助を受け行われている。

参考文献

- 1) 得永嘉昭他：第19回USE予稿集(1998)pp.63-64.
- 2) Y.Tokunaga et al.: Jpn.J.Appl.Phys. 38 (1999) pp.3187-3188.
- 3) T.Inagaki et al.: Phys.Rev.B24 (1981) pp.3644-3646.
- 4) H.Raether : *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surface and on Gratings*, eds. G.Hass et. al. (Springer Verlag, U.S.A.,1977)p.16.

PE-5

不透明材料の光音響信号の周波数依存性の実験的検討

南出章幸 志田純章[†] 得永嘉昭[†]
金沢高専 [†]金沢工大

1. はじめに

私たちは、これまで光音響顕微鏡システムによる不透明材料の内部傷の新しい3次元画像化を提案し^[1,2]、さらにレーザ光変調周波数と熱拡散長の関係から内部傷深さをある程度定量的に評価できることを明らかにした^[3]。

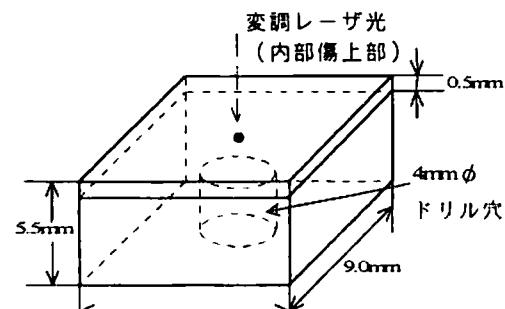
これまでの研究においては試料に照射されるレーザビーム径が大きいと仮定し、熱波の拡散を試料深さ方向への1次元拡散と近似して処理してきた。そのため、実験においてこの仮定を適用するためには光音響(PA)信号の測定を試料中央付近に限定し、熱波の横方向への拡散のために生ずる試料エッジの影響を無視してきた。しかし、不透明材料の傷の定量的な評価を行うためには、熱波の横方向への拡散を含めた3次元拡散を考慮した実験と理論解析が必要不可欠である。

本報告では、不透明材料のPA信号の定量評価の前段階として、黒鉛試料の様々な場所におけるPA信号の周波数依存性(f 依存性)を測定した結果について述べる。

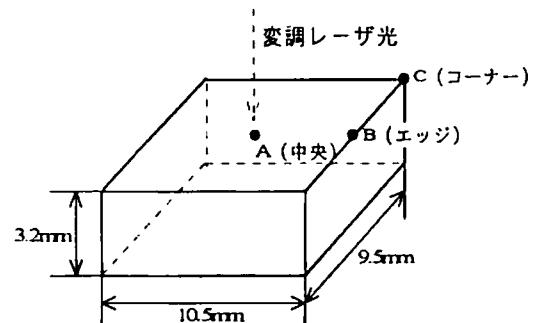
2. 実験試料と測定装置

図1(a)(b)は実験に用いた黒鉛試料(東洋炭素ISEM-3)の概略を示す。(a)は内部傷のある試料であり、ドリル(4mmφ)で試料に穴を開けた後、1μmのアルミナ粉末で鏡面研磨した黒鉛板(厚み0.5mm)をエポキシ系接着剤で穴上部に接着剤がつかないように注意して接着した。図1(b)は傷のない均一材料であり、試料上の中央(A), エッジ(B), コーナー(C)にそれぞれレーザ光を照射した。なお、どちらの試料もそれらの両面は1μmのアルミナ粉末で鏡面研磨し、試料表面における光散乱の影響を極力抑えた。

測定系とPA信号の f 依存性の測定方法は参考文献(4)を参照されたい。



(a) 内部傷のある黒鉛試料



(b) 傷なし黒鉛試料

図1 測定試料の概略

3. 測定結果とその検討

(1) 内部傷部でのPA信号の f 依存性

まず黒鉛内部傷部分にレーザ光を照射し、PA信号の f 依存性を測定した。レーザ光照射位置は試料中央であり、黒鉛の熱拡散長から考えると熱波が試料エッジの影響を受けないことになる。図2は実験結果を示す。レーザ光の変調周波数が10Hzから110HzまでPA信号振幅が $f^{-1.15}$ 依存性を示すのに対して、110Hz以上では $f^{-0.07}$ 依存性となつた。一方、PA信号位相は周波数が高くなるにつれて位相が遅れる傾向を示したが、120Hz付近

