

圧電振動子による溶液系センサー

— 溶液中水晶振動子の電気的特性 —

千場 敬史, 勝世 敬一
奥田 篤, 山本 寧

Liquid Phase Sensor by Piezoelectric Crystal — Electrical Characteristics of a Quartz Crystal Vibrating in Liquids —

Takashi HOSHIBA, Keiichi KATSUSE
Atsushi OKUDA, Yasushi YAMAMOTO

抄 録

水晶振動子に代表される圧電素子を用いた質量負荷検出型のセンサーを溶液中で作動させる場合、素子の動アドミタンスは一般に溶液密度、粘性、電気伝導度などの影響を受ける。本年度は、厚みすべり振動をおこす AT カット水晶振動子に溶液粘性が負荷された場合の電気的特性変化を fr 法を用いて測定したので報告する。

さらに、溶液系センサーとして密度の大きな貴金属を振動子電極として採用した場合の AT 板に対する Bechmann 半径の算定を 2 次元弾性体近似有限要素計算により試み、所定の電極膜厚条件では基本波に対しては 2.0mm, 3 次オーバートーンに関しては 1.0mm 以下との値を得た。

1. はじめに

水晶振動子、弾性表面波 (SAW) 素子などに質量の付加が生じると、素子を伝搬する弾性波速度が低下する。この現象を利用してセンサーとして機能させるとごくわずかな質量変化 ($10^{-9}\text{g}\sim 10^{-12}\text{g}$) を周波数変化として検出することが可能となる。これまでに、気相中では露点計、湿度計、各種ガスセンサーなどが実用化、もしくは研究されてきたが、最近では水晶振動子が溶液中でもわずかな質量変化に敏感なことがわかり電気化学反応の研究をはじめとしてバイオセンサーなどとしての用途が広がりがつつある。

ここでは、溶液系での使用が可能な各種振動子型センサーに関して調査した内容、さらに今日最も一般的に実

験室系で使用されている厚みすべり振動を起こす AT カット水晶振動子を用いて粘性流体が振動子へ及ぼす影響をオーバートーンも含めて測定した結果を報告する。

また、本研究で使用した様な一般通信工業として設計されている水晶振動子に対し、溶液中でセンサーとして安定に作動させるためには、通信工業用として採用されている電極材料 (Ag, Al) などを溶液中でも耐食性のある金属材料に交換する必要がある。溶液中で化学的に安定でかつ酸洗浄などにより再生可能な電極材料は貴金属類が多く、通信工業用として採用されている電極材料に比較して大きな密度をもつ物質が多い。この様な電極金属の交換に際して、電極半径変化が振動子へ及ぼす影響を 2 次元異方性弾性体近似による有限要素解析を試みたので報告する。

2. 圧電振動子型溶液系センサー

2.1 概要

圧電振動子として知られている素子を溶液中で質量負荷検出型センサーとして使用するためには制限事項がある。例えば気相中で、レイリー波を用いた SAW デバイスのように振動子表面が面に対し垂直方向に粒子変位成分（縦波）を持っていても気相中への超音波放射のような負荷気体による影響¹⁾は超高周波領域以外ではあまり顕著には現れない。しかしながら溶液中では、液体の各種物性に依存する様々な影響が現れる。特に大きな影響を受けるのは溶液の弾性的な性質で、振動子が溶液界面で縦波成分をもつと液中への超音波放射により、気相中での振動に比較して大きなエネルギー損失を被る。従って、現在溶液系でセンサーデバイスとして使用可能な圧電振動子は基本的には溶液界面で縦波成分を持たない素子にかざられている。

以下に今日、圧電振動子型溶液系センサーとして実用化もしくは研究中の代表的なバルク振動子、及び表面波型素子の概要を記す。

2.2 水晶振動子

バルク振動子としては広い温度範囲で小さな温度係数が得られる AT カット水晶振動子を用いたものが最も一般的に溶液系での研究に用いられている。AT 板の基本波振動の場合には水晶の電気軸方向へ、面内粒子変位成分のみを持つせん断振動の一種の厚みすべり波と、板面に対し垂直方向に粒子変位成分を持つ屈曲振動とが結合して伝搬することが数値解析²⁾、トポグラフ実験³⁾などにより判っている。最近の有限要素解析の一例⁴⁾では振動エネルギーのかなりの部分が厚みすべり振動として存在することが報告されており、溶液中への縦波放射により失うエネルギーはわずかであると推測される。センサーとしての感度は負荷質量 Δm が十分小さな領域では以下に示す Saurbery により導入された関係式が一般的に使われている。

