

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 14 日現在

機関番号：13903

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17485

研究課題名(和文)横波型弾性波の多重周回を用いた液体計測用パイプセンサの開発

研究課題名(英文) Fabrication of a liquid sensor consisting of a pipe structure by using multiple shear wave roundtrips

研究代表者

高柳 真司 (Takayanagi, Shinji)

名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：00735326

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：横波型弾性波は液体中に音波を漏洩せずに伝搬するため、導電率や粘度などが測定可能である。c軸が基板面に対して平行に配向したZnO膜は横波型弾性波の励振に適している。一方、球表面などに音波を多重周回させることで長距離伝搬が可能となり、液体の特性による音速や振幅の変化を高感度に検出できる。そこで本研究では、c軸平行ZnO膜を用いたプレート型センサにより液体の粘度や導電率の測定手法を検討した。次に、c軸平行ZnO膜を石英パイプ側面に成膜してパイプ型センサを作製し、多重周回波の伝搬特性を測定した。本研究で励振された横波型弾性波の多重周回により、粘度や導電率の高感度計測が期待される。

研究成果の概要(英文)： Shear horizontal (SH) acoustic wave sensors are suitable for liquid measurements, because the SH wave propagates at the liquid interface with small energy leakage. This sensor can detect the conductivity and viscosity. c-Axis parallel oriented ZnO film is a good candidate for the SH-wave excitation. Because these measurements were possible from SH-wave velocity changes, a highly sensitive sensor is expected if the long propagation path can be achieved with the multiple wave roundtrip system. In this study, a SH acoustic wave sensor consisting of c-axis parallel oriented ZnO film/silica glass planar substrate was fabricated. Then, viscosity and conductivity measurements were demonstrated. Next, a c-axis parallel oriented ZnO film/silica glass pipe structure sensor was fabricated, and the propagation characteristics of the multiple roundtrips were observed. New measurement systems of the liquid properties are expected with the multiple shear wave roundtrips.

研究分野：圧電薄膜・デバイス

キーワード：圧電デバイス 酸化亜鉛薄膜 弾性波 表面波 横波型 導電率センサ 粘度センサ

1. 研究開始当初の背景

(1) 圧電体から励振される弾性波をセンシングに利用した弾性波デバイスは小型化が容易であり、気体用、液体用の様々なマイクロセンサが報告されている。デバイス表面近傍を伝搬する弾性波(弾性表面波: SAW)を利用した場合、その音速や振幅の減衰は伝搬路に負荷した物質の電気的性質(導電率、誘電率)や機械的性質(粘度、密度)の影響を強く受ける。例えば、導電体を載せると圧電体表面が電気的に短絡され、その結果、表面波音速が数十 m/s 程度遅くなる。この音速の低下分を送波器から受波器までの表面波到達時間の差として検出することで、導電率を測定できる。

(2) 弾性表面波は、その変位方向により「レイリー型」と「横波(SH)型」の大きく2つに分類される。レイリー型は弾性表面波デバイスとして広く用いられているが、液体を負荷すると液体中に弾性波のエネルギーが漏洩してしまうため、液体用のセンサには適さない。一方で、横波型は液体負荷時にも弾性波のエネルギー漏洩なく伝搬するため、液体を測定対象にしたセンサが実現できる。これまで、横波型弾性表面波センサは単結晶圧電基板を用いて実現されてきた。

(3) 近年、山中らにより、レイリー型弾性表面波の球表面における多重周回を利用したボールセンサが考案されている。弾性表面波センサは送波から受波までの到達時間差や振幅減衰を利用するため、音速差が小さくても伝搬距離を長くすることで高感度になる。よって、球表面上の多重周回を利用すれば小型のセンサでも高感度化が実現できる。しかし、レイリー型の表面波を利用しているため、センシング対象は気体に限定されている。

(4) 研究代表者は、これまでにスパッタ成膜法における圧電薄膜の結晶配向制御について研究を行ってきた。そして、通常は形成するのが困難な圧電軸(c軸)が基板に対して平行に一方向配向したZnO膜(c軸平行ZnO膜)を形成することに成功した。このc軸平行膜は横波の励振に適しており、薄膜による横波型弾性表面波の励振も可能である。また、スパッタ成膜法を用いているため、曲面基板にも成膜できる。

