

超音波パルスの多重反射による液体中の吸収測定

Measurement of Ultrasonic Absorption in Liquids with Multiple-Echo Method

小沢 春江*・高木 堅志郎*・根岸 勝雄*

Harue OZAWA, Kenshiro TAKAGI and Katsuo NEGISHI

1. はじめに

液体中を伝播する超音波の吸収係数を得ることは、音波物性の研究に欠かせない重要な測定の一つである。従来数 MHz～数 100 MHz の周波数範囲では、パルス法が最もよく使われている。これは平行に対向させた 2 枚の超音波振動子を送・受波器として使い、パルスを伝播させて、その距離を変えながら受波した振幅の減衰を測定し、吸収係数を求めるものである。このパルス法は液体の吸収の強さや、測定する周波数に応じて適当な伝播距離を選ぶことが容易である利点を持つ反面、一方の振動子が可動であるために平行度が不安定になる欠点を持ち、複雑な機構が必要である。固体の測定では伝播距離を連続的に変えることが不可能なので、固定した 2 つの面の間を多重反射するパルスの減衰から吸収係数を測ることが一般に行われている。液体の場合には、振動子で反射するとパルスの波形が変化するというような問題があるため、わずかな例外¹⁾を除いて、多重反射による測定は行われていない。しかし、この波形変化を理論的、実験的に予想できれば、振動子固定型の装置を使い、パルス多重反射による吸収測定が可能である。

本論文では、本来音速測定法である Pulse-Echo-Overlap 法²⁾の装置に減衰器を付加するだけで、数 MHz 域の吸収係数が測定できることを確かめ、幾つかの有機液体についての測定結果を示す。

2. 吸収測定の原理

Pulse-Echo-Overlap 法は音速を精度良く測定するための装置である²⁾。平行に向かい合わせた水晶振動子の間に超音波パルスを伝播させて、第 1 パルスと、振動子で 2 回反射された第 2 パルスとをオシロスコープの画面上で観測する。その時、オシロスコープのトリガ周期を CW 発振器で調節して、片道の距離 l だけ伝播した第 1 パルスと、 $3l$ 伝播した第 2 パルスの先端を重ね合わせれば、トリガのくり返し周期は超音波パルスの 1 往復 $2l$ の伝播時間 T になり、 $v=2l/T$ より音速が求められる。この装置で 2 つのパルスの振幅がオシロスコープの

* 東京大学生産技術研究所 第 1 部

画面上で観測できることを利用して、第 1 パルスの振幅 A_1 と第 2 パルスの振幅 A_2 の比から、その液体の吸収係数を求める。

液体の吸収による減衰 A は

$$A = 20 \log_{10} e^{2\alpha l} = 17.4 \alpha l \text{ (dB)} \quad (1)$$

で表される。この実験に使われた装置では、送・受波器間の距離 l は 6.2 cm である。通常の液体のうちでは、吸収の最も少ない水の場合、20℃、3 MHz で、 $\alpha = 2.25 \times 10^{-3}$ neper/cm であり、これによる減衰は 0.24 dB 程度であるが、ベンゼンのように吸収の大きな液体では、20℃、3 MHz で $\alpha = 7.43 \times 10^{-2}$ neper/cm もあり、減衰は 8 dB 以上となる。しかし、実際の測定値は液体の吸収による減衰だけでなく、回折による損失、第 2 パルスの波形変化による影響³⁾、2 枚の水晶振動子の共振周波数のずれによる損失、水晶振動子の平行度のずれによる損失、水晶の機械的損失、水晶の電気負荷での損失、その他いろいろの原因による減衰量を含んでいる。したがって液体の吸収係数を求めるためには、測定値からこれらの減衰量を差し引かなければならない。このうち比較的大きいと思われるものについて次に述べる。まず回折の影響であるが、円形の送波器から出て、回折して広がりながら伝播する超音波パルスが、対向して置かれた同じ直径を持つ受波器によって受けられた時のみかけの損失は理論的に計算できる。その結果から、距離 l と $3l$ での損失の差を計算して図 1 に示した。横軸は音速で示