$$\Delta f/f_0 = - \Delta m/m$$

ここに、 Δf は共振周波数変化、 f_0 は振動子の共振周波数、 m は振動子の質量をあらわす。

2.3 弾性表面波素子

前述のように、通信工業用として一般的に用いられているレイリー波型の弾性表面波素子は表面に対し垂直方向への粒子変位成分から溶液中へ超音波放射を生じ素子のエネルギー損失が大きくなるため液中では使用されない。溶液系センサーとしては表面波伝搬方向に垂直な面内粒子変位成分を持つ SH (Shear Horizontal) 波⁵⁾を用いたものが溶液中への縦波放射が無いため盛んに研究されている。基板材としてはタンタル酸リチウム (LTO) が用いられ 36 回転 Y 板 X 伝搬 LTO, X 板 150° 伝搬 LTO などの SH-SAW の研究が進められている。さらに表面波とは異なるが後者の基板では SH 型の Acoustic Plate Mode⁶⁾ (SH - APM) を用いると弾性波励振のための櫛型電極 (IDT) がある面とは反対の裏側の面に溶液を負荷することが出来る。従って、IDT のすぐ隣に溶液セルを設けなくてもよい点などセンサーとしての便利が良いため最近注目を集めている。SAW 型素子は IDT を用いることで容易に数 100MHz の弾性波を励振することが可能なため質量の負荷に対し高感度化が期待できるが同時に溶液の粘性、誘電率、電気伝導度などからの影響も大きく現れることが報告されている⁷⁾。

3. 粘性流体中における振動子アドミタンス

3.1 水晶振動子のアドミタンス測定法

冒頭でも述べたように、非常に Q 値が高いとされる水晶振動子は粘性溶液との接触によりその特性が大きく変化する。ここでは、代表的なアドミタンス測定法を用いて振動子の電気的特性がどの程度変化しうかの測定を行った。水晶振動子のアドミタンス測定法としては、最近ではネットワークアナライザーを用いた伝送法、もしくは反射法が一般化しつつあるが、ここでは水晶振動子の等価直列抵抗を測定するために工業規格⁸⁾で規定されている fr 法、もしくは π 回路法を基本とした動アドミタンス測定を検討した。図 1 に、周波数シンセサイザー (アンリツ MG525 C) とベクトルボルトメーター (HP8405 A) により構成される fr, π 回路両測定法を示す。図中の F.S は周波数シンセサイザーを、Va 及び Vb はベクトルボルトメーターの入力をあらわす。fr, π 両回路の測定治具部は溶液セルに合わせてハンドメイドするかたちとなった。水晶振動子の空気中 50MHz 以下での測定では

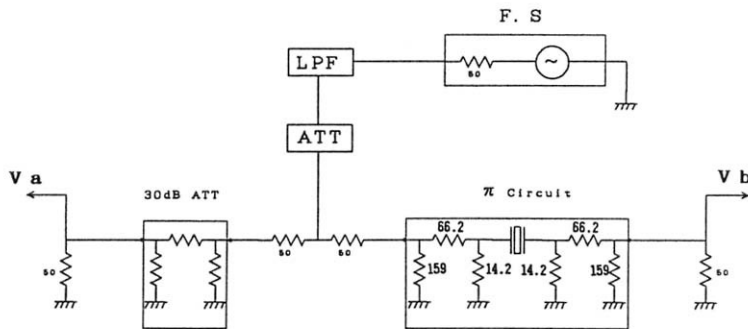
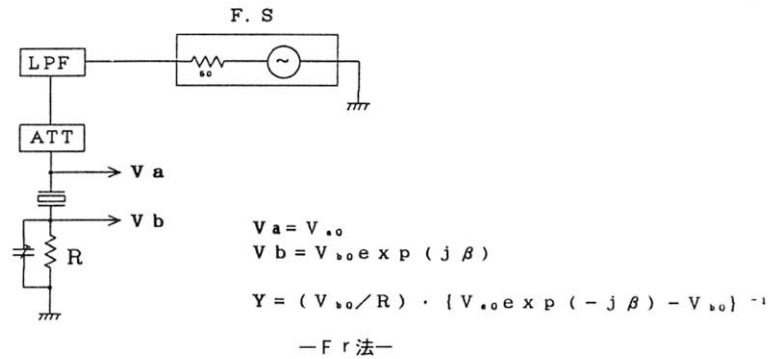


図 1

両者の測定誤差が数%以下となり、測定回路部を構成する素子に対し特別な注意をしなくとも十分実用的であることが判明した。しかしながら、粘性溶液中での振動子アドミタンスの測定に際しては、π回路法ではπ回路自体が30dBの減衰を持つ事、さらに試料として用いた比較的高粘性の溶液では振動子に対し40dB以上の減衰が認められ、ベクトルボルトメーターへの出力電力が外来雑音の影響を受け測定が困難となった。従って今回は前者のfr法を用いることとした。

