

# 超音波式液体分析装置の試作

石 田 美 雄

## § 1 緒 言

電解質の水溶液中の超音波速度はその濃度<sup>(1)</sup>に比例する事が知られている。したがつて水溶液中の超音波速度がわかれば、その濃度を知る事が出来る。筆者は先に液体の超音波速度を迅速に測定する方法を考案したので、これを実用に移す為、超音波式液体分析装置を計画した。この計画は具体化され、国立衛生試験所で実用実験を行う事が出来た。本論文に於ては、測定<sup>(2)</sup>の原理、装置の概要、及び総合調整の結果について述べる。

## § 2 液体の超音波速度測定<sup>(2)</sup>の原理

超音波は液中を疎密波を作つて伝播するから、液体の密度は波の進行方向に沿つて周期的に変化している。従つて超音波はその進行方向に直角に入射する平行光線に対して廻折格子の作用を呈する。我々は生じた廻折縞の間隙から液中の超音波の波長を計算する事が出来るし、その時の超音波の振動数を測定して、超音波速度を計算する事も出来る。

廻折格子に関するよく知られた公式

$$\sin \varphi = n\lambda/d \quad \dots\dots(1)$$

但し  $\varphi$ : 廻折角,  $\lambda$ : 使用光の波長,  $d$ : 格子常数,  $n$ : 廻折次数

に於て,  $\varphi$  は今の場合非常に小さいので

$$D_n/L = n\lambda/d \quad \dots\dots(2)$$

と置き得る。但し  $D_n$  は零次の縞と  $n$  次の縞との距離,  $L$  は廻折格子と廻折縞との距離である。実際の場合  $L$  は測定が困難なので、次のような方法を取る。

### i) 格子基準法

普通の光学廻折格子を基準として用うる。但しその格子常数は超音波の波長と同程度のものがよく、この実験では1時に100線程度のものを用いた。このように粗な廻折格子では、その格子常数  $d_0$  は直接コンパレーターで測定出来る。この廻折格子につき(2)式は

$$D_{ns}/L = n\lambda/d_0 \quad \dots\dots(3)$$

となり。任意の液体に於ける超音波について

$$D_{nx}/L = n\lambda/\Lambda \quad \dots\dots(3')$$

となる。(3)と(3')を辺々相除し

$$\Lambda = D_{ns}/D_{nx}d_0 \quad \dots\dots(4)$$

を得る。但し  $D_{ns}$ ,  $D_{nx}$  は夫々基準廻折格子及超音波についての廻折縞の零次と  $n$  次の間隔であり,  $\Lambda$  は超音波の波長である。超音波の振動数を  $F$  とすれば、超音波速度  $V$  は

$$V = \Lambda F \quad \dots\dots(5)$$

で与えられる。

### ii) 水基準法

蒸溜水の音速は比較的良好に測定されているので、之を音速測定<sup>(2)</sup>の基準とする。この場合は(4), (5)式より

$$V_x = D_{nw}/D_{nz} \cdot V_w \quad \dots\dots\dots(6)$$

を得る。但し  $V_x, V_w$  は夫々被検液及蒸溜水の音速であり、 $D_{nz}, D_{nw}$  は夫々の廻折縞の零次と  $n$  次の間隔である。

### iii) 廻転格子法

格子常数の少し異なる廻折格子を線を平行にして二枚重ねた時に生ずる廻折縞は、一方の格子による二本の線の間に更に二本の線の入った複雑なものとなる。(第3図)。両方の格子常数が一致すれば、その廻折縞は一枚の時と変りはない。従つて二枚の廻折格子の格子常数が等しいかどうかは、その廻折縞を観察する事によつて判定する事が出来る。今一方に超音波格子をとり、之に光学廻折格子を重ね、後者の格子常数を変化出来るとすれば、両方の格子常数が一致した時はその廻折縞の様相から知り得るで、超音波格子の格子常数、即ちその波長を知り得る事となる。

光学廻折格子の格子常数を連続的に変化するには、入射光線を軸として格子を廻転すればよい。スリットと格子の線とが垂直の時には、廻折作用は現われなから、この位置を零とし、この位置からの廻転角を  $\theta$  とすれば、有効な格子常数  $d$  と固有の格子常数  $d_0$  との間には