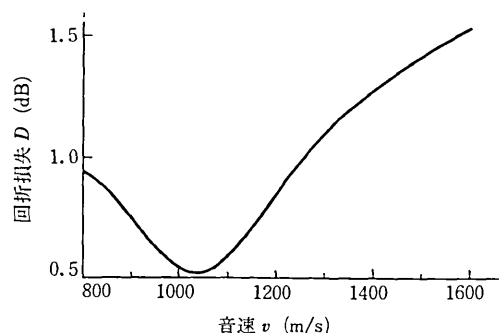


図 1 回折損失 $a = 0.5 \text{ cm}$, $f = 3 \text{ MHz}$, $l = 6.2 \text{ cm}$ として計算した。

研究速報

してある。音源からの距離を Z 、音源の半径を a 、波長を λ とした時、回折損失 D は $Z/\lambda > 10$ の範囲では、 $Z\lambda/\lambda^2$ の関数でほぼ表される。 Z と a は定数なので D は λ に依存する。また周波数を f として、 $v=f\lambda$ より D は v の関数となる。図1は $a = 0.5\text{ cm}$ 、 $f = 3\text{ MHz}$ として計算した結果である。次に第2パルスの波形変化についてであるが、第2パルスは水晶で2度反射した後受波されたもので、反射の際水晶の表面で反射した成分と、半波長の厚さを持つ水晶の裏面で反射した成分が互いに逆位相で干渉するために、図2のようにピークを3つ持つ形に変化する³⁾。したがって第1パルスと第2パルスは形が異なり、そのためにピーク値の変化が起こる。この波形変化は反射率によって異なるため液体の ρc に依存する。これによる振幅の変化は最大でも約2.5dB程度である。また、2枚の振動子の平行度のずれによっても減衰が生じる。受波パルスの振幅は水晶面の各点での出力電圧の積分値なので、平行度が角度 θ だけずれると各点での成分が打ち消し合い全体として振幅が減少する。その効果は指向性と同じように $a\theta/\lambda$ に依存する。普通の液体では、 $f = 3\text{ MHz}$ 、 $\theta = 5'$ のとき、その減衰量は約0.1dB程度である。 θ は超音波セルの両端面の工作精度で決まるが、この実験で使用したものでは $5'$ を越えていない。その他いくつかの原因による損失は問題にならない程小さい。

3. 実験装置

図3に実験装置のブロック図を示す。CW発振器から出た方形波の周波数を分周器によって数10分の1に下げ、Pulserをトリガして超音波パルスを励起する。液体中を伝播したパルス、およびいくつかのエコーパルスが受波側の水晶振動子によって受信され、減衰器を通りオシロスコープ画面上で観測される。超音波パルスは平行に固定された2枚の水晶振動子の間を往復しながら減衰していくが、一連のエコーが完全に減衰しないうちに次のパルスを励起すると、前のエコーとの干渉が起こりパルスの形が変化する。そこでCW発振器の周波数を液体の吸収係数に応じて、1/10、1/20、1/40、1/80、1/160のうち適当な分周率を選んで下げ、その影響が現れるのを防ぐ。またPulse-Echo-Overlap法では第1パルスと第2パルスを重ね合わせると、第3、第4……パルスも同じ位置に重なり測定がしにくくなる。そこでオシロスコープのZ軸に輝度変調パルスをかけ、第1パルスと第2パルスだけが画面上で強められて見えるようにした。実験に使用したセルは図4のように真鍮製のパイプ状のもので、両端に平行に水晶振動子が固定されている。このセルは2枚の振動子間の距離 l が6.2cmである。水晶振動子は直径2.0cm、電極の直径が1.0cm