3.2 水晶振動子の等価回路

水晶振動子などの電気音響変換素子に対する等価回路としては、水晶板の機械振動面に対応する2個の音響端子と駆動電極に対応する1個の電気端子を持つMason

等価回路をもとに各種音響負荷に対する回路が研究されている⁽⁹⁾。大きな音響負荷などにより振動子の共振周波数が相当変化する場合を除いては、図2に示す様に各振動モードで極展開した後の簡略化された等価回路を用いるのが一般的である⁽¹⁰⁾。ここでも後者の簡略化された等価回路を用いることとする。また、前述の振動子のアドミタンス測定により得られる複素アドミタンス・プロットと今回採用した等価回路パラメータとの対応を図3に示す。ここに、最大コンダクタンスを与える点を直列共振角周波数(ω_s)、さらにサセプタンス成分が零となる点を各々、共振角周波数(ω_r)、反共振角周波数(ω_a)とする。また、振動子の共振せん鋭度を $Q = \omega_s / (\omega_2 - \omega_1)$ とする。

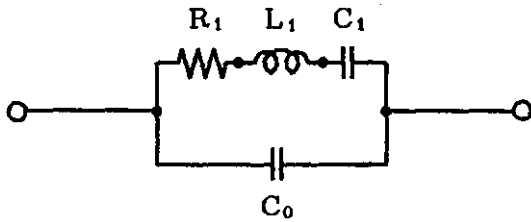
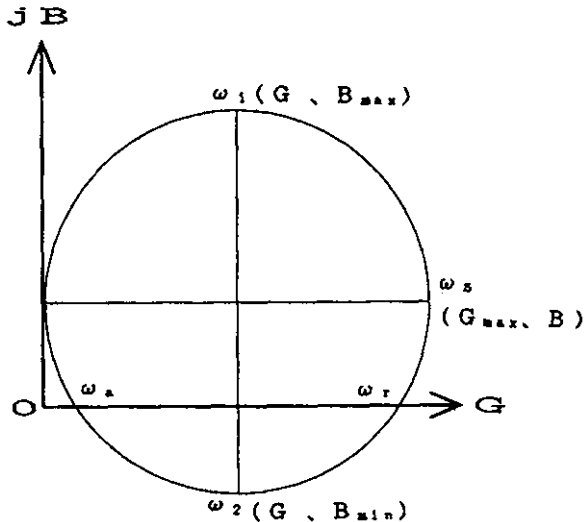


図2 水晶振動子の等価回路



$$R_1 = 1 / G_{max}$$

$$L_1 = R_1 / (\omega_2 - \omega_1)$$

$$C_1 = 1 / (\omega_s^2 L_1)$$

$$C_0 = B / \omega_s$$

図3 アドミタンス・プロットおよび等価回路定数

3.3 振動子諸元及び粘性溶液

測定に使用したATカット水晶振動子の諸元を表1に示す。ここに、基本波(8.9MHz)、および板厚方向に波節が3個存在する3次オーバートーン(26.6MHz)に対する質量負荷感度は気相中で実測したものである。オーバートーンの質量負荷感度は基本波の感度に振動次数を掛けたものに等しいとされているがここでのオーバートーンの測定結果からは、単純に3倍するよりも若干の感度向上が見られる。なお、以後の測定も含めてオーバートーンの測定に関しては基本波振動と同一電極半径の状況で測定したものである。

粘性溶液の標準としてはサッカロース水溶液を使用した。サッカロース水溶液は10wt%から60wt%迄の10wt%単位で濃度を増加させた液を用意し、静粘性係数 η は文献値⁽¹⁾を参考に測定温度23℃に換算した値を用いた。又、溶液セルはテフロン製とし片端液容量0.8ml程の振動子を縦に挿入する構造とした。

表1 振動子諸元

AT板幅	矩形8×8mm
AT板厚	0.182mm
円形電極半径	2.5mm
電極金属材	Pt (3000Å)/Ti (500Å)
共振周波数	8.9MHz
質量負荷感度	1.2Hz/ng (基本波) 3.9Hz/ng (3次オーバートーン)

3.4 測定結果

水晶振動子の粘性流体による影響を概観するために図4に以下の諸条件での絶対値アドミタンス・プロットを示す。(1)は水晶振動子を溶液セルにシリコン系接着剤を用いて固定した状態で、この様に振動子端面を簡単に固定しただけの状況では $Q \sim 4.4 \times 10^4$, $R_1 = 17\Omega$ となり気相中での単体振動での $Q \sim 6 \times 10^4$, $R_1 = 12\Omega$ に対し Q が若干減少した程度でほとんど変化がない。さらに、電極片面のみが純水と接するように溶液セル片面に水を満たした条件(2)では $Q = 2020$, $R_1 = 343\Omega$, さらに溶液セル両面に純水を満たした条件(3)に至っては $Q = 1045$, $R_1 = 622\Omega$ と気相中に比較して一桁の Q 低下と R_1 の増加、さらにピーク周波数のシフトダウンを示した。なお、図中のアドミタンスのピーク高さはほぼ振動子の Q 値に比例した関係を持つ。

