

高分解能ブラッグ反射法による液体中の高周波超音波の測定

High-Resolution Bragg Reflection Method for Measuring High Frequency Ultrasonic Waves in Liquids

高木 堅志郎*・根岸 勝雄*

Kenshiro TAKAGI and Katsuo NEGISHI

1. はじめに

超音波の音速と吸収を測ることは、その媒質の物性を研究するうえで重要な手がかりを与える。音速は圧縮率、吸収は粘性というように物質の基本的な量に対応しているが、特に興味あるのはそれらが周波数依存性を示す場合である。超音波の音速と吸収の示す周波数変化は緩和型がほとんどであるが、その場合、緩和が一つであっても周波数の一桁以上の範囲にわたって変化が起る。緩和が二つ以上あれば変化の現われる範囲は何桁にもわたることになる。したがって、できるだけ広い周波数範囲で測定ができることが望ましいが、一つの方法ですべての範囲を測定することはできない。液体については、現在まで可聴周波数から10GHzくらいまでそれぞれの領域で適した方法が行われている。そのうち一番多く測られているのは、パルス法や超音波干渉計による1MHzから100MHzの領域である。それ以上では数GHz域のブリュアン散乱¹⁾がある。それらの中間の領域、100MHzから1GHzの間の約1桁は液体の場合有効な測定法がなく、緩和の研究のうえで大きな障害となっていた。これまで²⁾、³⁾の研究者たちがパルス法や干渉計を使って数100MHzでの吸収測定を行ったが、波長が短くまた吸収が大きいため測定装置はきわめて高い機械的精度を要求され、装置作りとその取扱いが容易でない。そのほかにGordonらは、超音波によるブラッグ反射光の角度分布を分析して吸収を求める方法を提案した。しかしこれは分解能が不十分のため、1GHz以下で有効とはいえない。吸収については以上のようにいくらかは測られているが、音速の方は皆無といってよい。

ここでは液体中の100MHzから1GHzまでの音速と吸収の新しい測定法である高分解能ブラッグ反射法^{5,6)}について述べ、その応用例を示す。

2. 原理

結晶によるX線回折と同様に、周期的な音波の波面

によってもブラッグ反射が起り、図1に示すように波面に対して θ 方向から入射した光を強く反射する。ブラッグ角 θ は音波の波数 K_0 、試料中の光の波数 k を使っ

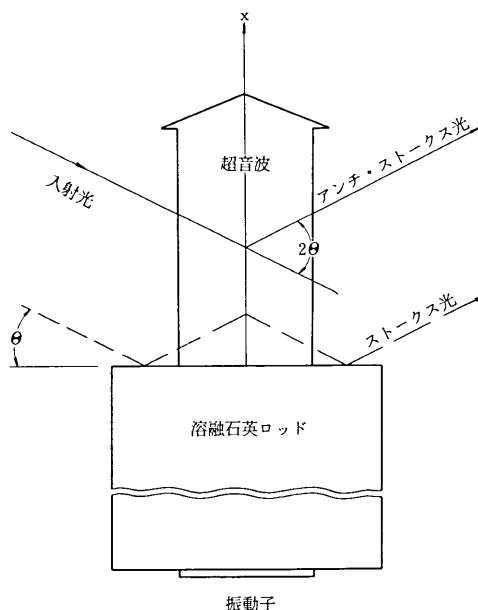


図1. 光と超音波の相互作用領域

て次のようなブラッグの条件で与えられる。

$$2k \sin \theta = K_0 \tag{1}$$

波長の知っている入射光で θ を測れば K_0 がわかり、それと超音波の周波数 f から音速 v は

$$v = 2\pi f / K_0 \tag{2}$$

と求まる。

吸収は次のような原理で求める。吸収係数 α で減衰しながら x 方向に進行する音波を考えるとその x 点での振幅は、時間変化の項を省略すると

$$S_0 \exp \{(-\alpha + iK_0)x\}, \tag{3}$$

となる。 S_0 は入射したときの振幅である。このような波では波数はもはや唯一には決まらず、 K_0 以外の成分も含んでいることがわかる。波数が K であるような成分の音の振幅は、(3)をフーリエ変換することにより