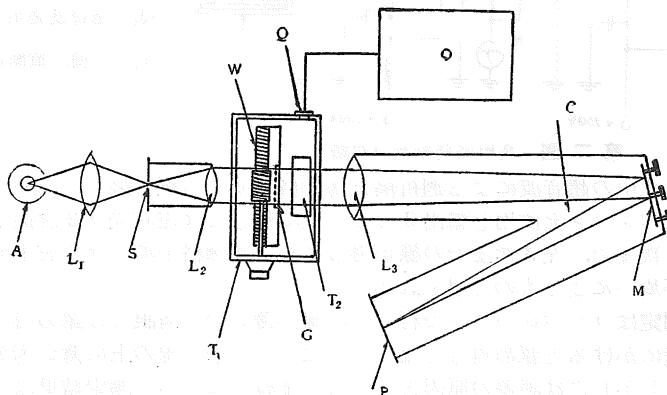
$$d = d_0 \operatorname{cosec} \theta \quad \dots\dots\dots(7)$$

なる関係が成立する。この式は実験的に正しい事が証明されている。

従つて超音波にこのような廻転格子を重ね、生ずる廻折縞を観察しつつ格子を廻転して行き、縞の一致する時の廻転角  $\theta$  を求め、(7)式より  $d$  を計算すれば、この  $d$  は即ち超音波の波長  $\lambda$  である。

### §3 装置の概要

第1図は装置全体の概念図である。ナトリウム・ランプ A より出た単色光は、コンデンサー・レンズ  $L_1$  によつてスリット S の上に収斂される。S をコリメーティング・レンズ  $L_2$  (焦点距離約 20 cm) の焦点に来るよう調節すれば、S を出た光は  $L_2$  によつて平行光線となり、水槽  $T_1$  に入る。水槽の中には試料液槽  $T_2$ 、光学廻折格子 G を廻転させる歯車装置 W がある。W による G の廻転角の読取精度は 1 分である。水槽の側面には直径 10 耗



第一図 装置の概要

の孔があけられており、外部から超音波発生用水晶 Q が貼付してある。Q は空気中の共振周波数が 5500 [kc/S] であつて、高周波発振器 O によつて駆動され、生じた高周波の振動は孔を通して水槽に入り、更に試料液槽に入る。水槽はそれ自身恒温槽になつていて、300ワットの電熱器、水銀温度調節器、水を循環させるポンプを含んでいる。試料液槽中の超音

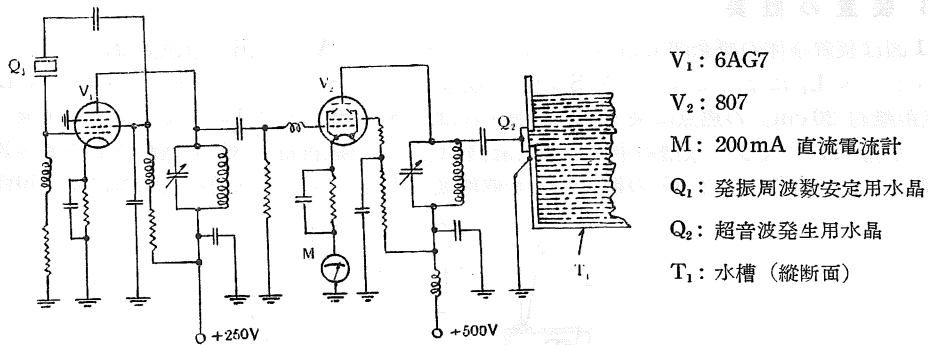
波によつて、廻折を受けた光は長焦点カメラ C に入る。そのカメラ・レンズ  $L_3$  の焦点距離は 2.75 米となつている。この焦点距離が大きい程、廻折縞の間隔が大となり、測定精度が上がる事となる。2.75 米と言う長さは実験室内の装置としては可成長いので、カメラの胴は途中で折れ曲り、P に焦点を結ぶように出来ている。M は反射鏡で三つのネジによつて傾きが調節出来る。P にあるピント・ガラスによつて廻折縞が観測出来るし、又ここで写真撮影も出来る。

高周波発振器 O 及び水晶を駆動する回路は第 2 図の通りである。主発振器 6A G7 のスクリーン・グリッドとカソード間に於て 2750 [kc/S] の水晶制御式発振を行い、陽極側にその倍の 5500 [kc/S] を取出し、807 で電力増巾を行つている。超音波用水晶は空気中の共振周波数が 5500 [kc/S] であるから、実際の動作状態では之に水柱の負荷がかかり、共振周波数は若干低下する。従つて発振器を可変周波式とし、最大の超音波出力を得るように周波数を調節すべきであるが、そうすると発振周波数を常にヘテロダイン周波計によつて監視しなければならない。本装置の工場現場等に於ける使用を考え、周波数測定の手数を省き、且つ発振周波数の安定の為に水晶制御式とし、超音波の出力は幾分犠牲にした。