上記の(2),(3)の比較から、以後の測定は振動子に対する負荷が小さくなる溶液セル片面にのみ粘性溶液を負荷する方法で行った。

複素アドミタンス・プロットから振動子の溶液負荷時の影響を眺めると、溶液負荷のない状況における振動子アドミタンスは直列共振角周波数と共振角周波数がほぼ等しい($\omega_r \simeq \omega_s$)大きな正円を描く。一方、溶液負荷時には、粘度の増大と共にアドミタンス円の半径が小さくなり、サッカロース水溶液の場合では基本波に関しては濃度50wt%(13.5cP)を越えるあたりでアドミタンス

円は誘導性領域には掛からなくなり、共振点及び反共振点が消失する現象がみられた。さらに、同一電極条件での3次オーバトーンの測定ではサッカロース水溶液濃度10wt% (1.3cP) で既に共振点、及び反共振点が消失していた。以上の点から、振動子の誘導性領域を使用する一般的なコルピッツ型水晶発振回路を用いて溶液中で質量負荷検出型センサーを考える場合には試料溶液の粘性から発振可能な上限をあたえる。

図5に各種濃度のサッカロース水溶液を用い振動子の等価抵抗 R_1 を測定した結果を示す。測定は基本波振動(1st), ならびに3次オーバトーン(3rd)に関して行った。結果の整理は流体中のせん断応力が変形速度テンソルに比例するニュートン流体をモデルに導出された関係式⁹⁾に基づいて $(\rho_L \eta)^{1/2}$ に対して R_1 をプロットしたものである。ここに η は前述の静粘性係数, さらに溶液密度 ρ_L は実験温度 (T=23°C) における比重計による実測値を用いた。

基本波に関してはサッカロース水溶液の粘度1.3cPから48cPまできれいな直線関係が認められ、3次オーバトーンでの測定では高粘度側ではカーブが傾いてくる結果が得られた。3次オーバトーンに対する同様の傾向は、コンダクタンスが最大値をとる直列共振周波数を基準点として測定した周波数シフト測定でも認められた。

