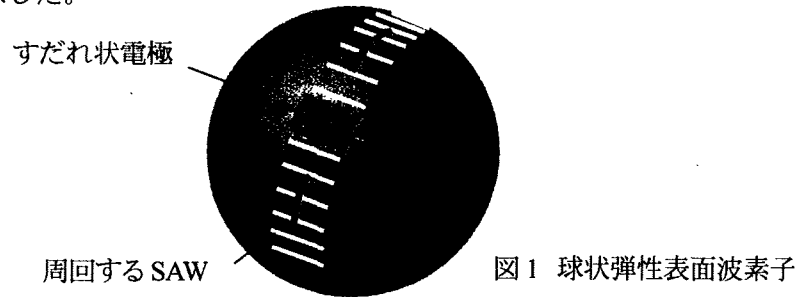


氏名	いしかわ さとる		
授与学位	石川 暁 博士(工学)		
学位授与年月日	平成16年3月25日		
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項		
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程) 材料加工プロセス学専攻		
学位論文題目	球における弾性表面波の多重周回現象と水素ガスセンサへの応用		
指導教官	東北大学教授 山中 一司		
論文審査委員	主査 東北大学教授 山中 一司	東北大学教授 櫛引 淳一	
	東北大学教授 進藤 裕英		

## 論文内容要旨

### 第1章 序論

本章では本研究の背景となる球における弾性表面波(SAW)の多重周回現象とその応用について概説し、球のSAWにみられる特異な伝搬現象と多重周回現象を弾性表面波素子(図1)や非破壊検査法に利用する有効性を示した。また、水素ガスセンサの必要性と求められる性能を示し、現在までの水素ガスセンサは水素に対する選択性や応答速度などに課題があることを述べた。これらの背景に基づいて、本研究の目的は、球におけるSAWの伝搬特性の解析、およびSAWの多重周回を応用した高速応答性の水素ガスセンサの開発にあることを示した。



### 第2章 球の弾性表面波の伝搬特性の実験的解析

本章では、線音源により励起した球のSAWの伝搬特性を実験的に明らかにするため、レーザー超音波法による振幅分布の測定を行った。1本の線集光させたパルスレーザービームによる励起では、右周り ( $R_{R1}, R_{R2}, R_{R3}, \dots$ ) と左周り ( $R_{L1}, R_{L2}, R_{L3}, \dots$ ) にそれぞれ周回するSAWが観測され(図2)、100周回以上にわたり多重周回することが確認できた(図2)。減衰率は  $0.24\text{dB/trun}$  ( $2.2 \times 10^{-3}\text{dB/cm}/(\text{MHz})^2$ ) であった。

次にSAWの振幅分布を測定した結果、線音源で励起したSAWは、帯状領域内に閉じ込められるというこれまでの理論的予測と一致することが確かめられ、音源の開口角  $2\theta_A$  が  $43^\circ$  では  $ka$  の値により鋭い集束ビーム ( $\Delta\theta_F = 1.9^\circ$ ) から弱い集束ビーム ( $\Delta\theta_F = 13.4^\circ$ )、開口角  $2\theta_A$  が  $11.4^\circ$  ではコリメートビー

ムから強い発散ビーム ( $\theta_F = 37.4^\circ$ ) が得られた (図 3)。以上のことから、音源の開口角  $2\theta_A$  と  $ka$  の値により、SAW は発散・コリメート・集束の 3 つのビーム形を持つことを実験的に実証できた。

