

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2013 年 12 月 27 日(27.12.2013)



(10) 国際公開番号

WO 2013/190852 A1

- (51) 国際特許分類:
H04R 17/00 (2006.01) H04R 31/00 (2006.01)
G01F 1/66 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/003892
- (22) 国際出願日: 2013 年 6 月 21 日(21.06.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2012-140486 2012 年 6 月 22 日(22.06.2012) JP
- (71) 出願人: パナソニック株式会社 (PANASONIC CORPORATION) [JP/JP]; 〒5718501 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 永原 英知(NAGAHARA, Hidetomo). 佐藤 真人(SATOU, Masato). 足立 明久(ADACHI, Akihisa).
- (74) 代理人: 特許業務法人 有古特許事務所(PAT-ENT CORPORATE BODY ARCO PATENT OF-

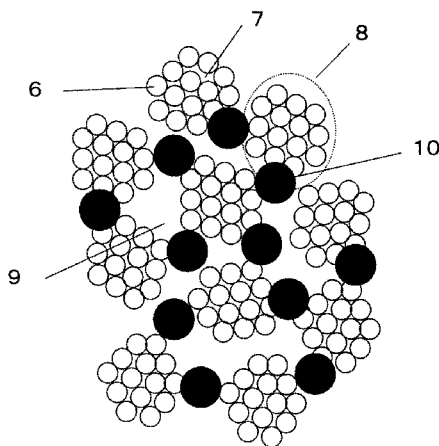
FICE); 〒6500031 兵庫県神戸市中央区東町 1 2 3 番地の 1 貿易ビル 3 階 Hyogo (JP).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロシヤ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ユーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI

[続葉有]

(54) Title: ACOUSTIC MATCHING MEMBER AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME, ULTRASONIC WAVE TRANSMITTER/RECEIVER USING SAME, AND ULTRASONIC FLOW METER

(54) 発明の名称: 音響整合部材及びその製造方法、及びこれを用いた超音波送受波器、超音波流量計



- 6 中実粒子
7 微細空孔
8 乾燥ゲル粒子
9 粒子間空隙
10 結合粒子

- 6 Solid particle
7 Micropore
8 Dry gel particle
9 Interparticle void
10 Binding particle

(57) Abstract: An acoustic matching member (4) comprising dry gel particles (8) and binding particles (10), wherein the dry gel particles have micropores (7) therein and hold interparticle voids among the dry gel particles, the binding particles that are present among the dry gel particles bind the dry gel particles together, and the average particle diameter of the binding particles is larger than the average size of the micropores of the dry gel particles but smaller than the average size of the interparticle voids (9) of the dry gel particles.

(57) 要約: 乾燥ゲル粒子(8)と、結合粒子(10)からなる音響整合部材であって、乾燥ゲル粒子は、内部に微細空孔(7)を持つと共に、乾燥ゲル粒子間に粒子間空隙を保持し、結合粒子は、乾燥ゲル粒子間に存在して乾燥ゲル粒子同士を結合し、結合粒子の平均粒子径は、乾燥ゲル粒子の微細空孔の平均サイズより大きく、乾燥ゲル粒子の粒子間空隙(9)の平均サイズより小さい音響整合部材(4)。

WO 2013/190852 A1

WO 2013/190852 A1



(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

音響整合部材及びその製造方法、及びこれを用いた超音波送受波器、超音波流量計

技術分野

[0001] 本発明は、超音波送受波器の音響整合部材、およびその製造方法に関するものである。特に多様な気体との間で超音波の送受信を高感度に送受波するために、乾燥ゲルを適用した音響整合部材及びその製造方法、及びこれを用いた超音波送受波器、超音波流量計に関する。

背景技術

[0002] 特許文献1は、圧電体と音響整合層を含む超音波送受波器であって、前記音響整合層が無機酸化物または有機高分子の乾燥ゲルからなり、前記乾燥ゲルの固体骨格部が疎水化されてなることを特徴とする超音波送受波器を開示する。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2002-262394号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明の目的は、乾燥ゲルのみによっては得にくい音響インピーダンスを持つ音響整合部材を、乾燥ゲルを用いて提供することにある。

[0005] そして、多種の音響インピーダンスを持つ音響整合部材、およびこの音響整合部材を備えた超音波送受波器、およびその製造方法、ならびに当該超音波送受波器を備えた超音波流量計を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明の音響整合部材は、乾燥ゲル粒子と、結合粒子からなる音響整合部

材であって、前記乾燥ゲル粒子は、内部に微細空孔を持つと共に、前記乾燥ゲル粒子間に粒子間空隙を保持し、前記結合粒子は、前記乾燥ゲル粒子間に存在して前記乾燥ゲル粒子同士を結合し、前記結合粒子の平均粒子径は、前記乾燥ゲル粒子の前記微細空孔の平均サイズより大きく、前記乾燥ゲル粒子の前記粒子間空隙の平均サイズより小さいものである。

[0007] 上記音響整合部材において、前記乾燥ゲル粒子は、固体骨格部がシリカからなっているもよい。

[0008] 上記音響整合部材において、前記微細空孔の平均サイズは100nm以下であってもよい。

[0009] 上記音響整合部材において、前記微細空孔の平均サイズは50nm未満であってもよい。

[0010] 上記音響整合部材において、前記乾燥ゲル粒子の平均粒子径は1μm以上であってもよい。

[0011] 上記音響整合部材において、前記結合粒子の平均粒子径は、50nm以上、10μm以下であってもよい。

[0012] 上記音響整合部材において、前記結合粒子は、有機系高分子であってもよい。

[0013] 上記音響整合部材において、前記有機系高分子は、エポキシ系であってもよい。

[0014] 上記音響整合部材において、前記エポキシの平均分子量は1000～10000であってもよい。

[0015] また、本発明の超音波送受波器は、両面に電極を有する電気機械変換素子と、前記電気機械変換素子の音波放射面に接合された上記いずれかの音響整合部材を有する。

[0016] また、本発明の超音波流量計は、上記いずれかの超音波送受波器を用いている。

[0017] また、本発明の音響整合部材の製造方法は、乾燥ゲル粒子と、水系溶媒に分散したエマルジョン樹脂を混合した分散液から、水系溶媒を除去し、熱処

理を行って一体化する工程を含む。

[0018] 上記製造方法において、乾燥ゲル粒子の平均粒子径よりもエマルジョン樹脂の平均粒子径の方が小さくてもよい。上記製造方法において、エマルジョン樹脂の平均粒子径よりも乾燥ゲル粒子の微細空孔の平均サイズの方が小さくてもよい。

発明の効果

[0019] 本発明の音響整合部材は、乾燥ゲルのみによっては得にくい音響インピーダンスを持つ音響整合部材を、乾燥ゲルを用いて提供することができる。多種の音響インピーダンスを持つ音響整合部材、およびこの音響整合部材を備えた超音波送受波器、およびその製造方法、ならびに当該超音波送受波器を備えた超音波流量計を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図1]図1は、実施の形態1における超音波送受波器の外観を示す斜視図である。

[図2]図2は、実施の形態1における音響整合部材の微細構造を示す模式図である。

[図3]図3は、実施の形態1における超音波送受波器の製造工程手順を示す図である。

[図4]図4は、実施の形態1における超音波送受波器の製造工程手順を示す図である。

[図5]図5は、実施の形態1における結合粒子サイズと分子量との関係を示す図である。

[図6]図6は、実施の形態1における音響整合部材の鑄込み治具を示す図である。

[図7A]図7Aは、1気圧の空気に対しての超音波送受波器の送受波特性を示す図である。

[図7B]図7Bは、1気圧の空気に対しての超音波送受波器の送受波特性を示す図である。

[図8A]図8Aは、50気圧の空気に対しての超音波送受波器の送受波特性を示す図である。

[図8B]図8Bは、50気圧の空気に対しての超音波送受波器の送受波特性を示す図である。

[図9]図9は、従来の超音波流量計の構造を示す断面図である。

[図10]図10は、従来の超音波送受波器の構造を示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0021] はじめに本発明の音響整合部材が搭載された超音波センサの一用途である超音波流量計について説明する。

[0022] 近年、超音波が伝搬路を伝達する時間を計測し、流体の移動速度を測定して流量を計測する超音波流計がガスメータ等に利用されつつある。図9は、このようなタイプの超音波流量計の主要部断面構成図を示している。

[0023] 図9に示す超音波流量計では、流量を測定すべき被測定対象流体が管内を流れるように配置されている。管壁102には、一对の超音波送受波器101a、101bが相対して設置されている。超音波送受波器101a、101bは、電気機械変換素子として圧電セラミック等の圧電体を用いて構成されており、圧電ブザー、圧電発振子と同様に共振特性を示す。

[0024] 図9の例では、最初の段階で、超音波送受波器101aが超音波送波器として用いられ、超音波送受波器101bが超音波受波器として用いられる。この段階においては、超音波送受波器101aの共振周波数近傍における周波数を持つ交流電圧を超音波送受波器101a内の圧電体に印加する。すると、超音波送受波器101aは超音波送波器として機能し、流体（例えば、天然ガスや水素ガス）中に超音波を放射する。放射された超音波は、経路L1に伝搬して、超音波受波器101bに到達する。このとき、超音波送受波器101bは受波器として機能し、超音波を受けて電圧に変換する。

[0025] 次に、超音波送受波器101bが超音波送波器として機能し、超音波送受波器101aが超音波受波器として機能する。すなわち、超音波送受波器101bの共振周波数近傍の周波数を持つ交流電圧を超音波送受波器101b