2. 研究の目的

上記の背景を踏まえ、本研究ではまず図1(a)のように石英ガラスプレートにc軸平行ZnO膜を成膜し、横波型弾性波センサの測定系構築とセンサ特性の評価を行う。さらに、液体の性質を評価できる高感度なセンサとして、図1(b)のようなc軸平行ZnO膜を用いたパイプセンサを作製する。c軸平行ZnO膜を石英ガラスパイプに成膜することで横波

型弾性波を励振し、パイプ円周方向に多重周回させることで高感度な液体用センサを開発する。さらに、弾性波の減衰を小さくし周回数を増やすため、パイプの一部だけでなく、全面にc軸平行ZnO膜を形成する手法についても検討する。

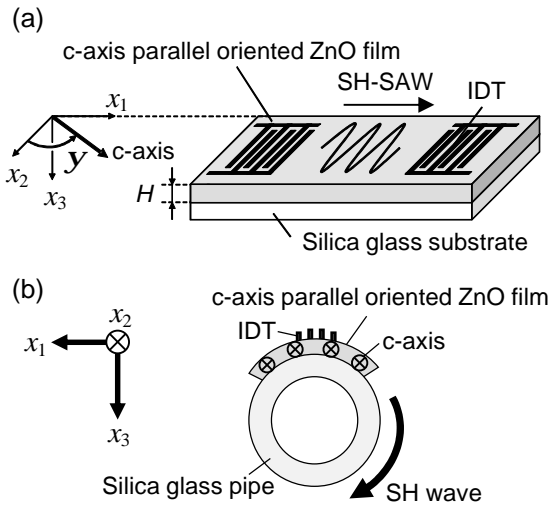


図1 c軸平行ZnO膜を用いた(a)プレートセンサと(b)パイプセンサ

3. 研究の方法

(1) 液体の粘度、導電率の測定系構築とプレートセンサの特性評価

図2のように、ファンクションジェネレータ、プリアンプ、オシロスコープを用いて、液体の粘度や導電率の測定系を構築した。液体試料の粘度や導電率の変化を、弾性波の到達時間の変化から検出する。プレートセンサを用いて横波型弾性表面波の励振を確認し、液体試料の粘度や導電率の変化と横波型弾性表面波の到達時間の関係性を測定した。

ここで、プレートセンサは、楕形電極(IDT)/c軸平行ZnO膜/石英ガラス基板の構造となっている。液体試料をセンサ上に留めるため、弾性波の伝搬路にシリコンゴムでプールを作製した。

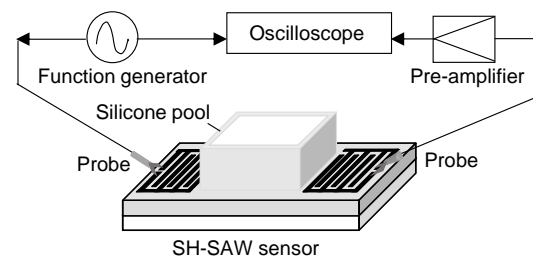


図2 液体の粘度、導電率測定系

(2) パイプセンサによる横波型弾性波の励振と多重周回の観測

図3に本実験で作製した試料の構造を示す。まず、試料Aとして石英ガラスパイプの一部にc軸平行ZnO膜と楕形電極を作製し、図4(a)のようにネットワークアナライザで弾性波の励振と多重周回を観測した。さらに、パ

イブを伝搬する波の特性を調べるため、別の2種類の試料を作製した。試料 A、B はパイプ構造で、試料 A では c 軸が管軸 (x_2) 方向、試料 B では c 軸が円周 (x_3) 方向である。試料 C は円柱構造で、c 軸が管軸 (x_2) 方向である。c 軸と IDT の電極指の関係から、試料 A と C は横波型の弾性波、試料 B は縦波型の弾性波の励振が予想される。なお、パイプセンサを用いた液体試料の測定には、プレートセンサで作製したプールが必要なく、図 4(b)、(c) のようにパイプ内外に液体を負荷した。