Experimental study on frequency dependence of photoacoustic signal of optically opaque material: A. Minamide, S. Shida[†] and Y. Tokunaga[†] (Kanazawa Technical College and [†]Graduate School of Kanazawa Institute of Technology)

において一度位相が進んだ後、遅れる変化が見られた。120Hzでの黒鉛の熱拡散長が0.49mmであり、黒鉛内部傷深さとほぼ等しいことから熱波が内部傷に達し、そこで反射したため位相に大きな変化が生じたものと考えられる。以上の結果から、1次元解析でも傷の深さに関する情報がある程度定量的に求まることが明らかとなった。

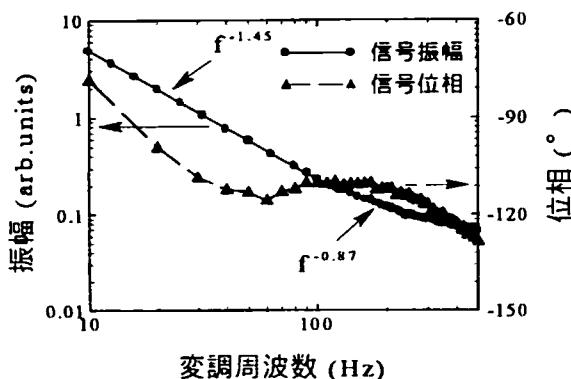


図2 内部傷部でのPA信号のf依存性

(2)異なるレーザ光照射位置でのPA信号のf依存性

PA信号の強度や位相は、不透明材料表面層で発生した熱波の材料内の伝搬状況に依存すると考えられる。従って、発生熱波が材料内部を自由に伝搬できる場所（試料中央付近）とその熱波の伝搬が妨げられる場所（試料エッジ近傍）では得られるPA信号のf依存性に違いが生ずると予想される。この予想を確かめるためにレーザ光照射位置が試料中央A、試料エッジB、試料コーナーCの時のそれぞれのPA信号のf依存性を測定し比較した。

図3は傷のない黒鉛試料(図1(b))のA,B,Cの場所でのPA信号のf依存性の測定結果を示す。PA信号振幅の測定結果：図3(a)では、A,B,Cの順に強度が高くなり、さらにそれらの傾きもA,B,Cの順に大きくなつた。熱波の横方向への伝搬のしやすさがA,B,Cの順である⁵⁾ことから、各f依存性の傾きの違いは熱波の伝搬状況に依存していると考えてもよさそうである。一方、PA信号位相：図3(b)では、Aに比べて熱波の横方向への伝搬が妨げられるB,Cの方が位相が遅れる傾向を示した。

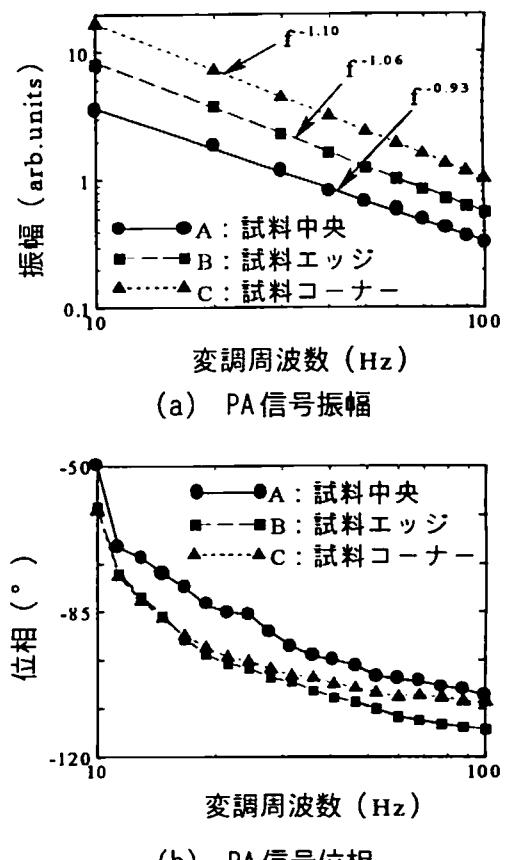


図3 レーザ光照射位置の違いによるPA信号のf依存性

4. おわりに

以上、黒鉛内部傷部でのPA信号のf依存性の測定結果と黒鉛試料の異なるレーザ光照射位置でのPA信号のf依存性の変化について述べた。

謝辞

本研究の一部は文部省科研費奨励研究Aと笹川科学的研究の助成によって行われている。

参考文献

- 1) 南出章幸 他：第19回超音波シンポジウム 講演予稿集(1998) p.65.
- 2) A. Minamide et al.: *Proc. Int. Conf. Photoacoustic and Photothermal Phenomena* (AIP, 1999) p.158.
- 3) A. Minamide et al.: *Jpn. J. Appl. Phys.* 38 (1999) p.3189.
- 4) Y. Tokunaga et al.: *Jpn. J. Appl. Phys.* 34 (1995) p.2900.
- 5) L. C. Aamodt et al.: *Appl. Opt.* 21 (1982) p.111.