内の圧電体に印加することにより、超音波送受波器 101b から流体中に超音波を放射させる。放射された超音波は、経路 L2 を伝搬して、超音波送受波器 101a に到達する。超音波送受波器 101a は伝搬してきた超音波を受けて電圧に変換する。

[0026] このように、超音波送受波器 101a および 101b は、送波器としての機能と受波器としての機能を交互に果たすために、一般に「超音波送受波器」と総称される。

[0027] 図 9 に示す超音波流量計では、連続的に交流電圧を印加すると、超音波送受波器から連続的に超音波が放射されて伝搬時間を測定することが困難になるので、通常は一定時間のみ超音波を送波するようバースト電圧信号が駆動電圧として用いられる。

[0028] 以下、上記超音波流量計の測定原理を、より詳細に説明する。

[0029] まず、駆動用のバースト電圧信号を超音波送受波器 101a に印加することにより、超音波送受波器 101a から超音波バースト信号を放射する。これにより、超音波バースト信号は経路 L1 を伝搬して t 時間後に超音波送受波器 101b に到達する。経路 L1 の距離は、経路 L2 の距離と等しく、L であるとする。超音波送受波器 101b は、伝達して来た超音波バースト信号のみを高い S/N 比で電気バースト信号に変換することができる。

[0030] 図 9 において、管の中を流れる流体の流速を V、流体中の超音波の速度を C、流体の流れる方向と超音波パルスの伝搬方向の角度を θ とする。超音波送受波器 101a を超音波送波器、超音波送受波器 101b を超音波受波器として用いたときに、超音波送受波器 101a から出た超音波パルスが超音波送受波器 101b に到達する時間を t_1 とすれば、次式（式 1）が成立する。

[0031]
$$t_1 = L / (C + V \cos \theta) \quad \cdots (1)$$

逆に、超音波送受波器 101b を超音波送波器として、超音波送受波器 101a を超音波受波器として用いたときの到達する時間を t_2 とすれば、次式（式 2）の関係が成立する。

[0032]
$$t_2 = L / (C - V \cos \theta) \quad \dots (2)$$

ここで伝搬時間 t_1 、 t_2 の逆数の差は、次式（式 3）で示される。

[0033]
$$1/t_1 - 1/t_2 = 2V \cos \theta / L \quad \dots (3)$$

また、（式 3）を変形すると次式（式 4）が得られる。

[0034]
$$V = (L / 2 \cos \theta) \cdot (1/t_1 - 1/t_2) \quad \dots (4)$$

（式 4）によれば、超音波の伝搬経路の距離 L と、伝搬時間 t_1 、 t_2 とから、流体の流速 V を求めることができる。そしてその流速 V と、流路の断面積から流量を決定することができる。

[0035] このような超音波流量計では高い精度が求められる。精度を高めるためには、超音波信号の S/N 比が高いことが必要となる。

[0036] 超音波信号の S/N 比を高めるために、超音波送受波器内の圧電体の超音波送受波面に形成される音響整合部材の音響インピーダンスが重要となる。音響整合部材は、超音波送受波器が気体に超音波を放射（送波）する場合、および、気体を伝搬してきた超音波を受け取る場合に重要な役割を果たす。

[0037] 以下、図 10 を参照しながら、音響整合部材の役割を説明する。図 10 は、従来の超音波送受波器 103 の断面構成を示している。

[0038] 図示されている超音波送受波器 103 は、圧電体 104 と、圧電体 103 の一方の面に接合された音響整合部材 105 とを備えている。音響整合部材 105 は、エポキシ系の接着剤によって圧電体 105 の一方の面に接着されている。

[0039] 圧電体 104 の超音波振動は、この接着剤からなる接着層を介して音響整合部材 105 に伝わる。この後、超音波振動は、音響整合部材 105 と接する気体や、液体などの流体（超音波伝搬媒体）に音波として放射される。

[0040] 音響整合部材 105 の役割は、圧電体の振動を効率良く流体に伝搬させることにある。

[0041] 以下、この点をより詳細に説明する。

[0042] 物質の音響インピーダンス Z は、その物質中の音速 C と物質の密度 ρ とを用いて次式（式 5）によって定義される。

[0043] $Z = \rho \times C \quad \dots (5)$

超音波の放射対象となる気体の音響インピーダンスは、圧電体の音響インピーダンスと大きく異なっている。一般的な圧電体であるPZT（チタン酸ジルコン酸鉛）等のpiezoceramicsの音響インピーダンス Z_1 は、 $2.9 \times 10^7 \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ 程度である。これに対して、空気の音響インピーダンス Z_3 は $4.0 \times 10^2 \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ 程度である。

[0044] 音響インピーダンスの異なる境界面では、音波が反射しやすく、境界面を透過する音波の強度が低下する。このため、圧電体と気体の間に、次式（式6）で示す音響インピーダンス Z_2 を持つ物質を挿入することが行われている。

[0045] $Z_2 = (Z_1 \times Z_3)^{1/2} \quad \dots (6)$

このような音響インピーダンス Z_2 をもつ物質を挿入すると、境界面での反射が抑えられ、音波の透過率が向上する事が知られている。

[0046] ここで空気のような気体の流量を計測する場合を考える。

[0047] 圧電体の音響インピーダンス Z_1 を $2.9 \times 10^7 \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ 、空気の音響インピーダンス Z_3 を $4.0 \times 10^2 \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ とした場合、（式6）を満たす音響インピーダンス Z_2 は、 $1.1 \times 10^5 \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ 程度となる。

[0048] $1.1 \times 10^5 \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ の値を持つ物質は、当然に、（式5）、すなわち、 $Z_2 = \rho \times C$ を満足しなければならない。このような物質を固体材料の中から見出すことは極めて難しい。その理由は、固体でありながら、密度 ρ が十分に小さく、かつ、音速 C が低いことが要求されるからである。

[0049] 特許文献1に開示された音響整合材料は、（式6）を十分に満足する。この材料は、耐久性を付与した乾燥ゲルを用いて作製され、密度 ρ が小さく、かつ、音速 C も低い。乾燥ゲルなどの音響インピーダンスの極めて低い材料から形成した音響整合部材を備えた超音波送受波器は、気体との間で効率的かつ高感度で超音波の送受波を行うことができ、その結果、気体の流量を高い精度で測定することが可能になる。

[0050] 以上のような乾燥ゲルはゾルゲル反応で形成される多孔質体であり、数 n

mの粒子が互いに一部を接合する形でネットワークを形成しており、数nm程度の骨格と、数nm程度の空孔から形成されている。

[0051] このような数nmレベルの微細な空孔に液状物質が出入りする際には、毛管力による大きな力が発生し、乾燥ゲル本体の骨格構造を破壊してしまう場合がある。骨格構造が壊れるとブロック状の形状が保持できず、また低密度特性も失われてしまう。このため、液状の接着剤を用いたブロック化や、接合は極めて困難である。

[0052] また、空気より音響インピーダンスの大きなガスを計測する用途があり、このような場合には、より音響インピーダンスの大きな音響整合部材が必要とされる。

[0053] 具体的には、圧縮空気や、臭素などの比重の大きな気体がある。このような気体の計測を高精度に行うには、このような気体に適した音響整合部材が必要となり、これは乾燥ゲルのみで形成される音響整合部材とは異なる音響インピーダンスを持つ音響整合部材が必要となる。

[0054] 本発明者らは、上記検討の結果、以下の実施形態を着想した。

[0055] 以下、添付の図面を参照しながら、本発明の実施の形態を説明する。なお、この実施の形態によって本発明が限定されるものではない。

[0056] (実施の形態1)

図1は、超音波送受波器の実施の形態1における一断面を示している。図示されている超音波送受波器1は、圧電体2（電気機械変換素子）と、圧電体2の両面に設けられた一対の電極3a、3bと、電極3aを介して圧電体2の主面（超音波送受波面）に接合された音響整合部材4と、を備えている。

[0057] 圧電体2は、圧電性を有する材料から形成され、厚さ方向（図1の上下方向）に分極されている。圧電体2の上面側に設けられた電極3aと下面側に設けられた電極3bとの間に電圧信号が印加されると、電圧信号に基づいて圧電体2が伸縮し、圧電体2の超音波送受波面から超音波が放射されることになる。この超音波は、音響整合部材4を介して、超音波の伝搬媒体（例え

ば、気体) 5へ放射される。

[0058] 一方、伝搬媒体5を伝搬してきた超音波は、音響整合部材4を介して圧電体2へ達し、電極3a、3bの間に電圧信号を発生させる。このように本実施の形態の超音波送受波器1は、1つで超音波の送信および受信の両方を行うことができる。

[0059] 本実施の形態で用いる圧電体2の材料は任意であり、公知の圧電性材料を用いることができる。また、圧電体2の代わりに、電歪体を用いてもよい。電歪体を用いる場合にも、その材料は任意であり、公知の材料を用いることができる。また、電極3a、3bも公知の導電材料から形成される。

[0060] 音響整合部材4は、圧電体2で発生した超音波を伝搬媒体5へ効率よく伝搬させる役割を果たすとともに、伝搬媒体5の中を伝搬してきた超音波を効率よく圧電体2へ伝える役割を果たす。

[0061] 本実施の形態の音響整合部材4は、数nm程度のシリカ粒子が、同レベルの空孔を持ちながら結合した乾燥ゲル粒子8を、結合粒子10で接合したブロック体からなる。音響整合部材4の音波伝搬方向の厚さは、送受信する超音波の波長の1/4程度となるように設定されている。