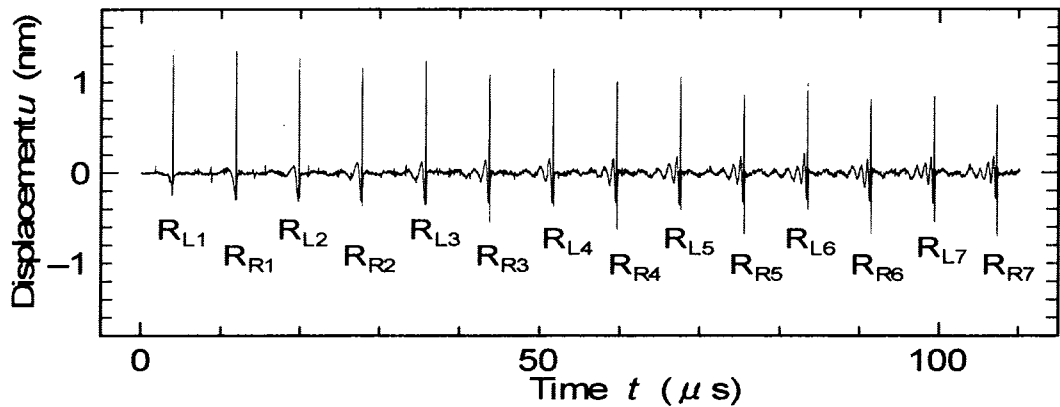


図 2 鋼球(直径 15mm)の観測点  $(\theta_1, \phi_1) = (90^\circ, 90^\circ)$  における観測波形、 $R_{R1}, R_{R2}, \dots$  は右周り、 $R_{L1}, R_{L2}, \dots$  は左回りの SAW を表す(添え字の数字は周回数)。縦軸の符号(正負)はそれぞれ突起と陥没を表す。

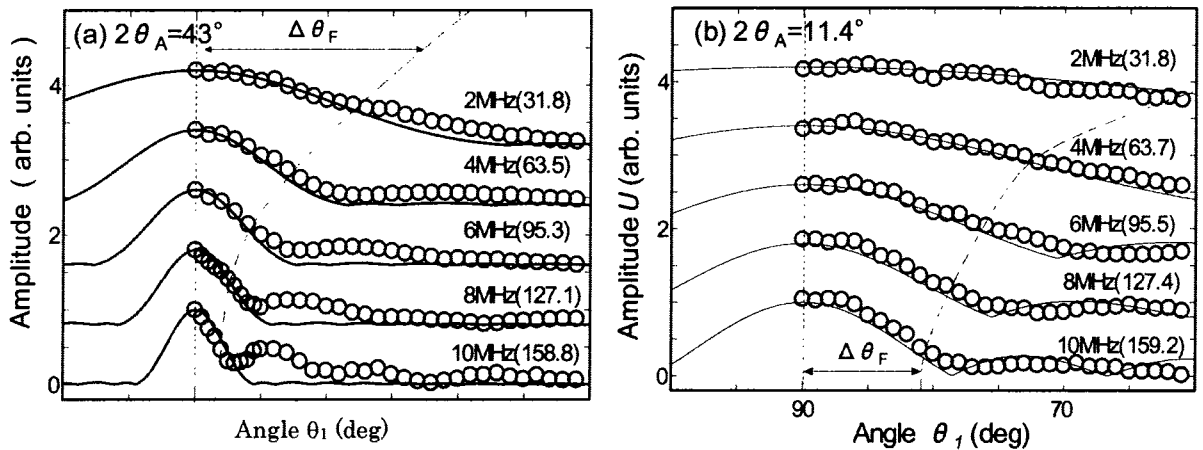


図 3  $R_{L1}$  の振幅の角度  $\theta_1$  依存性 (a)  $2\theta_A = 43^\circ$  (b)  $2\theta_A = 11.4^\circ$ 、カッコ内は  $ka$  を表す。  
 $\Delta\theta_F$  は振幅が  $\theta_1 = 90^\circ$  における振幅の半分となる角度と  $\theta_1 = 90^\circ$  との間隔で定義した。

### 第 3 章 スプリアスバルク波の解析

本章では、球状弾性表面波素子において観測されたスプリアスバルク波の抑制法を得る目的として、均質等方性弾性球における厳密解を適用することにより、面内および面外力のバルク波の相対振幅に及ぼす寄与の解明を通じ、バルク波の伝搬特性を理論に解析した。

面内力および面外力により励起した弾性波を比較することにより、バルク波は面外応力の場合の方が伝搬モードの個数が多く、SAW に対する相対振幅 (表 1) も大きくなることが分かり、スプリアス抑制には、面内方向の応力が優勢となるようなすだれ状電極の形成、および圧電材料の選定が有効であることを見出した。また、合成石英球を用いた球状弾性表面波素子を作製し、その応答波形と計算波形を解析することで、素子の評価に適用できることを示せた。

表 1 (a)面内力と(b)面外力により励起した場合の SAW に対するバルク波の相対振幅とその平均値

	P	S	2S	2P	2SP	3S	4S	Ave.
(a) in-plane	0.037	—	0.063	—	0.15	—	0.046	0.042
(b) out-of-plane	0.085	0.33	0.087	0.022	0.082	0.17	0.14	0.13

#### 第 4 章 球状弾性表面波素子の音場シミュレーション

球状弾性表面波素子における SAW、とくにコリメートビームの実現可能性と伝搬特性を調べるためには、試作と実験による検討とともに音場をシミュレーションすることが効果的である。そこで、本章では第 3 章で適用した厳密解を用いて球面全体の SAW とバルク波の音場を計算し、球状弾性表面波素子の音場をシミュレーションした。