PE-6

リニアモーター駆動パルスステージを用いた光音響顕微鏡装置の試作

宮本 克彦、星宮 務 (東北学院大学工学部)

1. 序論

近年、一般構造物や工業部品の十分な破壊強度を確保し信頼性を高めるために、これらに発生する欠陥を非破壊的に検査する様々な手法が発達してきている。筆者らはこれまでに光音響顕微鏡による構造物等の非破壊検査を行ってきた¹⁾。これまでの筆者らのシステムは、(1)光ビームを走査するX-Yオプティカルスキャナーによるもの、(2)試料をパルスステージで走査するものの2つであった。(1)のシステムは、走査速度が非常に高速であるが、その反面測定点が照射する中央部から離れれば離れるほど、測定して得られる画像データに非直線歪みを生じてしまうという問題点を抱えていた。光音響顕微鏡は音響波を検出しデータサンプリングを行うので、コンデンサーマイクロフォンを用いるタイプのものは外部ノイズに非常に弱い。そのため(2)のシステムでは、ステージ走行時に発生する音響ノイズが問題であった。しかし、リニアモーター駆動型のステージを用いることでこれらの問題点を解消することができたので発表する。

2. 実験装置

本実験に用いた実験装置のブロック図を図1に示す。

装置は、大きく分けて光学部、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。光学部は、レーザー光源（アルゴンレーザー）とレーザー光を変調させるためのメカニカルチョッパー、そしてレーザー光収束のための光学顕微鏡からなる。駆動部は、試料を走査するリニアモーター駆動式2軸パルスステージと、これを制御

するコントローラーCAT IIからなる。検出部は、光音響セルとコンデンサーマイクロフォン。信号処理部は、光音響信号を増幅し同期検波するロックインアンプ。コンピュータ部はパソコンコンピューターおよびGP-IBバスからなっている。

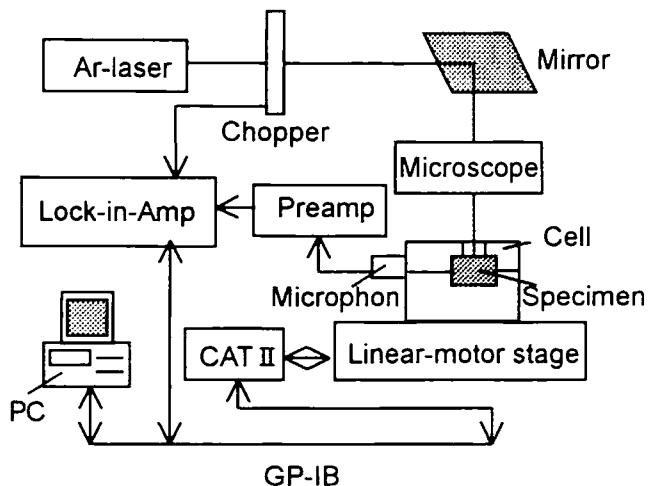


図1 実験装置のブロック図

発生した周期的な圧力変化をマイクロフォンによって電気的信号に変換して検出する。検出された信号は、ロックインアンプにより変調信号と同期検波され、S/Nの向上がなされる。そして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て画像として再構成・表示される。特にリニアモーター型パルスステージは、可動形リニア直流モータに属し扁平コイル型の直流モータである。今まで用いていたウォームギア式のパルスステージは、1パルスで $2\mu m$ の精度で駆動しており駆動時の音響ノイズもかなりのものであった。リニアモータステージは、従来形パルスステージの20分の1の $0.1\mu m$ の精度で駆動され、駆動時の音響ノイズもほとんどない。さらに高速

The trial manufacture of photoacoustic microscope apparatus using the linear motor driven pulse stage:

K.Miyamoto, T.Hoshimiya, Tohoku-gakuin University

応答、高速駆動、低発塵で高耐久などがその特徴として挙げられるため、光音響顕微鏡の駆動装置としては、最適のものと言うことができよう。

3. 試料片

試料にはアルミニウムの矩形板を用いた。図2に試料の概略図を示す。その大きさは、 $40 \times 40 \times 10^t$ mmである。この試料のほぼ中央部にスリット状の欠陥が互いに直角に交差するように機械加工が施されている。