[0062] 本実施の形態の音響整合部材4の、内部構造の模式図を図2に示す。図2において、6は骨格部分を構成する中実粒子であり、7は中実粒子間に存在する空孔であり、8は乾燥ゲル粒子であり、複数の中実粒子6が、空孔を持ちながら結合されて形成されたものである。

[0063] 9は乾燥ゲル粒子8の間に存在する空隙であり、10は乾燥ゲル粒子8を結合する結合粒子である。

[0064] 本実施の形態における結合粒子10は、乾燥ゲル粒子8の内部空孔（微細空孔）より大きく、かつ乾燥ゲル粒子8間の空隙より小さなサイズである。このようなサイズの結合粒子10は、乾燥ゲル粒子8内の空孔にはサイズが小さすぎて侵入することができないため、乾燥ゲルの特徴である低密度特性を失うことがない。

[0065] 結合粒子10の平均粒子径は、レーザー回折法（例えば、島津製作所社製

SALD)により測定する。乾燥ゲル粒子8の平均粒子径は、レーザー回折法(例えば、島津製作所社製SALD)により測定する。

[0066] 乾燥ゲル粒子8の内部空孔の平均サイズは、ガス吸着法(例えば、日本ベル株式会社製BELSORP-mini II)により測定する。乾燥ゲル粒子8の粒子間空隙9は、水銀圧入法(例えば、島津製作所社製オートポア)により測定する。

[0067] また、乾燥ゲル粒子8の粒子間空隙9に対しては、結合粒子10のサイズが十分に小さいため、容易に侵入し、乾燥ゲル粒子8同士を接合することが可能である。本実施の形態における結合粒子10は樹脂系材料からなる。

[0068] 本実施の形態の音響整合部材4は、乾燥ゲルのみで構成された音響整合部材に比べ、結合粒子10の比率を調整することで、多様な音響インピーダンスを実現することが出来るため、幅広い気体の特性に応じた適切な音響インピーダンスを実現して、効率的な超音波の送受信を行う超音波送受波器を実現することが出来る。

[0069] 本実施の形態の音響整合部材は、内部にマイクロ～メソサイズの空孔を有する乾燥ゲル粒子を結合粒子で結合した複合材料であり、乾燥ゲル粒子を結合する結合粒子は、乾燥ゲル粒子の内部空孔サイズより大きく、かつ乾燥ゲル粒子間の空隙より小さなサイズを持つ。

[0070] このため結合粒子は乾燥ゲル粒子内の空孔に侵入が出来ず、かつ乾燥ゲル粒子の隙間に侵入することが可能である。

[0071] 結合粒子は乾燥ゲルの微細な空孔に入り込めないため、乾燥ゲルの低密度特性を失うことがない。また乾燥ゲル粒子の粒子間の空隙には侵入することが可能なため、乾燥ゲル粒子同士を接合することが可能である。

[0072] 更に、乾燥ゲル粒子を結合する粒子樹脂の配合比率を調整することで、音響整合部材の密度、および音速を大きく変えることが容易にできるため、多くの用途に適した音響整合部材を容易に形成することが出来る。

[0073] 以下、本実施の形態における超音波送受波器1の製造方法を説明する。

[0074] まず、送信および／または受信の対象となる超音波の波長に合わせた圧電

体2を用意する。圧電体2としては、圧電セラミックスや圧電単結晶など圧電性の高い材料を用いてもよい。圧電セラミックとしては、チタン酸ジルコン酸鉛、チタン酸バリウム、チタン酸鉛、ニオブ酸鉛などを用いることができる。また圧電単結晶としては、チタン酸ジルコン酸鉛単結晶、ニオブ酸リチウム、水晶などを用いることができる。

[0075] 本実施の形態では、圧電体2としてチタン酸ジルコン酸鉛系セラミックスを用い、送受波する超音波の周波数を500kHzに設定している。このような超音波を圧電体2が効率よく送受波できるようにするため、圧電体2の共振周波数を約500kHzに設計する。

[0076] 圧電体2は、その厚さを超音波の波長の1/2の大きさに設定したときに強く共振し、超音波の送受信効率が良くなる。チタン酸ジルコン酸鉛系セラミックスの音速は約3800m/秒であるので、圧電体2における周波数が500kHzの超音波の波長は、7.6mmとなる。このため、本実施の形態では、厚さが約3.8mmで、直径が12mmの円柱形状を有する圧電体2を用いる。

[0077] 圧電体2の上下両面には、焼付けによる銀製の電極3a、3bが設けられ、圧電体2は、この方向に分極処理されている。

[0078] 音響整合部材4は、図1に示したように圧電体2と同じ直径12mmを有し、厚さは先に述べたように1/4波長としている。本実施の形態で用いている音響整合部材の音速は1500m/秒であるので、500kHzにおける1/4波長である約0.75mmとしている。密度は500kg/m³であり、音響インピーダンスは7.5×10⁵kg/m²/秒である。

[0079] 以下、図3、および図4を参照しながら、音響整合部材4の製造方法について説明する。

[0080] 図3は、音響整合部材4の乾燥ゲル粒子8の製造フローを示しており、図4は乾燥ゲル粒子8を結合粒子10で結合する製造フローを示している。

[0081] 図3のフローで得られるゲル粒子分散液が、図4における製造フローの入力になっており、図3のプロセスの後に、図4のプロセスがシリアルに続く。

ていく関係にある。

[0082] はじめに図3を参照しながら、乾燥ゲル粒子8の製造方法について説明する。図3全体の流れは、ゲル原料液を調合し、ブロック状の乾燥ゲルを形成した後、これを粉砕することで乾燥ゲル粒子8とするものである。

[0083] 本実施の形態では、乾燥ゲルは固体骨格部である中実粒子6がシリカ(SiO_2)からなる乾燥ゲルを用いる。乾燥ゲルの骨格部分となる中実粒子のサイズは数nm程度であり、乾燥ゲル粒子8内の空孔サイズは数nm～数十nm程度の比較的広い分散を持っている。

[0084] なお、乾燥ゲル粒子8としては、上記の他、アルミナ、酸化クロム、酸化スズ、カーボン、あるいはレゾルシノールとホルムアルデヒドの共重合体ポリマー等を用いてもよい。

[0085] また、最終的に形成される乾燥ゲル粒子8の大きさは数～数十 μm 程度のサイズである。

[0086] 以下、より具体的な製造手順について説明する。

[0087] はじめに、STEP1では乾燥ゲル原料液の調合を行う。乾燥ゲルの骨格部分の原料となるテトラエトキシシラン等のアルコキシシランと、エタノール、水、触媒（アンモニア、塩酸等）を混合した原料液を作製する。

[0088] ゲル原料液の配合比率は一例として、テトラエトキシシラン6%、エタノール20%、0.1規定のアンモニア水74%とすることが出来る。テトラエトキシシランのゲル原料液中における体積比率が形成される乾燥ゲルの密度に直接影響する。

[0089] テトラエトキシシランの体積比が小さいと、密度の小さい乾燥ゲルが生成され、体積比が大きいと密度の大きい乾燥ゲルが生成される。

[0090] 本実施の形態の乾燥ゲルでは、一例として乾燥ゲルの低密度特性を活かすため、密度0.1程度となるようなゲル原料液の配合比率を設定している。またこの密度は、このプロセスで結合粒子10によって接合し、音響整合部材として用いる際に取り扱いが容易で、強度の保てる密度となるように設定している。

- [0091] 次に、STEP 2では、調合したゲル原料液を恒温槽などの中で加熱し重合反応を開始、加速させる。一例として60℃の恒温槽中で24時間放置することで重合反応を完了する。温度と重合反応の速度はほぼ比例関係にあり、重合反応の速度はゲル原料液の粒子サイズに大きく影響を与えるため、所望のゲルを得るために反応温度の制御は重要である。また重合反応速度は、ゲルの特性の安定性にも関係している。
- [0092] 重合速度が早いと、粒子サイズ、および空孔サイズが小さくなる傾向にあり、逆に反応速度が遅いと粒子サイズ、および空孔サイズが大きくなる傾向にある。
- [0093] 粒子サイズが小さい乾燥ゲルは音速が低い傾向があり、逆に粒子サイズが大きい乾燥ゲルは音速が高い傾向がある。
- [0094] 気体用音響整合部材として用いる場合には、音速が遅いほうが有利であるため、数nm程度の粒子サイズとなるように反応速度、すなわち加熱温度を早めになるように制御してもよい。
- [0095] 先に述べたようにゲル原料液の配合比率と、反応温度を調整することで、ゲル骨格および空孔粒子が適切に設定された比重0.1、内部空孔サイズが1~20nm程度の乾燥ゲルを得ることが出来る。
- [0096] 以上のプロセスで、STEP 3に記載したシリカ骨格の間に液体が充填された湿潤ゲルが得られる。シリカ骨格の間には、ゲル原料液に含まれていたエタノール、水、触媒、そして一部の未反応のアルコキシシランが存在している。
- [0097] この湿潤ゲルに残留しているアルコキシシランは、外部の温度などの環境で重合反応を開始することがある。またアンモニア等の触媒が存在している環境で重合反応と共に、分解、溶解反応が開始することがある。そのため、これらの残留溶液は取り除いておいてもよい。
- [0098] STEP 4では、以上のような特性を変動させる不安定要素を取り除くため、残留したゲル原料液、および触媒からの溶媒置換を行う。
- [0099] 置換する溶媒は、純水や、エタノール等のアルコール系溶媒、あるいはペ