基本モード( $n=0$ )を用いた SAW ( $ka=45$ ) の音場計算により、3つのビーム形(発散・コリメート・集束)の伝搬特性が明らかになり、発散と集束ビームでは波面は同心円状に広がるのに対して、コリメートでは波面は球の経線と平行になることが分かった(図 4)。さらに、高次モードまで( $0 \leq n \leq 9$ )を用いた SAW(コリメートビーム)およびバルク波の音場計算とその動画像により、バルク波を含めたコリメートビームの伝搬特性を明らかになり、SAW が対極において位相が反転することや、バルク波もほぼ同じビーム幅で赤道に沿って観測されることを見出した。

また音場シミュレーションを使って、コリメートビームの場合のすだれ状電極の重なり幅と  $ka$  の関係(図 5)や球の保持や電気的結合に用いる金バンプの設計指針を示した。

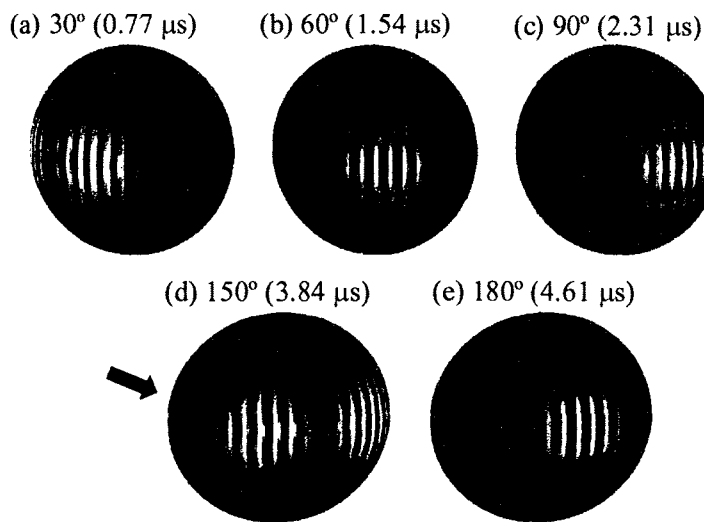


図 4 音源の開口角  $2\theta_A$  が  $30^\circ$  の場合のコリメートビームの音場、(a)-(c)は正面図、(d),(e)は裏面図である。カッコ内は励起からの時間を示す。

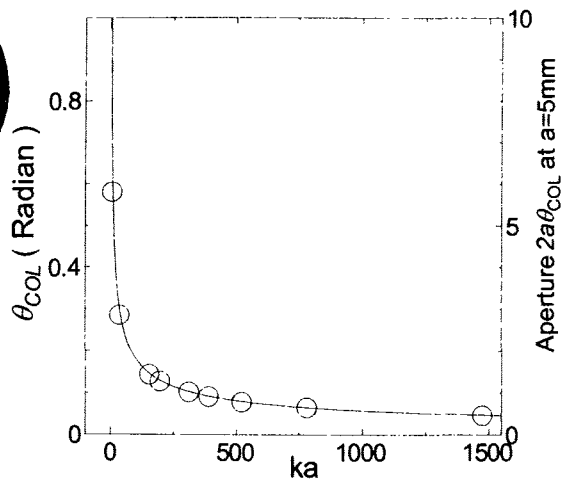


図 5  $10 \leq ka \leq 1478$  におけるコリメート角

## 第5章 球状弾性表面波水素ガスセンサの開発

将来の水素エネルギー社会の安全性と環境を守るためには、水素ガスセンサが必要不可欠になると考えられている。しかし従来のパラジウム膜を用いた水素ガスセンサは、常温で作動し水素に対し感度があるが、応答時間が長いという課題があった。そこで、これまでの章で実験的理論的に明らかにしてきた球の弾性波を応用し、薄いパラジウム膜(20nm)を形成した高応答性の球状弾性表面波水素ガスセンサ(図6)を開発し、0.1%~3.0%の水素濃度におけるセンサの性能を評価した。

51周回多重周回したSAWを調べることにより、音速の変化を精度良く測定でき(0.1ppm)、0.1%~3.0%の水素濃度に対して十分な感度を持った。水素の吸収と放出は迅速に起こり、伝搬時間は水素ガス導入により10s以内に減少し、その後一定となり、アルゴンガスにより元の状態にもどることが分かった(図7)。応答時間は20-200sとなり、従来のSAWセンサに比べて500%の高速化が実現した(図8)。