*東京大学生産技術研究所 第1部

$$S(K) \propto \frac{S_0}{2\pi} \int_0^{\infty} \exp\{(-\alpha + iK_0)x\} \exp(-iKx) dx$$

$$= \frac{S_0}{2\pi\alpha} \frac{1}{1 + i(K - K_0)/\alpha}, \quad (4)$$

となる。ここで積分の下限を0にしたのは、超音波が存在するのは $x \geq 0$ の範囲だからである。波数の分布は(4)の実数部で与えられるが、これは K_0 を中心としたローレンツ型の曲線でありその幅は α に比例している。波数がこのように分布しているとブラッグ反射の起る入射角(ここで入射角は音波面に対する角度で定義する。)もまた θ の前後で分布していることになり、 θ からすこしずれた方向からの入射光も反射される。いま入射角を θ_i とするとその光を反射する音波の波数は(1)と同様な式を使って

$$K = 2k \sin \theta_i, \quad (5)$$

となる。反射光の振幅はその反射に寄与した音波の振幅と、入射光の振幅 E_0 の積に比例する。波数が $2k \sin \theta_i$ で与えられる音波の振幅は、(5)を(4)に代入して

$$S(2k \sin \theta_i) \propto \frac{1}{1 + 2ki(\sin \theta_i - \sin \theta)/\alpha}, \quad (6)$$

となるので、結局入射角 θ_i のときの反射光の電場 $E_r(\theta_i)$ は(6)に E_0 をかけたものとなる。実際には θ_i が θ に非常に近いときだけ反射が起るので、 $\theta_i \approx \theta$ という近似を使って

$$E_r(\theta_i) \propto \frac{E_0 S_0}{1 + 2ki \cos \theta (\theta_i - \theta)/\alpha}, \quad (7)$$

となる。ここで計算された反射光の電場は半ば定性的に求められたものである。より厳密に求めるには光と音波の相互作用が起っている体積内の各点での反射光を、振幅と位相を考慮して積分しなくてはならない。^{4,5)}

さて(7)でわかるように、 θ_i を変えながらブラッグ反射光の振幅を観測すると $\theta_i = \theta$ を中心とし、幅が α に比例するようなローレンツ型曲線が得られる。この曲線のピークから θ を決めて音速を求め、幅から吸収を求めることができる。

3. 音速と吸収の測定法

液体の数100MHz以下での音速分散は一般にきわめて小さく、1%以下であることが多いので音速測定は0.1%程度の精度が要求される。この領域で θ は 10° 以下なので、結局 θ を30秒以上の高い精度で決めなくてはならない。また吸収による θ_i の分布も数分以下なので、これを測るにも高い角度分解能が必要となる。高分解能ブラッグ反射法ではマッハ・ツェンダー干渉計型の光ヘテロダイン系によって、非常に高い分解能を得ている。超音波によるブラッグ反射光はドップラー

効果で入射光より周波数が高くなっており、しかもその変化分はちょうど超音波の周波数に等しい。したがって入射光の一部をローカル・オシレータとしてブラッグ反射光と重畳し、二乗検波すると二つの光の差の周波数のビート成分が出てくる。光ヘテロダインによる検出は、 s/n を向上させること以外にもう一つ大きな利点がある。ビート信号の出方は二つの光の波面の合い方に非常に敏感で、ローカル・オシレータとブラッグ反射光の向きが少しでもずれるとビートは著しく減少する。したがって平行性のよいローカル・オシレータ光を空間に固定しておいて角度の基準とすれば、高い角度分解能と精度が得られる。