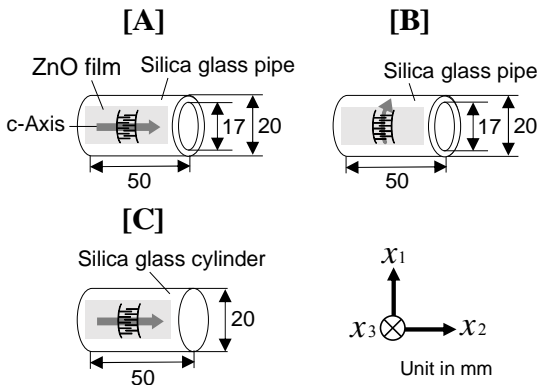


図 3 作製したパイプおよび円柱センサ

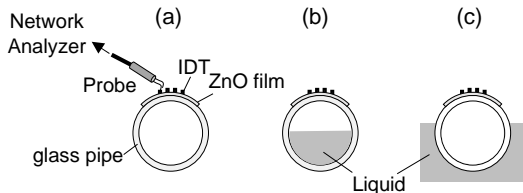


図 4 パイプセンサにおけるセンサ特性の測定 [(a)無負荷、(b)パイプ内部に液体負荷、(c)パイプ外部に液体負荷]

(3) パイプ全面への c 軸平行 ZnO 膜形成

パイプ一部のみの成膜では、膜の有無で不連続な部分ができしまい、弾性波の周回に悪影響を及ぼすと考えられる。この弾性波の減衰を小さくするため、石英ガラスパイプ全面に c 軸平行 ZnO 膜を形成した。成膜に用いたスパッタ装置の構造を図 5 に示す。パイプ全面に均一に成膜されるよう基板回転機構を導入し、モーターを取り付けることで回転速度を制御した。また、ZnO ターゲットの正面のみが成膜されるようにするため、パイプ下部にステンレス板でスリットを設けた。

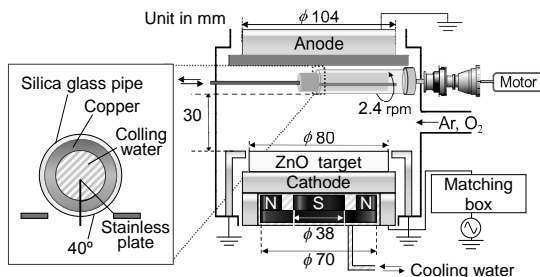


図 5 パイプ全面成膜時のスパッタ装置構造

4. 研究成果

(1) 液体の粘度、導電率の測定系構築とプレートセンサの特性評価

横波型弾性表面波の励振効率、膜厚と波長の比 H/λ や IDT の電極指と ZnO の c 軸とのなす角 ψ によって決まる。そこで、まず数値解析をし、励振効率を決める電気機械結合係数 K^2 が、 $H/\lambda=0.21$ 、 $\psi=55^\circ$ のときに最大になることが判った ($K^2=3.4\%$)。本実験で用いた IDT は、 $\lambda=23 \mu\text{m}$ 、開口長 6.6 m、伝搬路長 5 mm、電極指対数 54 対であり、解析結果をもとに H/λ 、 ψ を調整した。

プレートセンサの挿入損失 S_{21} をネットワークアナライザにより測定した。その結果、141 MHz において信号が観測された。センサの伝搬路に純水を負荷した際にも、エネルギーの減衰が小さいことから、横波型弾性表面波が励振されたと考えられる。よって、図 2 の液体測定系では、141 MHz で駆動してセンサとして使用する。