伝搬時間の変化量 $\Delta t$ は、0.1%~1.2% ( $\alpha$ 相)と1.8%~3.0% ( $\alpha+\beta$ 相)において水素濃度に対して線形的に増加し、その傾きから感度を見積もると0.94ns/%、1.36ns/%となった。

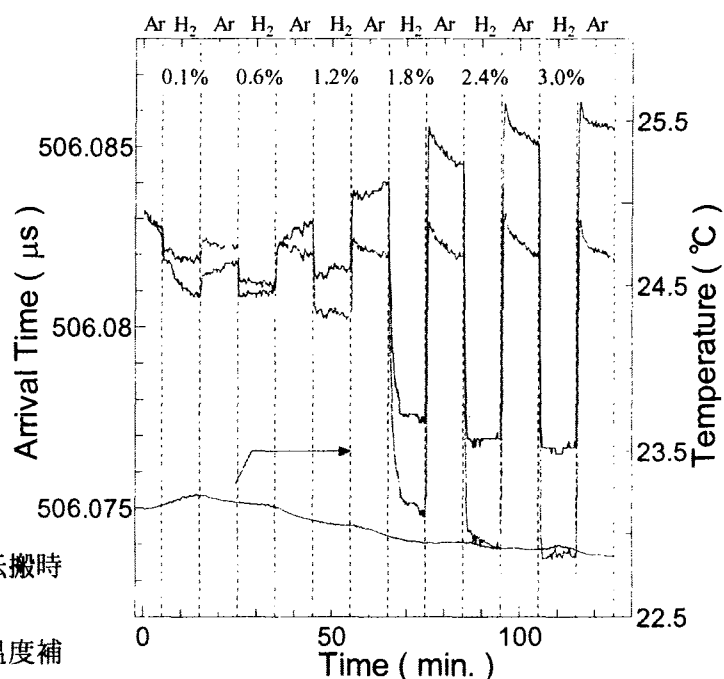
さらに、これまで報告の無い水素による振幅の減少を見出し、その応答が伝搬時間の変化に比べて早いことから、センサの応答性向上に利用できる可能性があることを示せた(図9)。

最後に、1%の水素ガスによる100サイクル(8min./cycle)の耐久性実験を行った結果、応答波形はほとんど変わらず、センサの安定性が確認できた。また、振幅の変化はセンサの経年劣化の影響を受けにくいことが分かり、センサの自己診断機能に利用できることを示した。