尚試料液槽  $T_2$  は厚さ 3 耗の磨ガラスが、更に低融点のガラス粉末によつて融着してあるので、試料として強酸でも有機物でも使用出来る。本液槽は光に対してと同様に、超音波に対しても透明でなければならぬので、その側壁の厚さについて特別の考慮を払わねばならない。この点については次節に述べる。

#### § 4 総合調整の結果

[1] 格子基準法によつて蒸溜水の音速を測定した。基準廻折格子として  $d_0 = 0.2538$  耗



第二図 高周波発振器の回路

のものを用い、水中の超音波による廻折縞と基準格子による廻折縞とを同一の写真乾板に撮影した。乾板はパンクロを使用し露出 3 分で、水に対しては左右夫々 2 次線まで、基準格子に対しては右 5 次まで、左 3 次までの線が得られた。基準格子につき左右不均一になつたのは、線引きの不均一によるものと思われる。

線間距離の測定はコンパレーターで行うが、線が薄いので肉眼では認め得ても、コンパレーターの顕微鏡にかけると認め得なくなる。したがつて予め線の上に薄い刃先で印をつけ、之を測定した。しかし之は誤差の原因となる事をまぬがれない。測定結果は次の通である。

蒸溜水について。  $D_{1w} = 5.931$  mm

基準格子について。  $D_{1s} = 6.307$  mm

(4)式より、蒸溜水中の音波長

$$\lambda = D_{1s}/D_{1w} \cdot d_0 = 0.2698 \text{ mm (温度 } 27^\circ\text{C)}$$

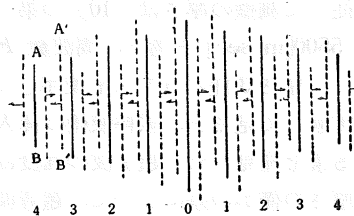
であり、音速

$$V = \lambda F = 0.2698 \times 10^{-3} \times 5.5 \times 10^6 = 1484 \text{ [m/sec]}$$

となる。

〔II〕 廻転格子法による測定

基準格子を格子廻転装置につけ、之を廻転しながら廻折縞を観測すると、その間隔は次第に変わる。そのすべての縞が中央の縞に一致した時（この時格子の線はスリットに垂直になっていると考えられる）の角度の読みを  $\theta_0$  とし、之を「零位置」と呼ぶ事にする。格子を零位置におき、超音波を発生させると、その液体に特有の廻折縞が現われる。この時基準格子を廻転させると、第3図に示すように、元の各廻折縞（実線）から夫々二本の線（点線）が左右に現われ、之が矢印の方向に移動する。この内例えば第四次線 AB に着目し、之に A'B' が一致する時の角度の読みを  $\theta_1$  とし、之を「一致角」と呼ぶ事にする。高次の線に着目する程、この二線の「一致の精度」が上がる。液中の波長  $\lambda$  は(7)式を変形した



第三図 超音波と廻転格子による複合廻折縞

$$\lambda = d_0 \operatorname{cosec}(\theta_1 - \theta_0) \dots\dots\dots(8)$$

によつて計算し得る。

この方法によつて NaCl の溶液について測定した結果は次表の如くである。

試料	零位置 [ $\theta_0$ ]	一致角 [ $\theta_1$ ]	$\theta_1 - \theta_0$	音波長 $\lambda$ (mm)	音速 $V$ (m/sec)
1/2 規定 NaCl	36.5°	102°	65.5°	0.279°	1530
1 規定 NaCl	〃	98°	61.5°	0.289°	1590

但し 温度 27°C  $d_0 = 0.254 \text{ mm}$

蒸溜水の 27°C の音速として〔1〕の測定値を採用すれば、音速は測定誤差の範囲内で濃度に比例する。濃度を重量%で表わす事にすれば、上の測定より NaCl については、1° の角度変化に相当する濃度変化は 0.7% となる。そして線の一致の精度は約 1° なので、この測定法による濃度測定の精度は約 1% と言う事が出来る。線の一致の精度が 1° と言う事は、測定者により、又は同一測定者にあつても場合によつて、その一致角の読みが、 $\pm 0.5^\circ$  の範囲に落ちると言う事である。