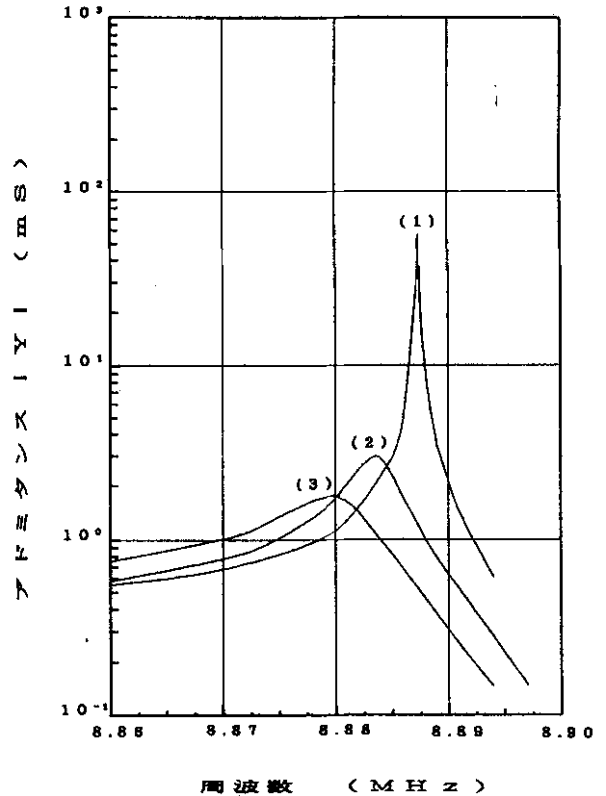


図4 溶液負荷時の振動子アドミタンス

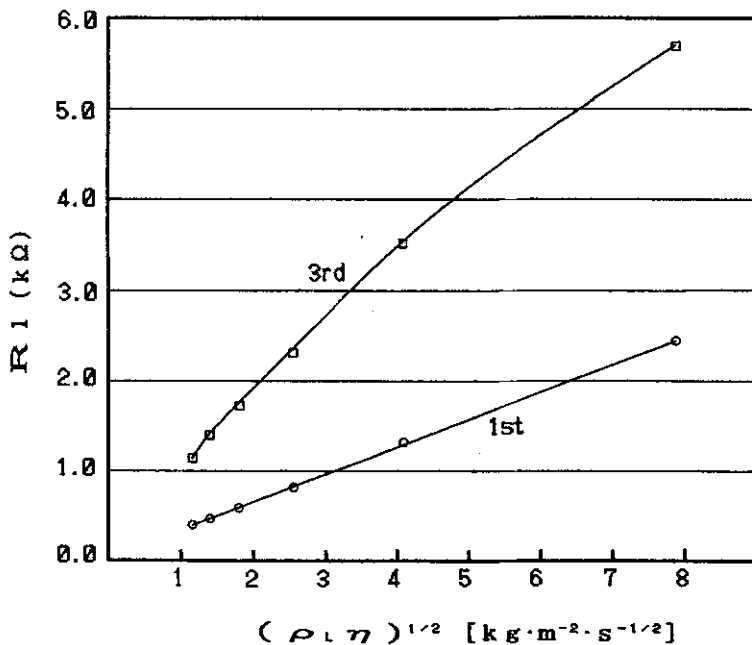


図5 R_1 の粘度依存性

SH-SAWのように高い周波数で作動する振動子の溶液中での振舞いは、溶液をニュートン流体とみなすことが出来なくなるため、溶液の弾性的緩和時間 (τ) を考慮したマックスウェル粘弾性流体に基づくモデル¹²⁾が提案されている。この種の流体は、せん断振動の角周波数 (ω) に対して $\omega \tau \ll 1$ の条件ではニュートン流体として、 $\omega \tau \gg 1$ のもとでは等方的な固体とみなすことができ周波数領域により流体の性質が大きく変化する。また緩和時間と溶液濃度は比例関係にあるため溶液濃度の増加と共に緩和時間による影響が無視出来なくなるとされている。今年度は26.6MHz以上の高い周波数領域で測定を行わなかったが、3次

オーバートーンで認められた R_1 , 周波数シフトのカーブは溶液の緩和時間による影響の可能性も否めない。

4. 有限要素法解析

4.1 概要

冒頭でも述べた様に振動子の電極材料を密度の異なる金属に交換した際に生じる影響を簡便な弾性体モデルをもとに有限要素解析を行うことを試みた。ここでは、振動子の電極半径依存性に関する結果のみ報告する。

4.2 AT カット板の 2 次元有限要素方程式の導出

圧電体の自由振動問題に対する基礎方程式は一般に線形圧電基本式 (e 形式), 準静電近似した電磁界のマックスウェル方程式, および連続体に関するニュートンの運動方程式から導出される。定常自由振動問題として時間依存項を省略したフェーザ表記法によると以下に示す連立偏微分方程式で表される⁽¹⁴⁾。

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

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

u : 変位ベクトル

ϕ : 静電ポテンシャル

ρ_m : 密度

$[c^E]$: 弾性スティフネス

$[e]$: 圧電テンソル (e 形式)

$[\varepsilon^S]$: 誘電率テンソル

$\nabla \cdot$: divergence-of-stress operator

∇_s : symmetric gradient operator

ここに、弾性スティフネス、圧電テンソルおよび誘電率テンソルは工学表記法に従って行列表現をとるが AT カット水晶板を含む回転 Y 板に関しては以下に示す対称性を持つ⁽¹⁵⁾。なお、sym. は対称テンソルを表す。

$$[c^E] = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & c_{14} & 0 & 0 \\ & c_{22} & c_{23} & c_{24} & 0 & 0 \\ & & c_{33} & c_{34} & 0 & 0 \\ \text{sym.} & & & c_{44} & 0 & 0 \\ & & & & c_{55} & c_{56} \\ & & & & & c_{66} \end{bmatrix}$$

$$[e] = \begin{bmatrix} e_{11} & e_{12} & e_{13} & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{25} & e_{26} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{35} & e_{36} \end{bmatrix}$$

$$[\varepsilon^S] = \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \text{sym.} & & \varepsilon_{33} \end{bmatrix}$$

PZT, ニオブ酸リチウムの様に圧電性が大きな物質に比較して水晶の様に圧電テンソルの値が小さな場合、圧電項およびそれに付随する電気的條件は省略され、単なる異方性弾性体の自由振動問題として解かれることが多い。したがって、式 (1) は次のように表すことができる。

$$\nabla \cdot [c^E] \nabla_s u + \omega^2 \rho_m u = 0 \quad (3)$$

上式から 3 自由度 3 次元有限要素問題を考えると一般固有値問題に関する大規模行列計算となり、解の収束性、計算コストの面からもかなりの難点がある。現在のところは大型計算機を使っても、3 自由度 2 次元弾性体近似に対する非適合要素を用いた有限要素計算⁽¹⁶⁾がなされている程度である。ここでは、パーソナルコンピュータ程度の仮想記憶計算機でも計算可能な近似法として、AT 板では X 軸方向への厚みすべり振動が優先的であるため同方向への 1 自由度 2 次元弾性体近似⁽¹⁷⁾を用いることとした。