ンタン、ヘキサン等の有機系溶媒など、ゲル骨格の反応に影響を与えないものならよく、任意の置換溶媒を選択することが出来る。

[0100] 本実施の形態では、後のプロセスで用いる水系エマルジョン樹脂と混合することを考慮して、溶媒として純水を選択する。形成された湿潤ゲルを反応容器から取り出し、湿潤ゲルの10倍程度の体積の純水を入れた容器中で24時間放置することで、湿潤ゲル中の残留アルコキシシラン、および触媒を除去する。

[0101] STEP 5、およびSTEP 6では、得られたブロック状の湿潤ゲルを数 μm 程度の、所望の大きさの粒子とするため、ボールミルによる粉砕処理を行う。

[0102] ボールミルによる粉砕処理の原理は、テフロン（登録商標）製などの円筒型の容器に、湿潤ゲルと、ジルコニア製などの硬質のボールと共に充填し、円筒容器を回転させることで、円筒容器内で移動するジルコニアボールの衝突によりゲルが粉砕されるものである。

[0103] ボールミルによる粉砕の場合、時間とともに粒子径は小さくなっていく。また円筒容器の回転数が高くなると同一処理時間で得られる粒子のサイズは小さくなる、すなわち粉砕効率が高くなる。

[0104] ただし、円筒容器内の粉砕用ボールが、円筒容器内の壁に張り付いたまま回転するほど回転数が早くなると粉砕効果が得られないため、ある一定の回転数以下で処理が行われる必要がある。

[0105] また、粉砕用ボールのサイズ（直径）は、粉砕効率および、粉砕後の粒子径に影響を与える。ボールが大きいと、ボールの衝突時の衝撃が大きいため、粉砕効率が高くなる。すなわち単位時間あたりの粒径の変化が大きい。

[0106] しかしながら、ボールのサイズが大きい場合には、粉砕され出来る粒子サイズの分散が大きい傾向があり、本実施の形態では直径3mmのジルコニア製のボールを用いる。ジルコニアは固く、磨耗しにくい特性があるため、粉砕用ボールの素材として適切である。ジルコニアの他にアルミナ等を用いることも出来る。

- [0107] また、円筒容器内のゲル、溶媒、ジルコニアボールの体積が、円筒容器の体積に対してある一定範囲以下で量が多い時に、粉碎効率が良くなる。本実施の形態では60%程度としている。
- [0108] 一例として、内径が150mmのテフロン（登録商標）製の円筒容器に、体積割合で20%のエアロゲルと、20%のジルコニアボールを入れ、更に水を20%入れて、90rpmで、1時間粉碎することで、平均粒子径が約8 μ mの乾燥ゲル粒子8を得ることが出来る。
- [0109] ここで、乾燥ゲル粒子8の平均粒子径を、レーザ回折法（島津製作所社製SALD）により測定した結果、約8 μ mであった。乾燥ゲル粒子8の微細空孔の平均サイズをガス吸着法（日本ベル株式会社製BELSORP-mini II）により測定した結果、約10nmであった。
- [0110] こうして得られた乾燥ゲル粒子8から、粉碎用に用いたボールを除去して、一定の平均粒子径となったゲル粒子分散した溶液を得る。先に述べたように用いた粉碎用ボールは直径3mmであり、ゲル粒子は10 μ m程度であるため、1mm程度の目の開いたメッシュで容易に分離することができる。
- [0111] このようにして得られたゲル粒子分散液を、次のプロセスである結合粒子10による結合プロセスを行う。
- [0112] 結合粒子10による結合プロセス、および音響整合部材、超音波送受波器に至るプロセスを図4で示す。
- [0113] 図4のSTEP8では、得られたゲル粒子分散液にエマルジョン樹脂分散液を添加する。エマルジョン樹脂分散液は、水などの水系溶媒に、微細な粒子状樹脂を分散させたものである。
- [0114] 近年、環境負荷低減対応に適した塗料や、コーティング剤などとして広く用いられるようになっている材料である。このようなエマルジョン樹脂分散液中の結合粒子10として、様々な素材を用いることが可能である。一例として、アクリル系や、エポキシ系、ウレタン系、酢酸ビニル系、スチレン系、オレフィン系などの樹脂を分散させたものが利用することが出来る。
- [0115] 本実施の形態では、粒子径が800nm程度のエポキシ樹脂を分散させた

エマルジョン樹脂分散液を用いている。

[0116] 図5にはエポキシ樹脂の分子量と、粒子径の大きさの関係を示す。図5は横軸に粒子径、縦軸に分子量をとっている。図5では分子量で取りうる最大の粒子径を表記している。すなわち高分子であるエポキシの鎖状分子が完全に直線上になった場合の理論値を示しており、実際には、高分子は直線状で溶液中で存在していることは殆どなく、屈曲するか、あるいは丸まった糸のように球状になっている場合もあり、図5に示したサイズが最大サイズであり、通常はこれより小さい。

[0117] エポキシ樹脂の平均粒子径を、レーザー回折法（島津製作所社製SALD）により測定した結果、約1 μm であった。

[0118] エポキシ樹脂では、平均分子量が600未満では通常状態で液体状態であるため、本実施の形態の音響整合部材では利用することができない。また分子量と軟化点（流動、硬化）の間には、相関関係があり、分子量が大きくなると、同一温度における流動性は低くなる。

[0119] STEP9では、ゲル粒子と、結合粒子10が混合した分散液の均一性を高めるために、均一化の処理を行う。均一化の処理は、通常のスターラーなどで行うことが出来る。あるいは分散液の粘度が高い場合には、回転ミキサーなどを用いることも出来る。本実施の形態では、回転ミキサーを用いて、5分の均一化処理を行う。

[0120] 平均分子量は、液体クロマトグラフ法（例えば、島津製作所社製Nexera）により測定される。

[0121] STEP10では、こうして得られたゲル粒子と結合粒子10の分散液を、必要な形状に成型し、過剰な水分を除去する操作を行う。このために本実施の形態では、成型と過剰な水分除去の機能を同時に果たす石膏性の鋳型を用いる。

[0122] 具体的には図6のように板状の石膏板11に、音響整合部材4のサイズとほぼ同形状のくぼみ12を設け、この部分にゲル粒子・結合粒子10分散液を鋳込み成型する。本実施の形態では、最終形状として音響整合部材4のサ

イズである直径12mm、厚さ1mmのペレットを得るため、くぼみの直径を20mmとし、深さを5mmとしている。

[0123] これは水分が除去され、収縮する寸法と、最終的には外周、および厚さを機械加工する必要があるため、余裕を見てこのサイズとしている。このサイズは実験的に決めたものである。

[0124] 石膏製の型は、水等の液体を完全には遮断せず、かつゲル粒子、結合粒子10を遮断する微細な空孔を保有しているため、鑄込みした分散液の表面からだけでなく、石膏素体自体からも水分を除去することが可能なため、効率的な水分の除去が可能となる。

[0125] これは乾燥工程の時間を短縮することができるだけでなく、例えば表面のみから水分が除去する場合に比べ、全体の形状が同じように収縮する為に、歪が低減し、成形や、組み立て時などの割れなどが発生しにくい。

[0126] 本実施の形態では、水分除去のため、石膏型に鑄込みした分散液を40℃の恒温槽中で2日間放置した（STEP11）。この処理を行うことで水分の90%以上除去できる。こうして水分を除去した乾燥ゲル粒子8と結合粒子10の複合体の乾燥体を得ることができる。

[0127] ただし、この時点では、乾燥ゲル粒子8と結合粒子10は弱い分子間力によってのみ接合している状態であり、音響整合部材として用いるには強度が不足している。

[0128] STEP12では、これをさらに強固な結合とするため、石膏型に設置したまま、恒温槽の温度を150℃に上昇させる。150℃程度になると結合粒子10の粒径が特に小さい成分が溶融して液体状態になる。このような粒子径の小さい樹脂、すなわち分子量の小さい結合粒子10のみが選択的に、しかもほとんどが大きな樹脂の表面で流れていくため、乾燥ゲル粒子8内部の微細空孔に侵入することはない。

[0129] このような適切な温度を選べると、乾燥ゲル粒子8内部の空孔を殆ど破壊すること無く、乾燥ゲル粒子8同士を強固な結合で一体化することが可能となる。熱処理後は、急激な温度変化があると、形成した音響整合部材となる複

合体に歪が発生し、割れや、欠けの原因となる可能性があるため、ゆっくりと除冷してもよい。

[0130] 本実施の形態では150℃の加熱、効果の後、常温まで約6時間をかけて除冷した。こうして形成された複合体ブロックのサイズは、厚さ2mm、直径15mmであった。

[0131] このようにして強固な結合で構成された乾燥ゲル粒子8と結合粒子10の複合ブロック体を、音響整合として用いるために、STEP13では、外周加工と厚さ調整を行う。

[0132] まず、音波放射面、あるいは圧電体2と結合する面を研磨機により所定の厚さ1mmにまで厚さを調整する。その後、研磨面をホールドして、外周加工を行う。外周加工は直径12mmの円盤状の音響整合部材より一回り小さい治具によりホールドし、治具から露出している部分をヤスリにより回転させながら研磨することで調整した。