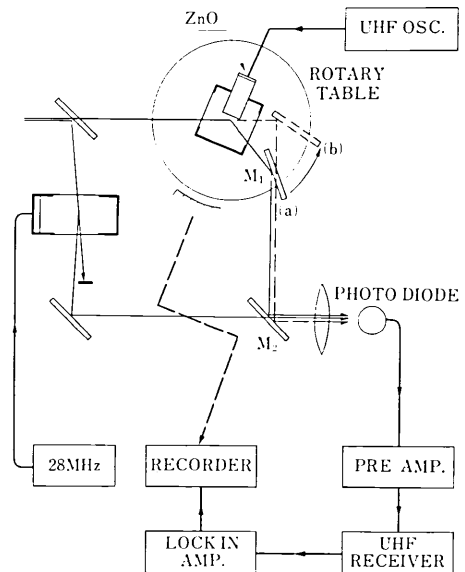


図2. 高分解能ブラッグ反射法の装置

図2に高分解能ブラッグ反射法の装置を示す。試料は回転テーブル上のセルの中にあり、超音波は石英ロッド(4mmφ×20mm)の端面に蒸着したZnO薄膜振動子で励起し、ロッドを通じて試料中に送る。入射光は約10mWのHe-Neレーザの出力を平行光にしたもので、その半分をハーフ・ミラーで分けてローカル・オシレータとし、残りをセルに入れる。回転テーブルを回すことにより入射角 θ_i を変える。 θ_i が θ に近くなったときブラッグ反射が起るが、その光は鏡 M_1 で反射された後 M_2 の面上でローカル・オシレータと重ねられる。ローカル・オシレータ光は、その光路の途中に28MHzの超音波回折セルを入れ光の周波数を28MHz下げたので、レンズの焦点に配置したフォト・ダイオードの光電面で二乗検波すると $f+28\text{MHz}$ ($f\text{MHz}$ は測定してい

研究速報
 の超音波の周波数)のビートが出る。ローカル・オシレータを28MHz下げておく理由は、後にまとめて説明する。回転テーブルをゆっくり回して θ_i を変えると入射光は超音波によって一度反射され、さらに M_1 によってもう一度反射されることになり、結局回転テーブル上で二回鏡面反射を受けるので、 M_1 で反射された後では光の向きは不変であることが、簡単な幾何光学の考察によって理解できる。したがってローカル・オシレータの向きがその方向と一致するようにあらかじめ M_2 の向きを調整しておけば、テーブルの回転に関係なく常に安定なビートが得られる。

その $f+28\text{MHz}$ のビートの振幅は反射光とローカル・オシレータの振幅 E_l の積に比例するので、スーパー・ヘテロダイン受信器で二乗検波するとその出力は

$$V(\theta_i) \propto \left\{ E_l E_s(\theta_i) \right\} \cdot \left\{ E_l E_s(\theta_i) \right\}^* \quad (8)$$

$$= \frac{(E_0 E_l S_0)^2}{1 + \{(\theta_i - \theta) / \Delta \theta_i\}^2} \quad (9)$$

となる。ただし

$$\Delta \theta_i = \alpha / 2 \cos \theta, \quad (10)$$

である。テーブルの回転角を電圧に変えてレコーダのX軸を駆動し、Y軸にビートの検波出力を入れると(9)の曲線が得られ、その全半値幅 $2\Delta\theta_i$ より(10)を使って α が求まる。このとき θ は実測値を使ってもよいが、液体の1GHz以下では $\cos\theta \approx 1$ と近似しても α の誤差は2%以下である。図3に水の300MHzの場合に得られた曲線を示す。ビート周波数は328MHzである。こ