粘度測定の試料として純水 (0.89 mPa) または純水で希釈したグリセリン水溶液 (1.15 - 5.04 mPa, 6 種類) 0.2 mL をプールに滴下した。ここで、センサへの入力信号として、5.0 Vp-p, 141 MHz の正弦波 100 波のバースト信号を印加した。液体負荷時の観測時間波形を図 6(a) に示す。1.8-3.2 μs において、表面波の到達が確認された。その最大振幅付近の拡大図を図 6(b) に示す。液体の粘度が増加するにつれて、表面波の到達時間遅れ (Δt) が観測された。時間遅れより、純水負荷時を基準とした表面波の位相速度変化 Δv を算出した。粘度変化による Δv の変化の実験値と理論解析結果を図 7 に示す。理論値は液体の粘性減衰により徐々に遅れ、実験値も同様の傾向を示していることが判る。よって、c 軸平行配向 ZnO 膜を用いたプレートセンサから、液体の粘度を評価できることが示唆された。

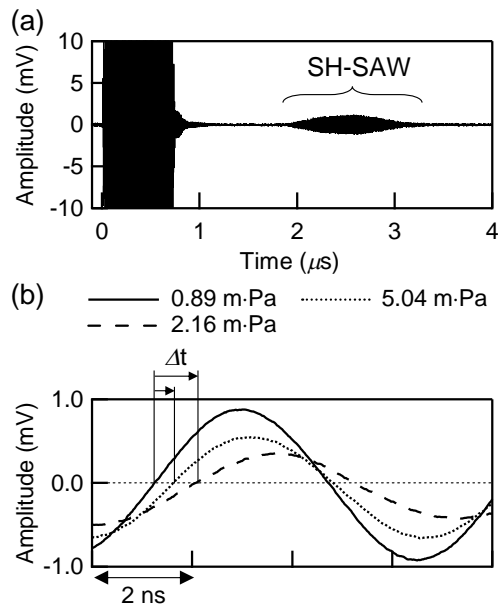


図 6 (a)液体負荷時のプレートセンサの時間応答波形と(b)その拡大図

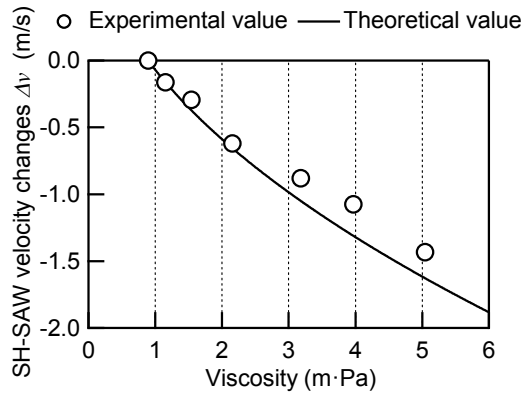


図7 試料液体の粘度変化による横波型弾性表面波の位相速度変化

同様に導電率測定として、濃度を変えた KCl 溶液を伝搬路に負荷した。液体試料として、純水 (0.98×10^{-6} S/m) または純水で希釈した KCl 溶液 (0.61×10^{-2} - 16.8 S/m、26 種類) 0.2 mL を用いた。KCl 溶液の導電率が増加するに従い、音波の到達時間遅れ (Δt) が観測された。時間遅れより、純水負荷時を基準とした SH-SAW の位相速度変化 Δv を算出した。導電率変化による Δv の変化の実験値と理論解析結果を図 8 に示す。弾性表面波の場合、伝搬路に導電物質を乗せると表層の内部電界が短絡され、表面波の速度が遅くなる。図 8 の理論値より、液体の導電率が 0.1 S/m までは、ZnO 膜の圧電性が保持され位相速度は一定である。そして、0.1 - 10 S/m の範囲では、電解質溶液により表層の内部電界が徐々に打ち消されて、位相速度は遅くなる。10 S/m 以降は、圧電性が完全に打ち消されて、位相速度は伝搬路が短絡時の値で一定となる。実験より得られた表面波の位相速度変化は、理論値と似た傾向を示し、プレートセンサを用いて導電率も評価できることが判った。