[0133] 乾燥ゲル粒子8の粒子間空隙の平均サイズを、水銀圧入法（島津製作所社製オートポア）により測定した結果、10μmであった。

[0134] こうして得られた音響整合部材4は先に述べたように、密度0.50であり、音速は1500m/sである。このようにして得られた音響整合部材4を、STEP14では圧電体2の音波放射面に接合する。

[0135] この場合にも、分子量の小さいエポキシ樹脂を圧電体2との接合に用いると、硬化前の樹脂が流動して乾燥ゲル粒子8内部の空孔に侵入し、得られた音響整合部材の密度と特性が変動する可能性がある。また接着剤が少ない場合には、接合が実現できない可能性がある。

[0136] このため圧電体2との接合にもエマルジョン状樹脂を用いてもよい。

[0137] まず、圧電体2の上面にエマルジョン状樹脂を塗布し、60℃の低温で過熱することで水分を除去する。こうして形成されたエマルジョン状樹脂層の上に、成形した音響整合部材を設置し、加圧しながら150℃まで更に加熱を行う。こうして圧電体2に乾燥ゲル粒子8と、結合粒子10からなる音響整合部材を設けた超音波送受波器が得られる。

[0138] このようにして形成した超音波送受波器 1 の特性の一例を図 7、および図 8 に示す。図 7、8 において、横軸は時間、縦軸は振幅の相対的な大きさを示すものである。

[0139] 図 7 は、1 気圧の空気に対して超音波を送受波した場合の特性を示す図である。図 7 (a) が乾燥ゲルのみで形成した音響整合部材（音響インピーダンス 0.1×10^6 ）による結果であり、図 7 (b) が本実施の形態によって作製した音響整合部材（音響インピーダンス 0.75×10^6 ）による結果である。常温、常圧の空気に対しては、従来の乾燥ゲルのみからなる音響整合部材を用いた場合のほうが、高い感度を得られることがわかる。

[0140] 一方、図 8 には 50 気圧の空気に対して超音波を送受信した場合の特性を示す。高圧になると気体の密度が比例して上昇する。音速は圧力と相関が無い為、圧力が 50 倍になると音響インピーダンスは 50 倍となる。このため、音響整合部材として最適な音響インピーダンスは、常圧の空気の場合よりも大きくなる。

[0141] 図 8 において、図 8 (a) が乾燥ゲルのみで形成した音響整合部材（音響インピーダンス 0.1×10^6 ）による結果であり、図 8 (b) が本実施の形態によって作製した音響整合部材（音響インピーダンス 0.75×10^6 ）による結果である。

[0142] 図 8 より分かるように、本実施の形態における音響整合部材を用いた超音波センサのほうが、高い感度を得られ、すなわち超音波流量計の計測精度を向上することが可能となる。

[0143] 以上のように、本実施の形態の音響整合部材を用いると、乾燥ゲル材料を別の材料と複合して用いることにより、幅広い特性を持つ音響整合部材を形成することが出来、様々な気体、あるいは用途の超音波送受波器、超音波流量計を実現することが出来るものである。

[0144] 以上では、粒子状乾燥ゲルの重合からのプロセスを例に説明したが、市販の粒子状乾燥ゲルを用いることも可能である。

[0145] このような場合、粒子状乾燥ゲルと、エマルジョン樹脂と、を混合する S

STEP 8以降を行うこととなる。この場合にはSTEP 7までの手順が省略できる為、時間的コストを考慮してかかる方法を採用してもよい。しかし総合的なコストを勘案の上最適な方法を選択することが出来る。

[0146] 上記説明から、当業者にとっては、本発明の多くの改良や他の実施形態が明らかである。従って、上記説明は、例示としてのみ解釈されるべきであり、本発明を実行する最良の態様を当業者に教示する目的で提供されたものである。本発明の精神を逸脱することなく、その構造及び／又は機能の詳細を実質的に変更できる。

産業上の利用可能性

[0147] 本発明の音響整合部材は、気体を中心にした各種媒体との間で、超音波を送受波する装置に広く用いることができ、特に超音波を高精度に検出することが求められるセンシング、流量計測装置に好適に用いることが出来る。

符号の説明

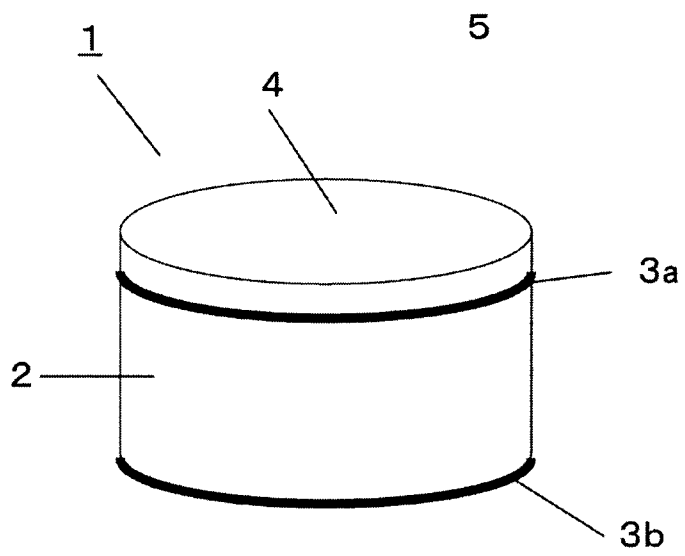
- [0148]
- 1 超音波送受波器
 - 2 圧電体（電気機械変換素子）
 - 3 a, 3 b 電極
 - 4 音響整合部材
 - 5 伝搬媒体
 - 6 中実粒子
 - 7 微細空孔
 - 8 乾燥ゲル粒子
 - 9 粒子間空隙
 - 10 結合粒子

請求の範囲

- [請求項1] 乾燥ゲル粒子と、結合粒子からなる音響整合部材であって、
前記乾燥ゲル粒子は、内部に微細空孔を持つと共に、前記乾燥ゲル粒子間に粒子間空隙を保持し、
前記結合粒子は、前記乾燥ゲル粒子間に存在して前記乾燥ゲル粒子同士を結合し、
前記結合粒子の平均粒子径は、前記乾燥ゲル粒子の前記微細空孔の平均サイズより大きく、前記乾燥ゲル粒子の前記粒子間空隙の平均サイズより小さい音響整合部材。
- [請求項2] 前記乾燥ゲル粒子は、固体骨格部がシリカからなる請求項1記載の音響整合部材。
- [請求項3] 前記微細空孔の平均サイズは、100nm以下である請求項1記載の音響整合部材。
- [請求項4] 前記乾燥ゲル粒子の平均粒子径は、1 μ m以上である請求項1記載の音響整合部材。
- [請求項5] 前記結合粒子の平均粒子径は、50nm以上、かつ、10 μ m以下である請求項1記載の音響整合部材。
- [請求項6] 前記結合粒子は、有機系高分子である請求項1記載の音響整合部材。
- [請求項7] 前記有機系高分子は、エポキシ系である請求項6記載の音響整合部材。
- [請求項8] 前記エポキシの平均分子量は、1000～100000である請求項7記載の音響整合部材。
- [請求項9] 両面に電極を有する電気機械変換素子と、前記電気機械変換素子の音波放射面に接合された請求項1～8のいずれか1項に記載の前記音響整合部材を有する超音波送受波器。
- [請求項10] 前記音響整合部材は前記結合粒子で電気機械変換素子と接合された請求項9に記載の超音波送受波器。

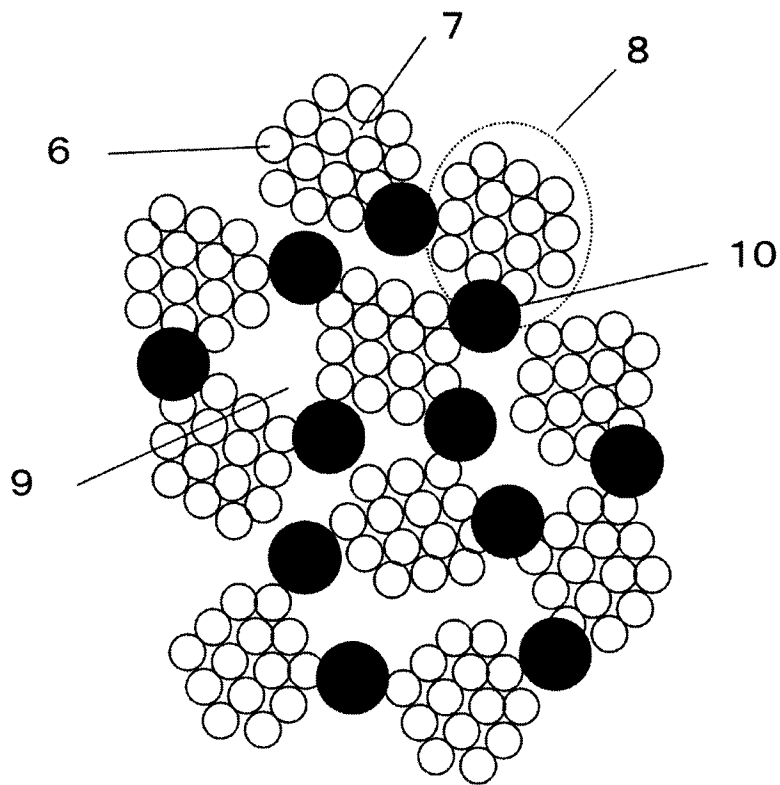
- [請求項11] 請求項9または10記載の超音波送受波器を用いた超音波流量計。
- [請求項12] 請求項9または10記載の超音波送受波器を備えた超音波流量計。
- [請求項13] 乾燥ゲル粒子と、水系溶媒に分散したエマルジョン樹脂を混合した分散液から、水系溶媒を除去し、熱処理を行って一体化する音響整合部材の製造方法。