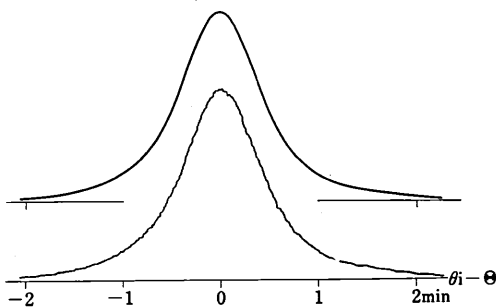


図3. 水の300MHz, 20°Cの場合に得られた曲線(下側)とそれに対応する理論曲線

の曲線の幅から $\alpha = 22.4 \text{ neper/cm}$ ($\alpha/f^2 = 24.9 \times 10^{-17} \text{ sec}^2/\text{cm}$) が得られる。この値を使って(9)を計算して得られた理論曲線を上側に示す。水の吸収は数GHzまで一定であることが知られているが、300~500MHzで20°Cの水を測定した結果は、 $\alpha/f^2 = (25 \pm 0.5) \times 10^{-17} \text{ sec}^2/\text{cm}$ で、これは7~67MHzでPinkerton⁷⁾の測った値、 $25.3 \times 10^{-17} \text{ sec}^2/\text{cm}$ 、および1.5GHzでPlass³⁾の測

た値、 $25.4 \times 10^{-17} \text{ sec}^2/\text{cm}$ とよく一致している。周波数の低い、したがって吸収の小さい領域では $2\Delta\theta_i$ が小さくなり、ビート信号が光学系の不安定さに敏感になるため誤差がふえる。現在使用している系では $2\Delta\theta_i$ が40~50秒以上、すなわち α が20~25 neper/cm以上あるような周波数範囲が測定可能となる。これは水では300MHzくらいであるが、ベンゼンのように吸収の大きい液体では60MHzくらいとなる。吸収測定の精度はバラツキから判断して $\pm 2\%$ 程度と思われる。

音速は次のようにして求める。図3の曲線のピークは θ に対応しているが、下のスケールは角度の絶対値を表わしてはいないので、これから θ を読むことはできない。図1でわかるように、 θ は散乱角の半分となっている。高分解能ブラッグ反射法では次のような方法で、散乱角を20秒程度の高い精度で決めることができる。ブラッグ反射光による $f+28\text{MHz}$ のビートを記録しているとき、図2の中の鏡 M_1 は(a)の位置にある。そのときブラッグ反射光の波面とローカル・オシレータ光の波面が重っている。その後テーブルを矢印の方向に回転して(b)の位置まで鏡が移動すると、セルを通りぬけた入射光とローカル・オシレータの波面が重なる。ローカル・オシレータは周波数を28MHz下げたので、入射光と重ねると28MHzのビートが出る。これを同様に記録する。水の300MHzの場合に得られた曲線の例を図4に示す。

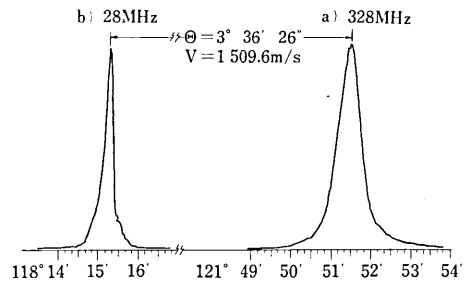


図4. 水の300MHz, 30°Cの場合に得られた曲線

(a)は328MHzのブラッグ反射光によるビート、(b)は入射光による28MHzのビートでこちらは二つの光がほとんど平面波に近いので、非常にシャープなピークを持つ。下のスケールは回転テーブルの目盛をそのまま示したもので、その絶対値には意味がないが二つのピークの差、この場合 $3^\circ 36' 26''$ は鏡 M_1 の向きの変化に等しい。一般に鏡の向きの変化は鏡面反射光の向きの変化の半分となるので、この $3^\circ 36' 26''$ は散乱角の半分、すなわち直接ブラッグ角を与えることがわかる。これから(2)を使って30°Cの音速は1509.6m/sと求まる。水の

音速は数GHzまで変化しないことが知られているが、この値は低周波で Greenspan⁸⁾が測った値, 1509.66m/s および McSkimin⁹⁾の値, 1509.34とよく一致する。150~500MHzの範囲で今回水を測った結果は、すべて±0.5 m/s以内におさまっており、精度は非常に高い。150 MHz以下では θ が小さくなり、それに対して光学系の不安定さが無視できなくなり誤差が増加する。現在使用しているZnO振動子は500MHz以上で急速に特性が落ちるのでそれ以上では測れなかったが、この方法で1 GHz以上まで測定可能と思われる。