図6 球状弾性表面波水素ガスセンサ

図7 水素濃度0.1%~3%における伝搬時間とセンサの表面温度の時間変化。  
ただし、黒線は温度補正前、赤線は温度補正後の伝搬時間



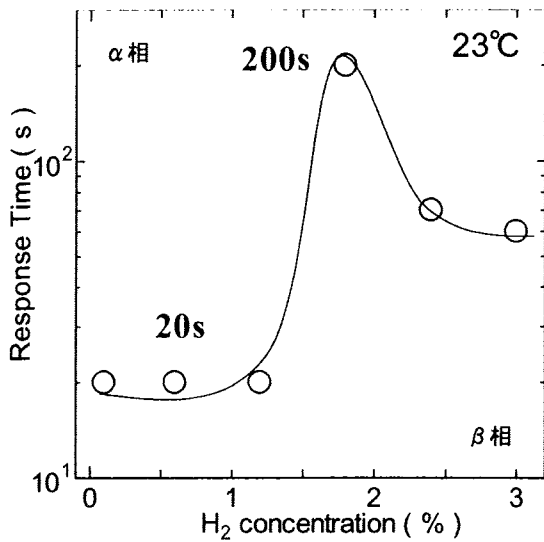


図8 応答時間の水素濃度依存性

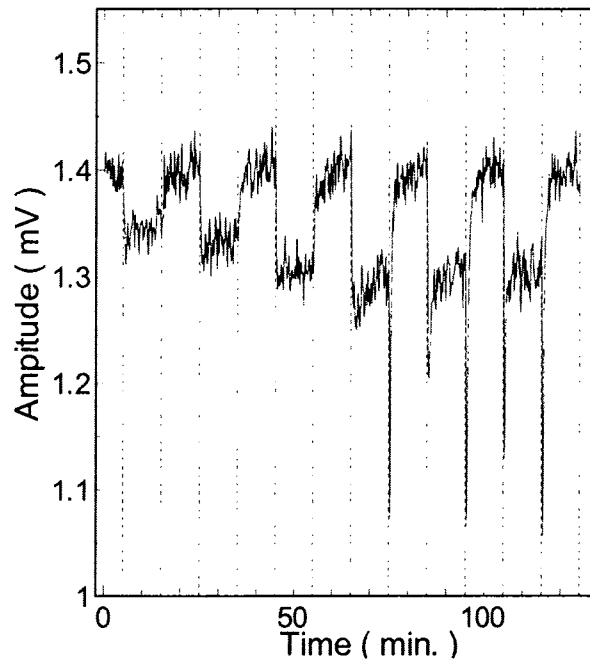


図9 水素濃度 0.1%~3%における振幅の時間変化

## 第6章 結論

球の弾性表面波(SAW)は、球の幾何学的対称性よりすべてのエネルギーは出発点にもどり、その間に回折損失や界面での反射損失が存在しない。これは平面や円筒面など他の形状には特徴であり、軸受球の非破壊検査法や弾性表面波素子に応用することで、平面では達成困難な性能や機能が期待できる。

本研究では、初めに、レーザー超音波法により SAW の多重周回現象を実験的に明らかにし、SAW は、音源の開口角  $2\theta_A$  と  $ka$  の値により、発散・コリメート・集束の3つのビーム形を持つことを実証した。

次に、球状弾性表面波素子（合成石英球）におけるバルク波を含めた弾性波の伝搬特性を理論的に解析し、SAW はスプリアスバルク波の擾乱がない条件で無回折伝搬することが分かり、多重周回現象を利用することにより高感度な素子が実現できることを確認できた。

最後に、これまで実験的理論的に明らかにしてきた SAW の多重周回現象を水素ガスセンサに応用し、従来より薄いパラジウム膜(20nm)を用いることにより、応答時間は 20-200s（水素濃度 0.1%~3.0%）となり、従来の SAW センサに比べ 500%の高速化が実現した。さらに、水素による振幅の変化を見出し、それがセンサの経年劣化の影響を受けにくいことからセンサの自己診断機能に利用できることを示した。そして素子の小型化（直径 1mm）や感応膜の最適化による高速化の展望を述べ、開発した水素ガスセンサが将来の水素エネルギー社会の安全性と環境保全に貢献できる可能性を示した。

# 論文審査結果の要旨

球面上を伝搬する弾性表面波(surface acoustic wave, SAW)は、回折の影響を受けず多重周回することが知られているがその詳細な機構は十分解明されていない。本論文は、この SAW の多重周回現象を理論と実験により解析し、さらに球状弾性表面波素子として水素ガスセンサに応用する研究成果をまとめたものであり、全編6章よりなる。

第1章は序論であり、研究の背景および目的について述べている。

第2章では、パルスレーザーの線音源により励起した球の SAW の振幅分布を調べ、SAW は音源の開口角と波数・半径の積の値によって、発散、コリメートまたは集束の3形態を持つことを明らかにしている。

第3章では、均質等方性弾性球における弾性波の厳密解を適用して、球状弾性表面波素子におけるスプリアスバルク波を解析した結果、面内力による励起では面外力に比べてバルク波は抑制されることから、面内力が優勢となるようなすだれ状電極や圧電材料の選定がスプリアス抑制に有効であることを述べている。

第4章では、球状弾性波表面波素子の概念設計のため、第3章の厳密解を発展させ球状弾性波表面波素子の音場のシミュレーションを行った。その結果、SAW はスプリアスバルク波の擾乱がない条件で無回折伝搬することを確認し、多重周回現象を利用した高感度な素子が実現できることを明らかにした。さらに、すだれ状電極の最適幅やはんだバンプの位置など素子実装の設計指針を示している。

第5章では、直径10mmの水晶球にパラジウム膜(20nm)を形成したボール SAW 水素ガスセンサを提案し、その性能を評価した。その結果、0.1~3.0%の濃度の水素を50周目の SAW の遅延時間の変化から十分な感度で検出できるとともに、平面基板を用いた SAW センサに比べてパラジウム膜を薄くできるため、応答時間を従来の5分の1(20-200s)に短縮できた。さらに水素による SAW の振幅変化も見出し、遅延時間変化とは異なりパラジウム膜の劣化後も観測されることから、センサの自己診断に利用できることを示した。最後に、センサの小型化(直径1mm)や感応膜の最適化による高速化への展望を述べ、将来の水素エネルギー社会の安全性と環境保全に貢献できる可能性を示している。

第6章は結論である。

以上要するに本論文は、球面上を伝搬する弾性表面波の挙動の詳細な解析に成功し、これを応用して特性の優れた水素ガスセンサを開発できることを示したものであり、材料加工プロセス学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。