ここで、厚みすべり振動 $u = (u, 0, 0)$ とすると式 (3) から

$$-\omega^2 \rho_m u = c_{11} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + c_{66} \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + c_{55} \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + 2c_{56} \frac{\partial^2 u}{\partial y \partial z} \quad (4)$$

となるが AT 板では $c_{56} < c_{11}, c_{66}, c_{55}$ であることから $c_{56} = 0$ として式 (4) の右辺第 4 項目を省略できる。さらに、板厚方向を Z 軸に定めると、AT 板の振動は正弦関数的に変化すると見なすことができるため、板厚 (2b) 振動次数 (m) を用いて粒子変位は以下の様に表される。

$$u = u(x, y) \sin\left(\frac{m\pi z}{2b}\right) \quad (5)$$

式 (5) を式 (4) へ代入して整理すると以下の 2 次元化された偏微分方程式が得られる。

$$-\omega^2 \rho_m u = c_{11} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + c_{66} \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} - c_{66} \left(\frac{m\pi}{2b}\right)^2 u \quad (6)$$

次に、上記の偏微分方程式のレイリー・リッツ法による有限要素化を行う。領域境界にて自由端に相当する有限要素の自然境界条件 ($T_n = 0$) を満たすものとする。領域境界での積分項は無視できるため要素内汎関数 (ラグランジアン) は以下の様に定められる。

$$F_e = \frac{1}{2} \iint_e \left\{ c_{11} \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)^2 + c_{66} \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)^2 + c_{66} \left(\frac{m\pi}{2b}\right)^2 u^2 \right\} dx dy - \frac{1}{2} \iint_e \rho_m \omega^2 u^2 dx dy \quad (7)$$

ここで、要素内変位 u を n 節点要素をもちいて記述すると形状関数 N_i 、および節点変位 u_i ($i = 1, \dots, n$) に関して

$$\begin{aligned} u &= \sum_{i=1}^n N_i u_i \\ u^2 &= \sum_{j=1}^n \sum_{i=1}^n N_i N_j u_i u_j \\ \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)^2 &= \sum_{j=1}^n \sum_{i=1}^n \frac{\partial N_i}{\partial x} \frac{\partial N_j}{\partial x} u_i u_j \\ \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)^2 &= \sum_{j=1}^n \sum_{i=1}^n \frac{\partial N_i}{\partial y} \frac{\partial N_j}{\partial y} u_i u_j \end{aligned} \quad (8)$$

なる関係式を式 (7) に代入して、要素内節点変位ベクトル $\{u\}_e = \{u_1, \dots, u_n\}^T$ を用いて行列表現をとると

$$F_e = \frac{1}{2} \{u\}_e^T ([K]_e - \lambda [M]_e) \{u\}_e \quad (9)$$

となる。ここに、要素剛性行列、要素質量行列の各成分 K_{ij} 、 M_{ij} は

$$\begin{aligned} K_{ij} &= \iint_e \left\{ c_{11} \frac{\partial N_i}{\partial x} \frac{\partial N_j}{\partial x} + c_{66} \frac{\partial N_i}{\partial y} \frac{\partial N_j}{\partial y} \right. \\ &\quad \left. + c_{66} \left(\frac{m\pi}{2b}\right)^2 N_i N_j \right\} dx dy \end{aligned} \quad (10)$$