ローカル・オシレータの周波数を28MHz下げるとは、次のように3つの利点がある。1つは先に述べたように入射光もビートで検出できるためブラッグ角が高い精度で決まること、もう1つは発振と受信の周波数をずらすことにより電気的な漏洩の影響が避けられることである。さらにもう1つの利点は、アンチ・ストークス光とストークス光を分離して検出することが可能となることである。図1に示すようにブラッグ反射光には、実線で示すようなアンチ・ストークス成分と破線で示すようなストークス成分とがあり、それらは同じ方向に進む。前者はドップラー効果で周波数が f だけ高くなっているのに対して、後者は f だけ低くなっており、さらにロッドの有限な面積で反射されているため角度分布が広がっており測定するとき邪魔になる。ローカル・オシレータと入射光の周波数が等しい場合それらはいずれも f のビートとなるので分離できないが、ローカル・オシレータを28MHz下げるとアンチ・ストークス成分は $f+28\text{MHz}$ のビート、ストークス成分は $f-28\text{MHz}$ のビートとなるので、受信器の同調によってアンチ・ストークス成分のみとり出すことができる。

θ_i や θ などはすべて試料中での角度であり、実際に測れる空気中での角度とは屈折率の分だけ異っている。しかしセルの二枚の窓を互に平行にしてあるので、 k として試料中での値を使わずに空気中での値を使えば、角度もすべて空気中での値をそのまま使ってよいことがわかる。つまり試料の屈折率は測る必要がない。

4. エタノール水溶液の測定

エタノール、プロパノール、ブタノールなど種々のアルコールの水溶液における音速や吸収の異常については、これまで多くの研究者によって報告されている。アルコール濃度を変えたとき、数MHzでの吸収はある濃度で極大を持ち、また音速の方もそれより低いある濃度でやはり極大となる。これらのアルコール水溶液のすべてに共通な緩和が存在していることは明らかであり、その機構を解明することが望まれる。エタノール

研究速報
水溶液についてはこれまでに100MHz以下の音速や吸収の様子は知られており、さらに数GHz域の音速についてもすでに鳥飼¹¹⁾、根岸¹²⁾、山崎¹³⁾によって報告されている。これらのすでに得られている結果をまとめて统一的に解析するには数100MHz域の測定が必要となるが、それには高分解能ブラッグ反射法は最も適した方法といえる。

測定は150~500MHzの範囲で0, 20, 30, 40, 50, 70wt%のエタノール水溶液について行った。温度は15, 20, 30℃の3点を測った。試料はイオン交換水と試薬特級エタノールを混合して作った。

結果の解析には、山崎¹⁴⁾、根岸による20~140MHzの吸収データおよび金子による数GHzのブリュアン散乱による音速データも使った。30wt%から70wt%の試料について、20MHzから6GHzまでの音速と吸収のデータは約100MHzと1.6GHz附近に緩和周波数を持つ二段緩和曲線によく合った。図5に40wt%、15℃および20℃の場合に得られたデータと決められた緩和曲線を示