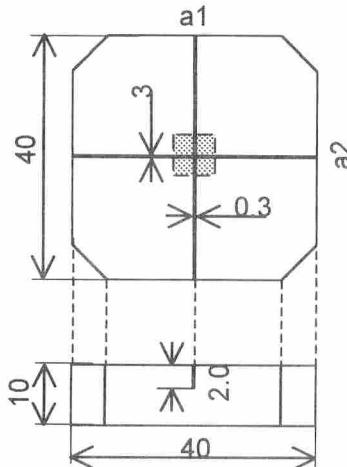


図2 試験試料の概略図

図中に a1、a2 と示した欠陥の深さは、どちらも 2.0mm である。測定を行ったのは、図で灰色に塗った 3.0mm 四方の部分である。

4. 実験結果及び考察

測定して得られた光音響画像の一例を図3に示す。解像度は 100×100 ピクセルであり、変調周波数は、180Hz であった。(a)の画像（振幅像）において、2本の表面欠陥が互いに交差している画像中央部において著しく強い光音響像（上下、左右）が確認でき、表面欠陥の交差部の位置を光音響信号画像から特定できる。

図の中央部付近で光音響信号が最大になっている理由としては、レーザービームに照射される部分の面積の増大が考えられる。欠陥部分ではない箇所に照射されている場合の照射面積がレーザーのビーム径であるのに対し、欠陥が直角に交差している部分では、レーザービームに照射される部分の面積はビーム径と欠陥の側面を加えたものとなり、吸収量の増大による熱源が増大する。よって光音響信号も、欠陥が交差している中央部分で最大となっている。一方、(b)の画像（位相像）では、振幅像よりもさらに忠実に欠陥の形状

が表示されることがわかる。

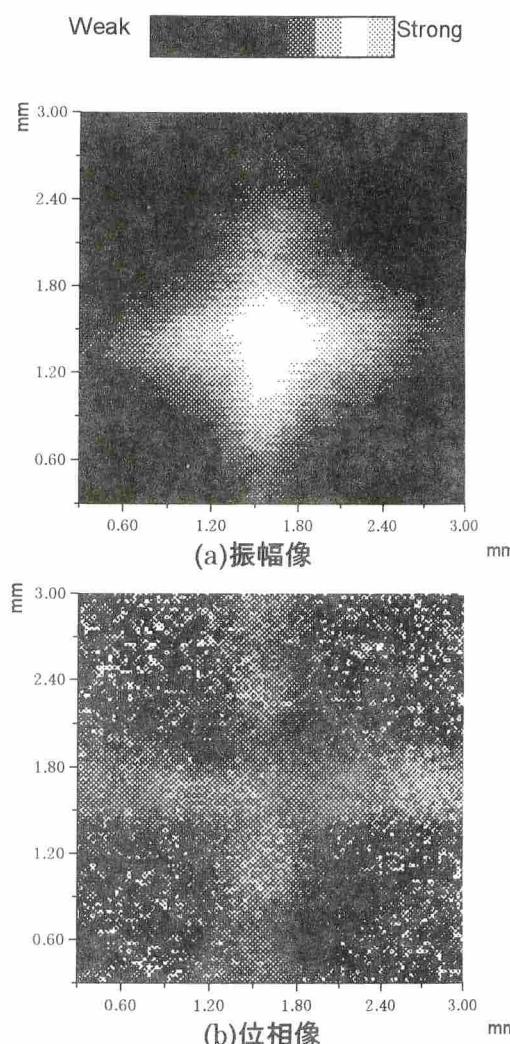


図3 交差欠陥に対して得られた振幅像及び位相像

5. 結論

リニアモーター駆動のパルスステージを用いた本方式の装置では、ステージ走行時の音響ノイズがほとんど無く、画像データの歪みも無かった。しかし、全体の測定時間が、約 150 分強とかなり長くかかったので、リニアモーター型パルスステージの特徴である高速駆動性を生かして、測定時間をより短縮する事、およびリニアモータ型パルスステージの高分解能を活かした、より高解像度の光音響像を得る事などが今後の課題である。

【参考文献】

- 1) T.Hoshimiya, H.Endoh, and Y.Hiwatashi: Jpn. J. Appl. Phys., 35, 2916-2920 (1996)