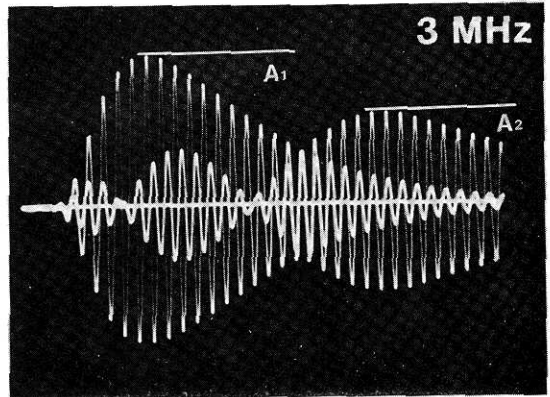


図2 第1、第2パルスの受波波形

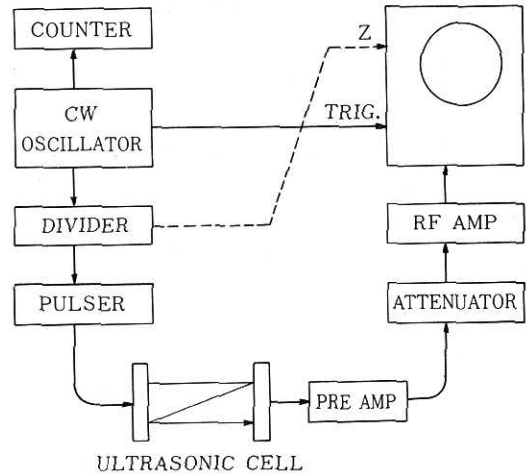


図3 測定系のブロック図

で、基本振動数は3MHzにある。RF AMPは中心周波数が3MHzと9MHzに切り換えられ、基本と3倍の高調波で測定ができる。まず第2パルスの振幅をオシロスコープの画面上で基準の高さに合わせ、次に減衰器を使って第1パルスの振幅を同じ高さに調節し、減衰量を測定する。吸収係数は温度に依存するのでセル全体を恒温槽に入れて、 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ で温度を制御する。

4. 装置損失の検定

すでに述べたように測定された減衰値には液体の吸収以外のいろいろな影響が含まれており、そのうちの多くは理論的に減衰量を予想することが困難である。そこでそれらの減衰量のうち回折効果によるもの以外のすべての減衰を装置損失と考え、これを実験的に求めた。まず吸収値のよく知られている液体を使って3MHzにおけるみかけの減衰量を測定し、その値から吸収と回折による損失を差し引けば装置損失が得られる。吸収損失は α の文献値⁴⁾から(1)式を使って求め、回折損失はこの

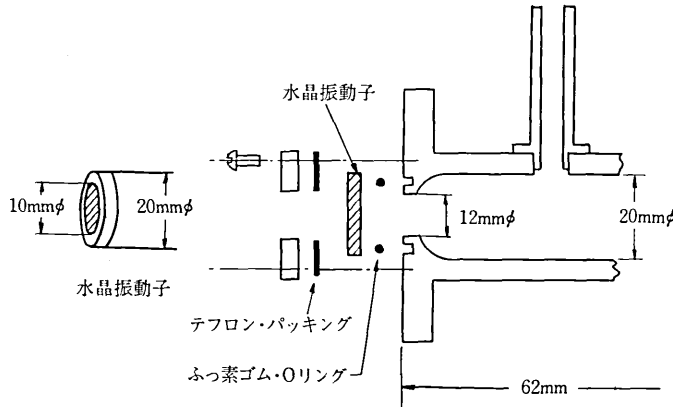


図4 超音波セルの構造

表1 20°Cにおける測定結果

	音速 (m/s) v	減衰 (dB)				$\alpha/f^2 \times 10^{17} (\text{s}^2/\text{cm})$		
		M	D	I	A	(a)	(b)	(c)
シクロヘキサン	1278	6.5	1.04	3.6	1.86	191	175	197
クロロホルム*	968	8.0	0.85	3.0	4.42	455	470	424
ジブロモメタン	961	8.5	0.60	2.5	5.40	556	545	560
ベンゼン	1319	13.5	1.04	3.5	8.96	922	900	890
ジクロロメタン	1091	13.5	0.57	2.8	10.13	1040	1045	1020
シクロヘキサン-ジクロロメタン混合液								
シクロヘキサン5%	1092	9.5	0.56	2.9	6.04	621	550	-
” 10%	1094	8.0	0.57	3.0	4.43	456	420	-

*30°Cでの測定結果

装置で音速を測定して図1から求める。装置損失は液体の吸収係数の大きさには依存しないので、その傾向が相対的に顕著に現れるように、 α/f^2 が $100 \times 10^{-17} \text{ s}^2/\text{cm}$ 以下の比較的吸収の少ない液体を試料とした。装置損失のうち一番大きな原因と考えられるのはパルス波形の変化であるから、測定結果は横軸を ρc として図5に示した。測定点は実線で示す一つの曲線ではほぼ表すことができるので、これはこの装置に固有な損失と考えられる。以後、この実線を3MHzにおける装置損失 I として、測定された減衰量から、これと回折損失とを差し引き、液体の吸収係数を求める。