[図1]



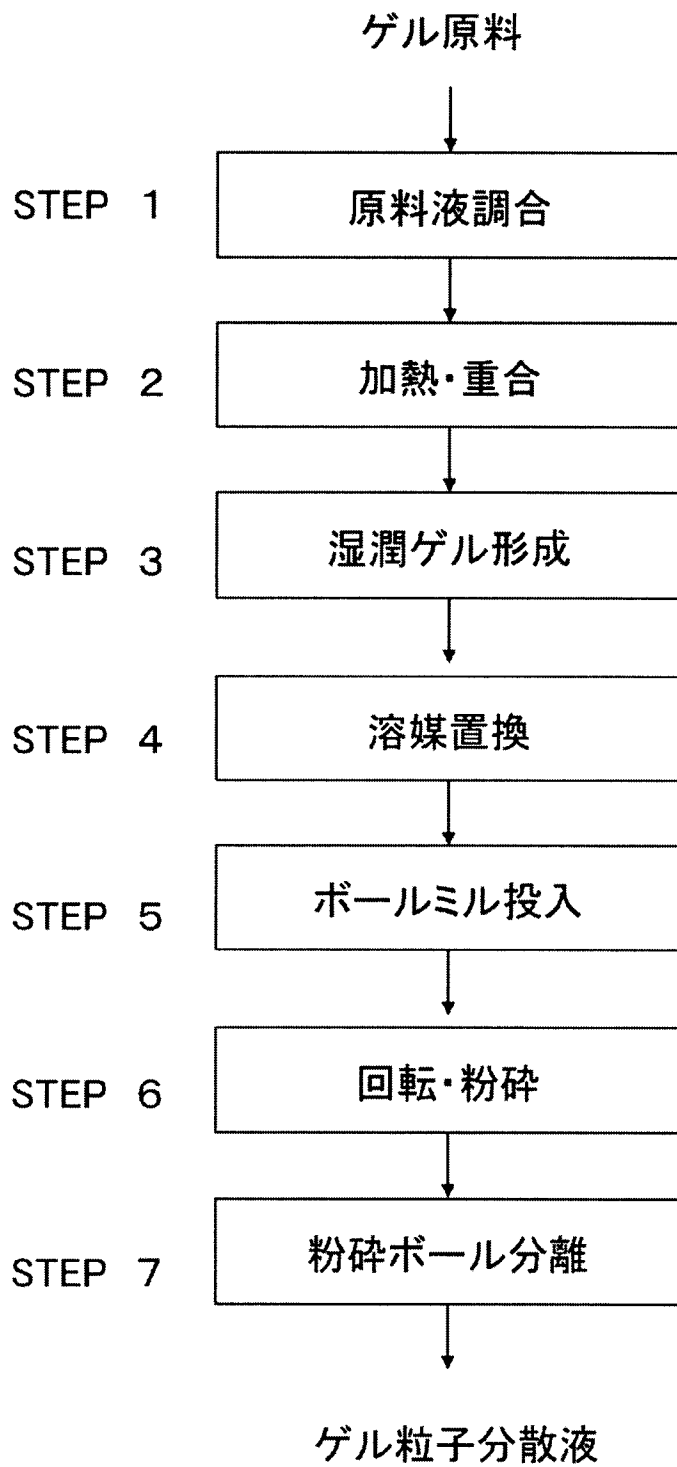
- 1 超音波送受波器
- 2 圧電体(電気機械変換素子)
- 3a, 3b 電極
- 4 音響整合部材
- 5 伝搬媒体

[図2]

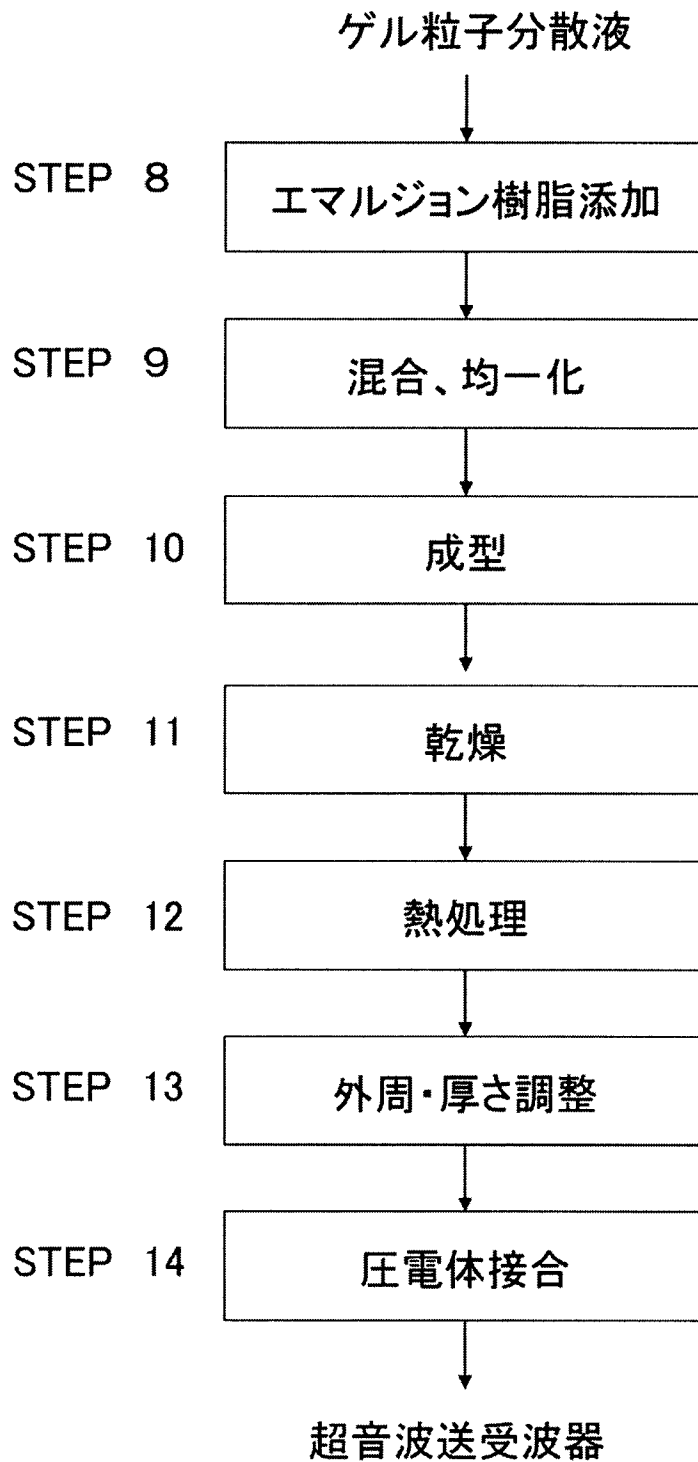


- 6 中実粒子
- 7 微細空孔
- 8 乾燥ゲル粒子
- 9 粒子間空隙
- 10 結合粒子

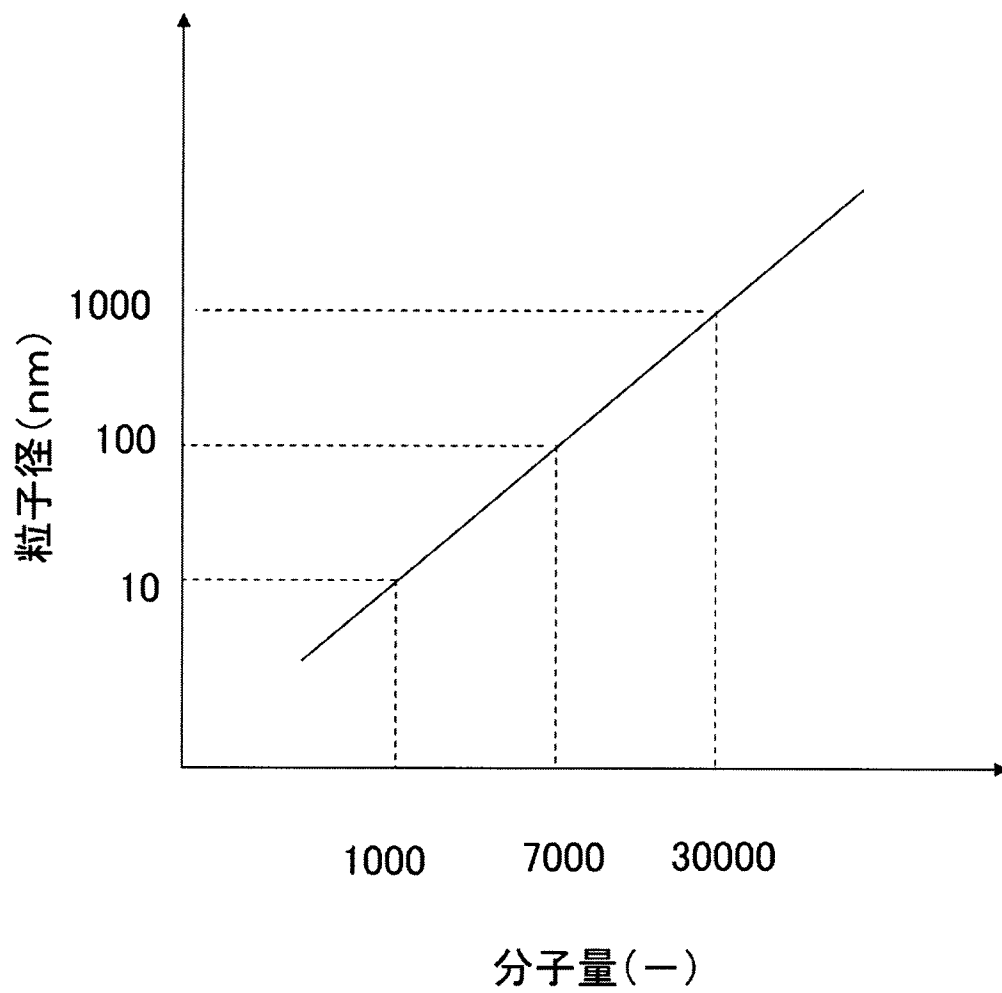
[図3]