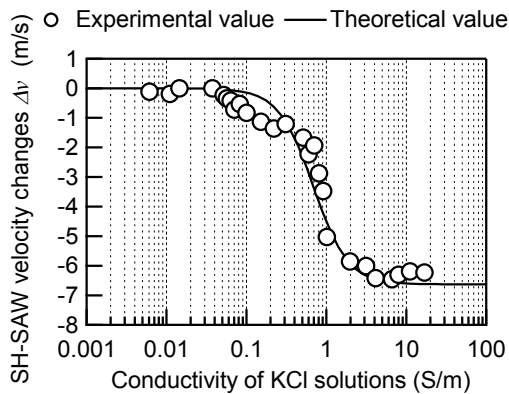


図8 試料液体の導電率変化による横波型弾性表面波の位相速度変化

(2) パイプセンサによる横波型弾性波の励振と多重周回の観測

石英ガラスパイプ上の一部に成膜した ZnO 膜を極点 X 線回折法により評価した結果、試料 A、C では c 軸が管軸と平行、試料 B で

は c 軸が円周方向と平行になっていることが確認された。

次に、ZnO 膜上に送受波一体型の IDT を作製した。そして、ネットワークアナライザにより試料の反射係数 S_{11} を測定し、逆フーリエ変換により時間応答波形を取得した。試料 A の時間応答波形を図 9(a) に示す。図 9(a) より、パイプ上を音波が 4 回周回していることが確認できた。また、1 周目の応答信号のみをフーリエ変換することで取得した周波数特性を図 9(b) に示す。図 9(b) より 1 度目の周回波は、132 MHz と 160-350 MHz の 2 つの周波数成分からなることが確認された。

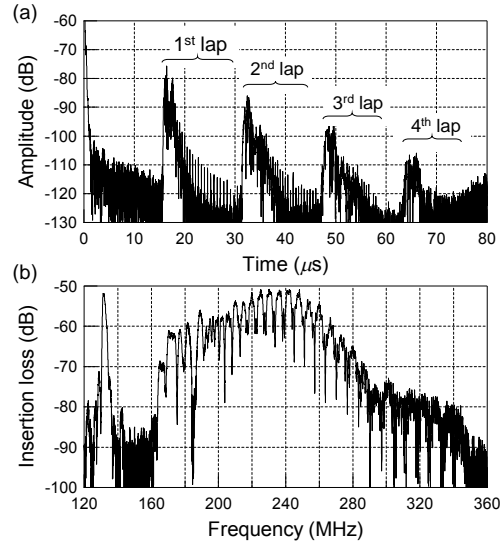


図9 パイプセンサの(a)時間応答波形と(b)1周目周回波の周波数特性

次に図 4(b)、4(c)のように、試料 A のパイプ内部または外部が半分浸るぐらいの純水を負荷した。132、236 MHz 付近における純水負荷時の 1 周目周回波の周波数特性を図 10 に示す。パイプ内部に純水を負荷した場合、挿入損失は 131.3 MHz で 0.6 dB、236.0 MHz で 1.1 dB 増加した。またパイプ外部に純水を負荷した場合、挿入損失は 131.3 MHz で 6.7 dB、236.0 MHz で 0.4 dB 増加した。

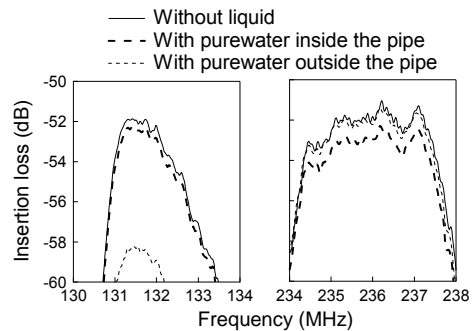


図10 パイプセンサ外部および内部に純水を負荷した際の1周目周回波の周波数特性

さらに、この周回波が液体の特性によって変化するかを観測するため、パイプ内部また

は外部にグリセリン水溶液(20 wt.%)を負荷した。132、236 MHz 付近におけるグリセリン水溶液負荷時の1周目周回波の周波数特性を図11に示す。パイプ内部にグリセリン水溶液を負荷した場合、挿入損失は131.3 MHzで1.8 dB、236.0 MHzで2.5 dB増加した。またパイプ外部にグリセリン水溶液を負荷した場合、挿入損失は131.3 MHzで10.5 dB、236.0 MHzで1.5 dB増加した。これらの値は、純水を負荷した時に比べ大きい。すなわち、パイプの内部または外部に負荷された粘性溶液の影響を受け、周回波の振幅が変化している。以上より、パイプ内部または外部で液体の特性評価が可能な高精度センサを開発できる可能性があることが示唆された。