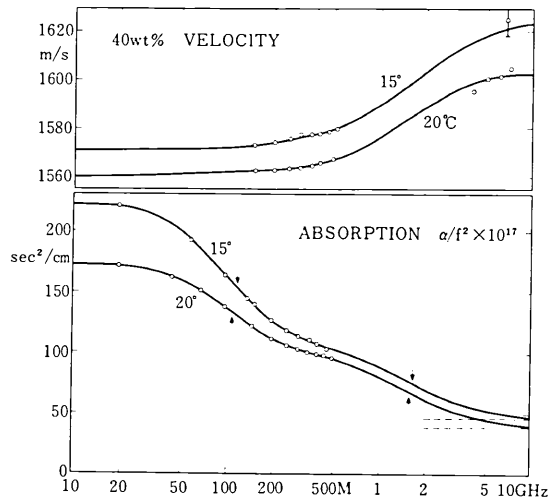


図5. 40wt%エタノール水溶液の緩和曲線、矢印は緩和周波数を示す。

す。破線は純水および純エタノールの吸収値から予想される、混合液の吸収の計算値である。すなわちこの値以上の吸収が混合による余分の吸収とみることができ。緩和周波数より充分高いところで、吸収はこの値になると仮定した。音速データにつけてある縦棒は数GHz域のデータの誤差を表わす。ブリュアン散乱によるデータは一般に精度が悪く、±6 m/s程度の誤差を含むことが多い。しかしこの場合数100MHzの音速

研究速報
 データは精度が1 m/s程度で高いこと、また音速と吸収の両方のデータに合わせる必要があることなどのため、緩和曲線はかなりユニークに決まる。矢印は緩和周波数を示す。この結果の解析については、他で発表するつもりである。

5. おわりに

液体中の数100MHz域の超音波を光ヘテロダイン系を使って測定する新しい方法として、高分解能ブラッグ反射法が確立された。水を測定した結果、この方法が音速と吸収を高い精度で測定できるものであることが示された。これは従来測定が困難であった周波数領域を埋め、広い範囲にわたる緩和の議論を容易にするものである。

応用としてエタノール水溶液を測り、緩和曲線を決定した。

文 献

1) P. A. Fleury and R.Y. Chiao: J. Acoust. Soc. Amer

39 (1966) 751.
 2) J. L. Hunter, H. D. Dardy: J. Acoust. Soc. Amer. 36 (1963) 1914.
 3) K. G. Plass: Acustica, 19 (1967/68) 236.
 4) E. I. Gordon and M. G. Cohen: Phys. Rev. 153 (1967) 201.
 5) K. Takagi and K. Negishi: Japan. J. appl. Phys. 14(1975) 29.
 6) K. Takagi and K. Negishi: Japan. J. appl. Phys. 14 (1975) 149.
 7) J. M. M. Pinkerton: Proc. Phys. Soc. B20(1949) 129.
 8) M. Greenspan and C. E. Tschiegg: J. Acoust. Soc. Amer 31(1959) 75.
 9) H. J. McSkimin: J. Acoust. Soc. Amer. 37 (1965) 325.
 10) C. J. Burton: J. Acoust. Soc. Amer. 20(1948) 186.
 11) L. R. O. Storey: Proc. Phys. Soc. B65 (1952) 943.
 12) A. Giacomini: J. Acoust. Soc. Amer. 19 (1947) 701.
 13) 鳥飼, 根岸, 山崎: 生産研究 19 (1947) 701
 14) 山崎, 根岸,: 音響学会講演論文集 (1969. 5) 141
 15) 金子: 東大工学部物工学科修士論文
 16) K. Takagi and K. Negishi: Japan. J. appl. Phys. 投稿中

次号予告 (6月号)

研究解説

退官記念講演.....	野崎 弘
退官記念講演.....	浅原 照三
ミニコンピュータのオペレーティングシステムOS/8について.....	渡辺 勝

調査報告

阿蘇山北東部の地震による被害について.....	} 片山 恒雄 佐藤 暢彦
-------------------------	------------------

研究速報

制動放射X線の吸収によるスペクトル変化.....	} 片岡 邦郎 本間 禎一
亜鉛・アルミニウム共析合金結晶粒界における錫原子状態と格子振動.....	
粒界拡散方程式 [2]	} 小沢 孝好 石田 洋一
地球資源衛星データを用いた首都圏の土地利用判読.....	
地球資源衛星データを用いた首都圏の土地利用判読.....	} 加藤 正夫 梅津 清一
地球資源衛星データを用いた首都圏の土地利用判読.....	
地球資源衛星データを用いた首都圏の土地利用判読.....	} 西川 精一 村井 俊治
地球資源衛星データを用いた首都圏の土地利用判読.....	

研究室紹介

村井研究室.....	村井 俊治
------------	-------