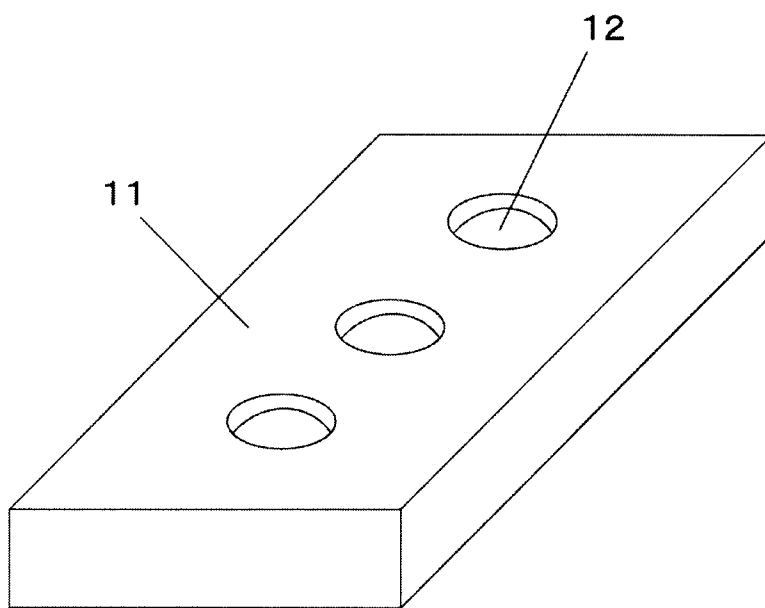
[図4]



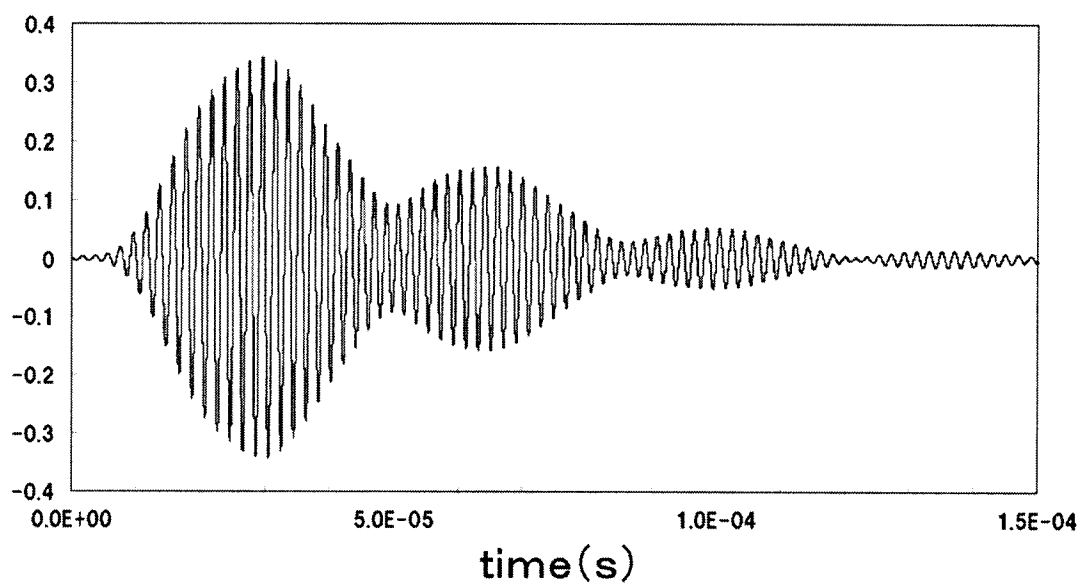
[図5]



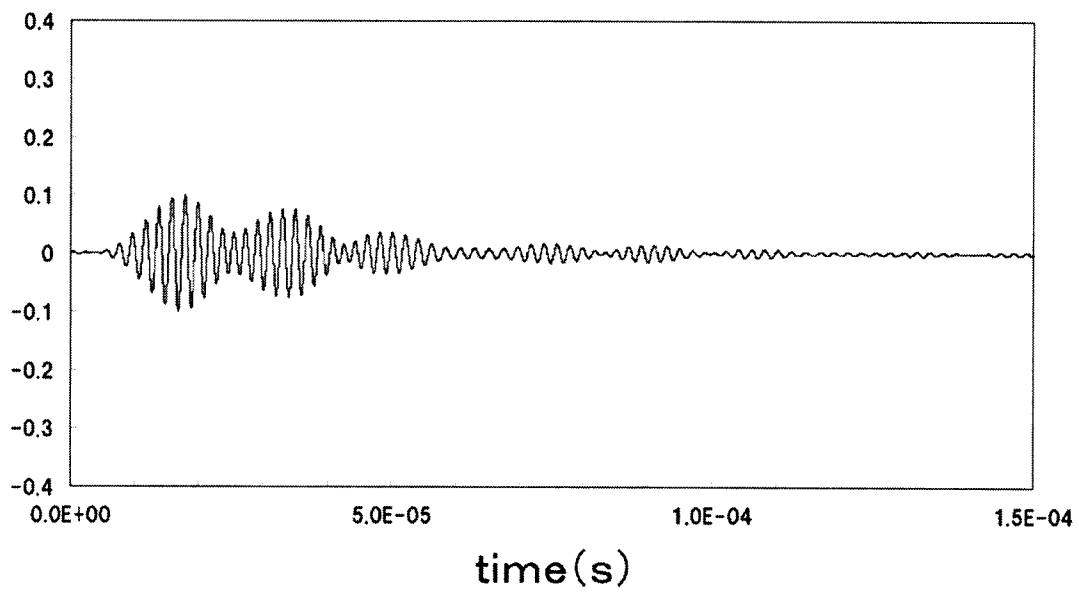
[図6]



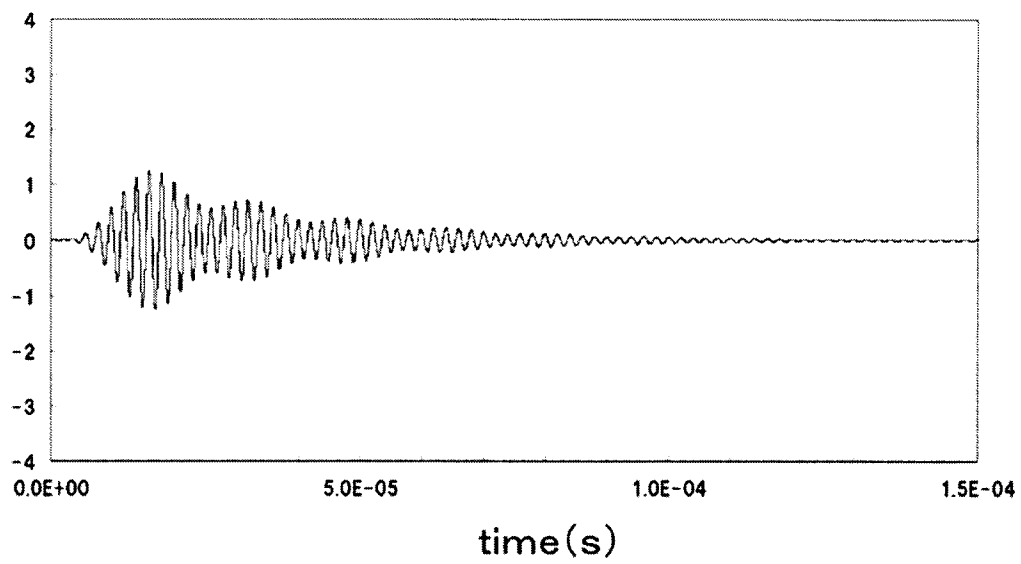
[図7A]