5. 有機液体の吸収測定

いくつかの有機液体、およびそれらの混合液について3MHzで音速と吸収を測定した結果を表1に示す。 M は測定された減衰量、 A は M から D と I を差し引いた値で、これから(1)式を使って α/f^2 を求めたものが(a)である。一般に吸収係数 α は周波数の2乗に比例するので、通常吸収の大きさは α/f^2 の形で表される。(b)は高分解能ブラッグ反射法⁹⁾を用いて60MHz~1GHzで測定を行い、その結果から理論的に予想された3MHzでの吸収値、(c)は他の文献値⁴⁾である。この結果から

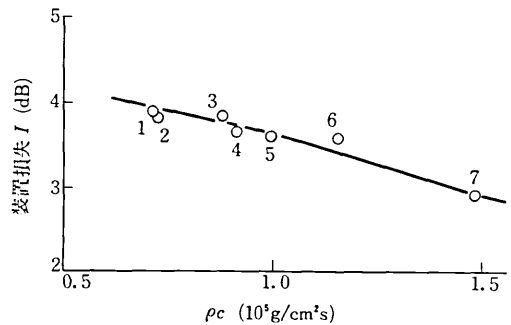


図5 3MHzでの装置損失 1.ノルマルヘキサン 2.エーテル 3.メタノール 4.エタノール 5.シクロヘキサン 6.トルエン 7.水

$\alpha/f^2 > 200 \times 10^{-17} \text{ s}^2/\text{cm}$ の液体については10%以内の精度で測定が可能であることがわかる。これは従来のパルス法と同程度である。これらの有機液体は粘性が小さいにもかかわらず、大きな吸収係数を持つ。この異常吸収の原因は、分子の並進エネルギーと分子内振動エネルギーの間の交換過程における緩和現象によるものである。このように緩和の研究において興味のある液体には吸収係数の大きいものも多く、この方法は実際の測定に

研究速報

十分な精度を持つといえる。α/f² が 200 × 10⁻¹¹ s²/cm より小さい液体では A に対して I と D が大きくなり、精度は落ちる。しかし、これはパルスを伝播させて行う測定に共通の問題であり、そのような試料については共鳴法⁶⁾のように、送・受波器間の定在波を利用する方法が有利となる。また、今回の測定はすべて 3 MHz で行ったが、原理的には 3 MHz の奇数倍の周波数で測定が可能である。しかし、吸収が急に増加し、パルスの伝播が困難になるので I の短いセルを作る必要がある。

6. ま と め

本来、音速の測定法である Pulse-Echo-Overlap 法に簡単な改良を加えることによって、液体の吸収も同時に測定することが可能になった。直接測定される減衰量の中には、吸収による真の減衰の他に、回折による損失と装置に固有な損失が含まれているが、回折損失は理論的に、装置損失は実験的にその大きさを求めておけば、α/f² が 200 × 10⁻¹¹ s²/cm 以上の液体について 10% の精度で測定ができる。いくつかの有機液体で 3 MHz における吸収測定を行い、有用性を示した。

液体の音波物性の研究においては、低周波での音速と

吸収係数は量も基本的な物理量であるが、この方法は、この 2 つの量を同時に測定できるという点で大きな意味を持つ。

謝 辞

本研究を行うにあたり有益な助言を頂いた本研究所第一部 鳥飼安生教授 並びに装置作製および結果の検討に御協力頂いた崔博坤博士に深く感謝致します。

(1979年6月23日受理)

参 考 文 献

- 1) H. Nakajima, H. Tanaka, O. Shimazaki, K. Yamanaka, T. Kinoshita and Y. Wada: Jpn. J. Appl. Phys. **18** (1979) 1379.
- 2) E. P. Papadakis: J. Acoust. Soc. Am. **42** (1976) 154.
- 3) 根岸: 日本音響学会講演論文集 (1975, 5) 323.
- 4) 実吉・菊地・能本編 超音波技術便覧 (日刊工業新聞社 1966) IV. 4.
- 5) K. Takagi and K. Negishi: Ultrasonics, **16** (1978) 259.
- 6) F. Eggers: Acustica, **19** (1968) 323.

正 誤 表

(8月号)

頁	段	行	種 別	正	誤
639	上	↓2	UDC	621.762.5	921.762.5

(9月号)

頁	段	行	種 別	正	誤
666	左	↓19	本 文	(Manuscript recived, May 23, 1979)	受理年月日の脱落