$$M_{ij} = \iint_e \rho_m N_i N_j dx dy \quad (11)$$

$$\lambda = \omega^2 \quad (12)$$

であたえられる。Fe の行列表現 (9) に、変分原理

$$\delta F_e = \frac{\partial F_e}{\partial \{u\}_e} = 0 \quad (13)$$

を適用することにより、要素内の有限要素方程式が得られ、さらに適合条件により全体変位ベクトル $\{u\}$ に関する全体方程式 (一般固有値問題) が得られる。

$$([K] - \lambda [M]) \{u\} = 0 \quad (14)$$

4.3 解析領域の設定およびパラメータ

図 6 に解析を行うために AT カット板上に設けた座標系と水晶自体に規定されている基準座標との関係を示す。水晶の基準座標系 ($X_0 Y_0 Z_0$) の設定法は IRE と IEEE では $+X_0$ 軸の設定が逆となっているが、ここでは IRE にもとづく基準座標とそれに対する AT 板のカッティング角を示す。解析に用いた座標系 (XYZ) では AT 板の主平面を XY 面に選んである。図 7 には、円形電極を持つ AT 板の境界 $\Gamma_1 \sim \Gamma_4$ で囲まれた 1/4 解析領域を示す。励起される振動モードには境界 Γ_1, Γ_2 に対して対称モードと反対称モードがあるが圧電的に励起されるのは対称モードのみであるため X 軸方向の粒子変位 u に対しては対称境界条件 ($u_{,n} = 0$) さらに Γ_3, Γ_4 ではさきに述べた様に、振動応力 T に対して自由境界条件 ($T, n = 0$) とした。なお、今回使用した AT カット水晶振動子の計算パラメータは電極膜厚 ($Pt: 3000 \text{ \AA}$, $Ti: 500 \text{ \AA}$)、材料密度 ($\rho_{\text{SiO}_2}: 2.65 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$, $\rho_{Pt}: 21.45 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$, $\rho_{Ti}: 4.50 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$)、AT 板厚 0.182 mm (実測値)、結晶板サイズ $4 \times 4 \text{ mm}$ (1/4 領域) とし、電極装荷による影響は面密度の増加とした。さらに、弾性スティフネス (c_{11}, c_{55}, c_{66}) は文献値^{(1),(15)} をもとに回転角 $\theta = 35.25^\circ$ として座標変換した値を用いた。分割要素は 6 節点 2 次三角形要素とし固有値の収束テストから 1/4 領域を記述するのに十分と判断された 338 要素、729 節点とした。

4.4 解析結果

境界条件を自由端と設定することは気相中単体での振動子モデルと見なすことが出来るが、図 8 に自由境界条件のもとでの円形電極半径の変化に対する基本波および

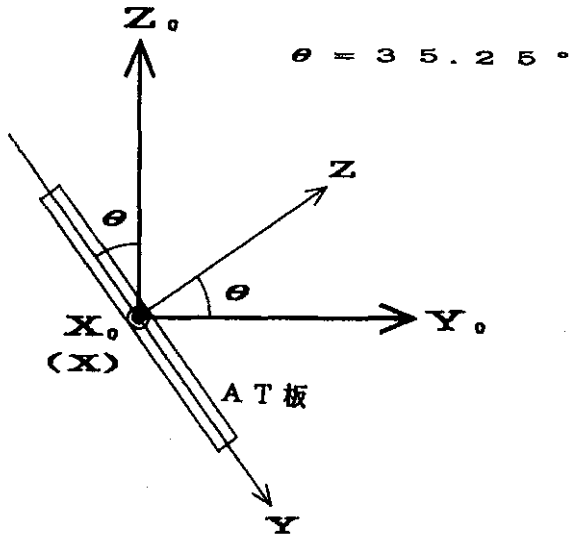


図6 水晶の基準座標および解析座標

副振動の周波数変化を示す。図中の点線 a は無電極水晶板に対する厚みすべり波のカットオフ周波数を示し、この周波数以下では厚みすべり波が伝搬しない事を意味する。点線 b は先に示した条件で水晶板両面に全面電極装荷したものであるに対するカットオフ周波数であり、電極による質量負荷効果のためにカットオフ周波数が低下している。点線 a, b に囲まれる周波数領域では水晶板の無電極部に対してはカットオフ周波数以下のために厚みすべり波が減衰をおこす。一方、電極装荷部に対しては弾性波の伝搬領域となるため電極部近傍にのみ振動エネルギーが閉じ込められている様に見える、いわゆるエネルギートラップをおこす領域である。

電極半径の増加とともに基本波、および副振動の周波数低下が見られるが、電極半径が小さい時にはエネルギートラップ領域には基本波のみしか存在しなかったが半径の増加と共に副共振がこの領域に介入してくる。水晶振動子の一般的な設計法としては基本波振動以外の不要振動を極力抑えるために基本波振動のみがエネルギートラップ領域にかかるような電極半径、電極重量が選ばれる (Bechmann 半径)⁽¹³⁾。ここでの計算値からは基本波振動に対する最大電極半径はほぼ 2mm とされる。さらに、上記の条件で 3 次オーバートーンに対して計算したもので最大電極半径は 1mm 以下となった。

なお、実測周波数との対応であるが電極半径 2.5mm での計算値 (8.99MHz) に対して基本振動の共振 (8.89 MHz), 反共振 (8.91MHz) となり圧電性を考慮しないにもかかわらず両者との誤差は 1% 程となった。