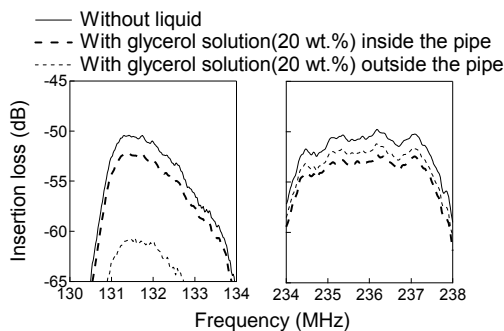


図12 パイプセンサ外部および内部にグリセリン水溶液(20 wt.%)を負荷した際の1周目周回波の周波数特性

次に試料Aと同様の手法で、試料Bの時間応答波形を取得したところ、2回の周回が観測された。また、1周目の周回波は117 MHzと180-250 MHzの周波数成分から成ることが確認できた。そして、試料Bのパイプ内部または外部に純水を負荷し、挿入損失を測定した。その結果、117 MHzの成分は、パイプ内部に純水を負荷した場合には挿入損失が変化しなかった。しかし、パイプ外部に純水を負荷した場合は、損失が非常に大きく信号を観測できなくなった。以上より、117 MHzの成分はパイプ外部を周回する Rayleigh SAW であるといえる。一方で、180-250 MHzの周波数成分は、パイプ内部、外部ともに純水を負荷すると10 dB以上挿入損失が増加した。よって、パイプ内側と外側を反射し、液中にエネルギーを漏洩しながら伝搬する Lamb 波であると考えられる。これに対し、試料Aでは液体の負荷による損失の少なく、当初の計画通り横波型弾性波が励振されたと考えられる。

続いて、試料Cについても同様の測定を行った。その結果、1周目の周回波の周波数特性では図9(b)のような160-350 MHzの成分は観測されなかった。また、136 MHzと202 MHzに信号が観測されたが、-70 dB以下の非常に大きな挿入損失となった。試料Cは円柱構造のため、パイプ内側と外側を反射して進む弾性波は存在できない。さらに、挿入損失が大きいことから、パイプ外周を伝搬する表

面波成分も少ない。よって、試料Aのパイプ構造でも表面波成分が少ないことが示唆された。

以上のことから、試料Aを伝搬した波は横波型弾性表面波ではなく、パイプ外側と内側で反射しながら伝わる横波型板波であると推定される。当初の研究背景、研究目的では、表面波によるセンシングを考えていたが、板波でもパイプ外側と内側の境界の影響を受けるため、負荷した液体の特性を表面波と同様に測定することができる。そこで、プレートセンサで検討した到達時間遅れ(Δt)の測定について、図2の測定系を用いて試料Aのパイプセンサでも検討を行った。しかしながら、ネットワークアナライザに対してオシロスコープはダイナミックレンジが小さく、図6(b)のように Δt を観測するのは困難であった。したがって、パイプセンサにおいて、より少ない損失で弾性波を発生、伝搬させる必要がある。

(3) パイプ全面へのc軸平行ZnO膜形成

少ない損失で弾性波を発生、伝搬させるために、パイプの一部だけでなく、パイプ全面へのc軸平行ZnO膜形成を試みた。図5の成膜装置を利用して、パイプ全面に作製したZnO膜のX線回折パターンを図13に示す。試料を45°ごと回転させてX線回折パターンを測定した結果、どの位置においてもc軸が管軸と平行になる(11-20)面のピークが強く観測された。よって、c軸平行ZnO膜がパイプ全面で形成されたといえる。