〔III〕 廻折縞の太さ

廻折縞の線の太さは測定の精度に影響する。今スリットの巾を  $a$ 、廻折縞の太さを  $b$ 、コリメーティング・レンズ  $L_2$  の焦点距離を  $f_1$ 、カメラ・レンズ  $L_3$  の焦点距離を  $f_2$  とすれば

$$a/b = f_1/f_2 \dots\dots\dots(9)$$

である。今の場合  $f_1 = 20 \text{ cm}$ 、 $f_2 = 2.75 \text{ m}$  であるから  $b = 14a$  となる。スリットの巾  $a$  を狭くするには一定の限度があるので、この場合廻折縞は少々太く、之がこの装置の測定精度を低めた一つの原因となつた。従つて精度を上げるには  $f_2$  を大にすると同時に  $f_1$  も大にしなければならない。そして  $b = 3a$  程度が構造上可能な限界であろう。

〔IV〕 試料液槽の壁厚

試料液槽は厚さ 3 耗の磨硝子で作られてある。液体中に置かれた固体板による超音波の透過又は反射については次の関係がある。

$$\left. \begin{aligned} d &= n \cdot \frac{A_s}{2} && \text{透過極大} \\ d &= (2n + 1) \frac{A_s}{4} && \text{透過極小} \end{aligned} \right\} \dots\dots(10)$$

ここに  $d$ : 固体板の厚さ,  $A_s$ : 固体中の超音波の波長,  $n$ : 正の整数

従つて側壁の厚さは (10) の第一式を充すように定めなければならない。ガラス中の音速を  $5500[\text{m/sec}]$  と考え、周波数  $F=5500[\text{kc/S}]$  であるから、 $A_s=1 \text{ mm}$  を得る。 $n=3$  とし、厚さ 3 耗のガラスを使用したのである。

実験して見ると、試料液槽の挿入の向きを反対にすると、液槽中の超音波強度が非常に異なる事を発見した。超音波の強度は廻折縞の数で大略の見当がつくからである。即ち両側壁の厚さの僅かの差によつて、超音波の透過が非常に異なるのである。従つて試料液槽の壁に用うる硝子としては、普通の磨硝子程度では充分でない。その厚さを使用する超音波でテストしつつ磨く事が必要になる。

## § 5 結 論

液体の濃度測定器としては 0.1% 程度の精度が要求されるので、本装置はその目的には充分でない。精度を向上させるには次の諸点が考えられる。

- i) コリメーティング・レンズ  $L_2$  の焦点距離を長くして、廻折縞の太さを細くすること。
- ii) 使用周波数を高くすること。

液中の音速は使用周波数に無関係と仮定すれば、周波数を上げると、波長は短くなる。この事は格子常数が少となつた事になるので、生ずる廻折縞の間隔は増す。従つて精度が上る。

- iii) 観測法の変化

廻折縞を観測するのに、従来はピント・グラス上の縞を観測したのであるが、ピントグラスを除き、縞を直接虫眼鏡で見るとずつに高次の線まで見る事が出来た。即ち長焦点カメラを望遠鏡に変えた事になる。この方式に於てアイ・ピースを移動測微装置と連結すれば、もつと測定精度が上る事が予期される。

本装置は京都大学理学部高橋教授の指導により、筆者が総合計画を行い、細部の設計及び製作は京都製作所が行なつた。現品は国立衛生試験所調整部長山本允秋氏の許に納入された。筆者は昭和27年7月~8月に東京の国立衛生試験所に於て、山本氏と共に本装置の総合試験を行い、その性能を定め、改良点を検討した。その結果は §4 に述べた通りである。

本装置の計画、実験に当り、懇切なる指導と絶えざる激励を与えられた高橋教授に、感謝すると共に、高周波発振器の製作を担当された京都大学理学部竹山幹夫氏に感謝する。尙本研究は筆者の関係する部分は昭和27年度文部省科学研究助成補助金によつて行なつた。

## 文 献

- 1) Bergman: Ultrasonics
- 2) I. Takahashi, Y. Ishida & M. Ota: A New Method to Measure Ultrasonic Sound Velocities in Liquids (Memoirs of Faculty of Science, Kyoto University, vol. 27, No. 1, 印刷中)
- 3) I. Takahashi and Y. Ishida: Determination of Ultrasonic Sound Velocities and Elastic Constants of Solid. (同上印刷中),