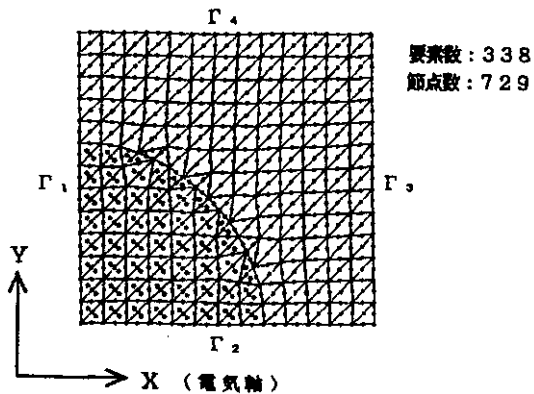


図7 有限要素解析領域

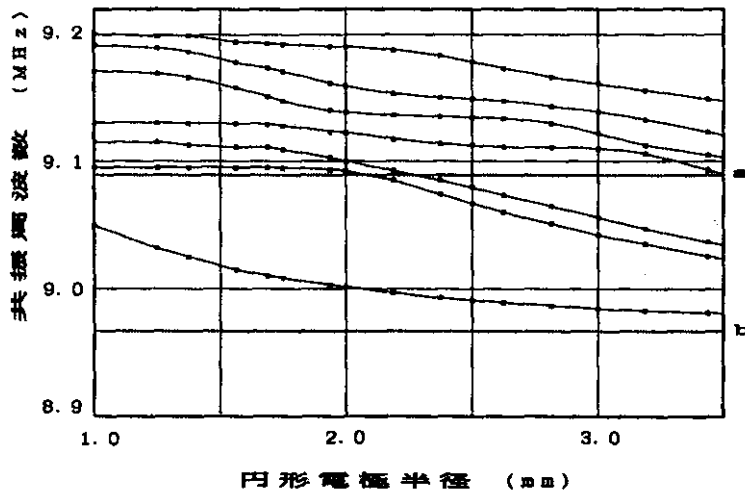


図8 基本波振動の電極半径依存性

5. まとめ

バルク振動子としての AT カット水晶振動子を用いた溶液系センサーはその取扱いの簡便さから、特に電気化学などの研究用として定着しつつあるが多くの物が 5 ~ 10MHz 台の振動子である。ここでは、溶液中での高感度センサーとしての可能性を考慮し、3 次オーバートーンをも含む振動子の粘性流体中での特性変化を測定した。

今回の測定では水溶液としては比較的高粘度と考えられる最大粘度 48cP 迄の測定を行った。高粘度溶液中での振動子アドミタンス測定を通じて言えることは、溶液粘性自体は振動子の減衰を増加させること、また一般的に高粘性溶液ほど温度変化に対する粘性変化が大きいためその影響が周波数変化に現れることなど微量物質の検出を行う際には不利となる点が多い。しかしながら、基本振動の R_1 測定から判るように溶液密度が一定であれば R_1 の測定のみで静粘性係数が判るため特定用途としての粘度計としての可能性、さらに重合反応のように化学反応により溶液粘性が変化する様な系に対しては有効な反応モニターとしての可能性が考えられる。

有限要素解析に関しては、使用したモデルは計算環境の都合上、結晶板の電氣的項を省略して 2 次元弾性体近似とし、さらに振動の自由度を X 軸方向の 1 自由度としたためかなり定性的なモデルとなったが、上記のように固有振動に関しては実測値と比較的良好一致を示した。

《参考文献》

- 1) 柴山 乾夫, “弾性波素子ハンドブック”, オーム社, 1991
- 2) R.D.Mindlin, J. Acoust. Soc. Am., vol.42, pp.1268 - 1277, 1967
- 3) W.J.Spencer, J. Acoust. Soc. Am., vol.39, pp.929 - 935, 1966
- 4) Yook - Kong Yong, IEEE Trans. Ultrason., Ferroelec. Freq. Contr., vol.38, pp.67 - 73, 1991
- 5) 近藤, 塩川: 信学技報, US91-9, pp.17-24, 1991
- 6) 佐藤, 岡嶋, 柏瀬, 茂木, 中島: 信学技報, US92 - 26, pp.9 - 15, 1992
- 7) 近藤, 塩川; 信学技報, US91-62, pp.23-30, 1991
- 8) 日本工業規格 JIS C 6701

- 9) T.Nakamoto, Jpn. Appl. Phys., vol.29, pp.963 - 969, 1990
- 10) H.Muramatsu, Anal. Chem., vol.60, pp.2142 - 2146, 1988
- 11) 化学便覧基礎編 2, 丸善
- 12) F.Josse, J. Acoust. Soc. Am., vol.85, pp.1556 - 1559, 1989
- 13) P.C.Y.Lee, J. Acoust. Soc. Am., vol.72, pp.1855 - 1862, 1982
- 14) 小柴 正則, “光・波動のための有限要素法の基礎” 森北山版, 1990
- 15) G.A.Coquin, J. Acoust. Soc. Am., vol.41, pp.921 - 939, 1967
- 16) Yook - Kong Yong, IEEE Trans. Ultrason., Ferroelec. Freq. Contr., vol.39, pp.609 - 617, 1992
- 17) 山形 積治, 信学論, vol.J 62-A No.7, pp.436 - 443, 1979