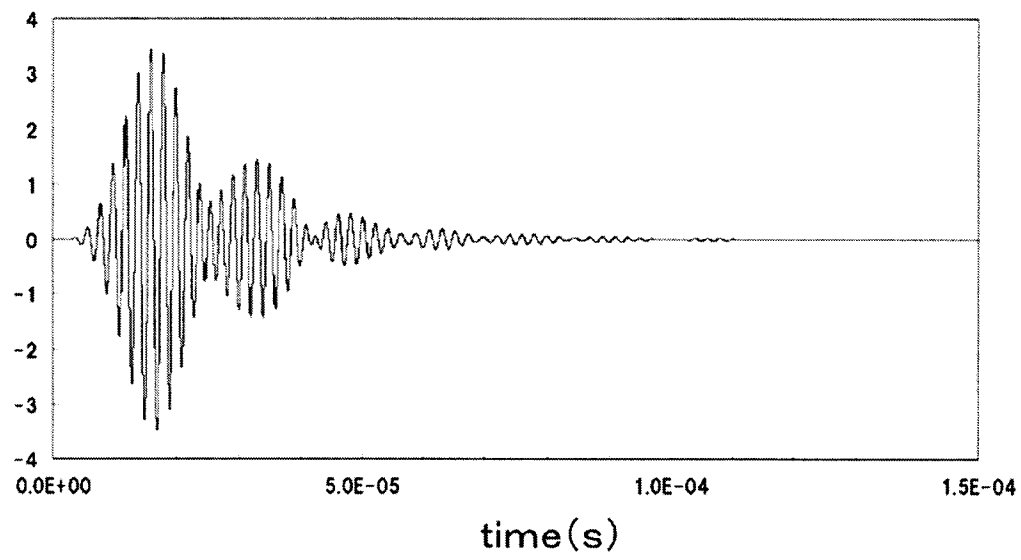
[図7B]



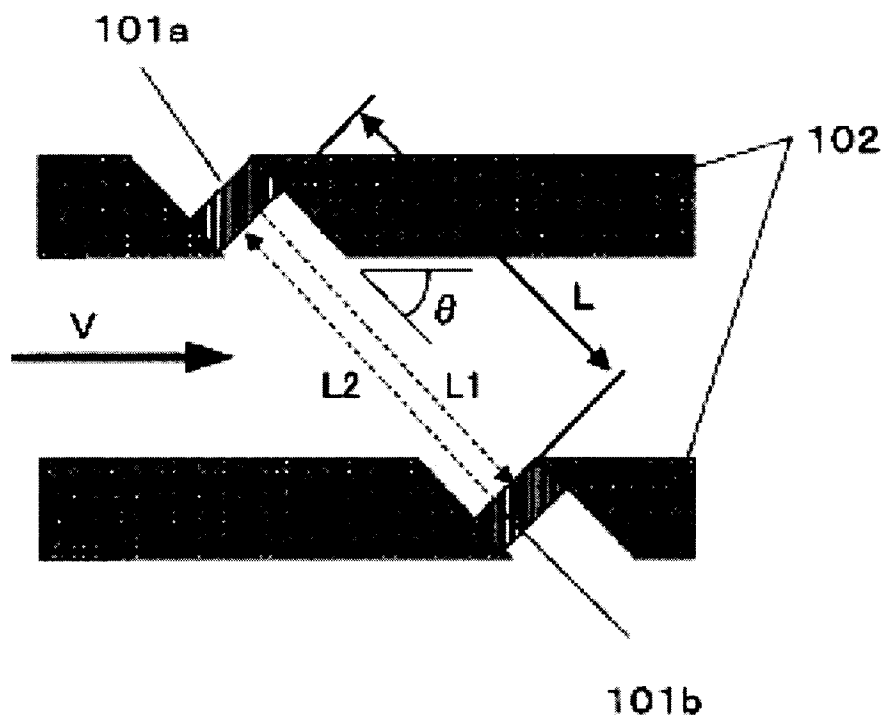
[図8A]



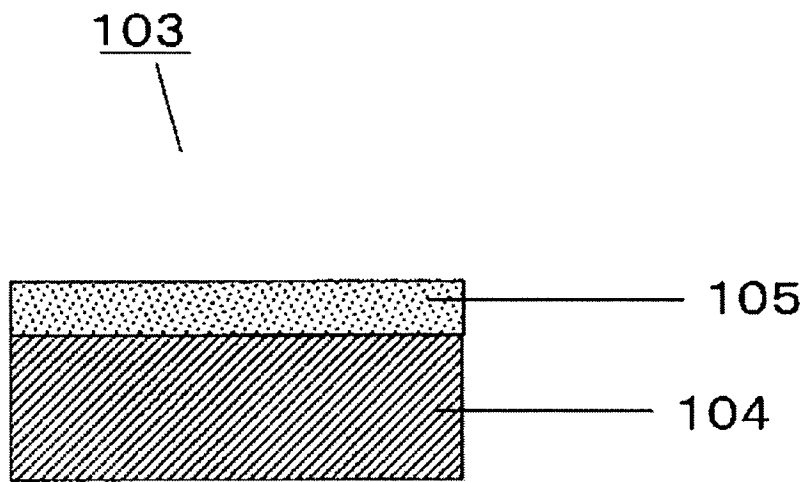
[図8B]



[図9]



[図10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/003892

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H04R17/00(2006.01)i, G01F1/66(2006.01)i, H04R31/00(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H04R17/00, G01F1/66, H04R31/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2003-158796 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 30 May 2003 (30.05.2003), entire text; all drawings (Family: none)	1-4, 6, 9-12 5, 8
X Y	WO 2003/064980 A1 (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 07 August 2003 (07.08.2003), entire text; all drawings & JP 2004-29038 A & JP 2004-85579 A & JP 2004-184423 A & US 2004/0113523 A1 & US 2004/0113522 A1 & US 2004/0124746 A1 & EP 1382943 A1 & EP 1416255 A1 & EP 1477778 A1 & WO 2003/064979 A1 & WO 2003/064981 A1 & CN 1522360 A & CN 1578900 A	1-4, 6, 7, 9-12 5, 8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
09 September, 2013 (09.09.13)

Date of mailing of the international search report
17 September, 2013 (17.09.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/003892

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2004-323752 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 18 November 2004 (18.11.2004), entire text; all drawings (Family: none)	13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/003892

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
See extra sheet.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/003892

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet(2)

It cannot be considered that, according to the method for manufacturing an acoustic matching member as set forth in claim 13, a starting material is necessarily converted into the acoustic matching member as set forth in claim 1, wherein dry gel particles have micropores therein and hold interparticle voids among the dry gel particles, binding particles that are present among the dry gel particles bind the dry gel particles together, and the average particle diameter of the binding particles is larger than the average size of the micropores of the dry gel particles but smaller than the average size of the interparticle voids of the dry gel particles. Thus, it does not appear that there is a relationship between claim 1 and claim 13 involving the same or corresponding special technical features.

Accordingly, claims are classified into two inventions each of which has a special technical feature indicated below.

(Invention 1) claims 1-12

An acoustic matching member comprising dry gel particles and binding particles, wherein the dry gel particles have micropores therein and hold interparticle voids among the dry gel particles, the binding particles that are present among the dry gel particles bind the dry gel particles together, and the average particle diameter of the binding particles is larger than the average size of the micropores of the dry gel particles but smaller than the average size of the interparticle voids of the dry gel particles.

(Invention 2) claim 13

A method for manufacturing an acoustic matching member, which comprises, from a dispersion prepared by mixing dry gel particles with an emulsion resin dispersed in an aqueous solvent, removing the aqueous solvent and then unifying the remaining matters by heating.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H04R17/00(2006.01)i, G01F1/66(2006.01)i, H04R31/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H04R17/00, G01F1/66, H04R31/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y	JP 2003-158796 A (松下電器産業株式会社) 2003.05.30, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-4, 6, 9-12 5, 8
X Y	WO 2003/064980 A1 (松下電器産業株式会社) 2003.08.07, 全文, 全図 & JP 2004-29038 A & JP 2004-85579 A & JP 2004-184423 A & US 2004/0113523 A1 & US 2004/0113522 A1 & US 2004/0124746 A1 & EP 1382943 A1 & EP 1416255 A1 & EP 1477778 A1 & WO 2003/064979 A1 & WO 2003/064981 A1 & CN 1522360 A & CN 1578900 A	1-4, 6, 7, 9-12 5, 8

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 9 . 0 9 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

1 7 . 0 9 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

5 Z

9 5 5 8

▲吉▼澤 雅博

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 5 9 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2004-323752 A (松下電器産業株式会社) 2004.11.18, 全文, 全図 (ファミリーなし)	13

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（P C T 17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってP C T 規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。
特別ページ参照。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

請求項 1 3 に記載された音響整合部材の製造方法により、原材料から請求項 1 に記載された、乾燥ゲル粒子は、内部に微細空孔を持つと共に、乾燥ゲル粒子間に粒子間空隙を保持し、結合粒子は、乾燥ゲル粒子間に存在して乾燥ゲル粒子同士を結合し、結合粒子の平均粒子径は、乾燥ゲル粒子の微細空孔の平均サイズより大きく、乾燥ゲル粒子の粒子間空隙の平均サイズより小さい音響整合部材への変化が必然的にもたらされるとは認められないので、請求項 1 と請求項 1 3 とは、同一の又は対応する特別な技術的特徴を有する関係にあるとは認められない。

そして、請求の範囲は、各々下記の特別な技術的特徴を有する 2 の発明に区分される。

(発明 1) 請求項 1 - 1 2

乾燥ゲル粒子と、結合粒子からなる音響整合部材であって、

前記乾燥ゲル粒子は、内部に微細空孔を持つと共に、前記乾燥ゲル粒子間に粒子間空隙を保持し、

前記結合粒子は、前記乾燥ゲル粒子間に存在して前記乾燥ゲル粒子同士を結合し、

前記結合粒子の平均粒子径は、前記乾燥ゲル粒子の前記微細空孔の平均サイズより大きく、前記乾燥ゲル粒子の前記粒子間空隙の平均サイズより小さい音響整合部材。

(発明 2) 請求項 1 3

乾燥ゲル粒子と、水系溶媒に分散したエマルジョン樹脂を混合した分散液から、水系溶媒を除去し、熱処理を行って一体化する音響整合部材の製造方法。