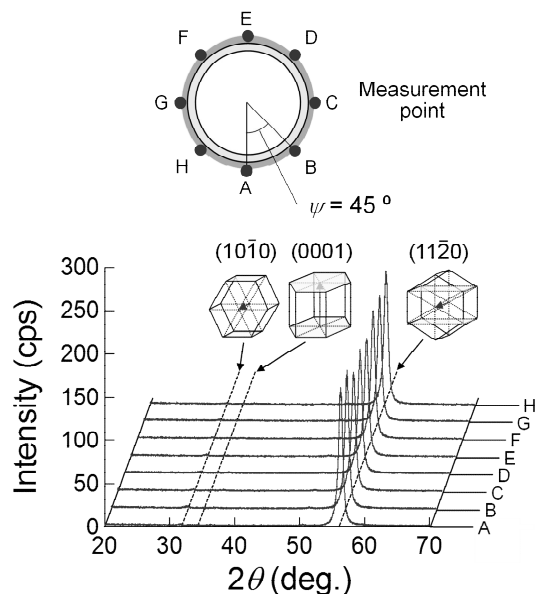


図13 パイプ全面に成膜したZnO膜のX線回折パターン

続いて、c軸の方向のばらつきを評価するため、(11-20)面の走査ロックンクカーブ測定を行った。ロックンクカーブの半値幅は6.8°で、一部成膜の際の半値幅3.3°には劣る結果となった。膜厚を全面で4 μmとするため、今回は放電電力100 W、パイプ回転速度2.4 rpm

で36時間の成膜を行った。現在、パイプ回転速度を変化させることでロッキングカーブ半値幅が増減し、配向性に影響を及ぼすことがわかっている。したがって、今後はパイプ回転速度など成膜条件の検討を行い、一部成膜の際と同等の配向性を持つc軸平行ZnO膜の形成を目指す必要がある。また、パイプ側面に10 μm程度の電極パターンを作製する際、プレートセンサと同様のフォトリソグラフィプロセスでは歩留まりが悪い。特に、パイプ直径を20 mmから小さくするにつれて、電極パターン作製の歩留まりが悪くなった。そのため、レーザ直接描画装置による露光などプロセスの改善についても検討している。

<引用文献>

J. Kondoh and S. Shiokawa, *Sensors Update*, **6**, 60 (1999).

K. Yamanaka et al., *Appl. Phys. Lett.*, **76**, 2797 (2000).

S. Takayanagi et al., *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 232902 (2013).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計1件)

日山 彰子、柳谷 隆彦、高柳 真司、松川 真美、c軸平行配向ZnO膜によるSH-SAWを用いた液体の粘度・導電率測定、信学技報、査読無、Vol. 115、2015、pp. 19-24

[学会発表](計7件)

S. Takayanagi, "Liquid loading characteristics of multiple SH-wave roundtrip in c-axis parallel oriented ZnO film/silica glass pipe," *5th Joint Meeting of the Acoustical Society of America and Acoustical Society of Japan*, Nov. 28-Dec. 2, 2016, Honolulu (USA).

K. Mori, "Improvement of electromechanical properties in c-axis parallel oriented ZnO film by RF magnetron sputtering with negative ion bombardment," *2016 IEEE International Ultrasonics Symp.*, Sep. 18-21, 2016, Tours (France).

S. Hiyama, "Conductivity measurement of liquid by SH-SAW sensor consisting of IDT/(11-20) oriented ZnO film/silica glass substrate," *2015 IEEE International Ultrasonics Symp.*, Oct. 21-24, 2015, Taipei (Taiwan).

S. Hiyama, "Multiple SH wave roundtrip type liquid sensor of pipe structure with c-axis parallel oriented ZnO film," *2015 International Congress on Ultrasonics*, May 10-14, 2015, Metz (France).

[その他]

名古屋工業大学 研究者データベースシステム

http://researcher.nitech.ac.jp/html/100000543_ja.html?l=ja&k=%E9%AB%98%E6%9F%B3%E7%9C%9F%E5%8F%B8&o=title&p=1

同志社大学理工学部 超音波エレクトロニクス・応用計測研究室ホームページ(平成27年度までの所属研究室)

<http://use.doshisha.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

高柳 真司 (TAKAYANAGI, Shinji)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号：00735326

(2)研究協力者

盛 一馬 (MORI, Kazuma)

日山 彰子 (HIYAMA, Shoko)