

令和 6 年 5 月 1 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18971

研究課題名（和文）無線・無給電振動子水素ガスセンサーの開発

研究課題名（英文）Development of wireless and battery-less oscillator hydrogen-gas sensor

研究代表者

荻 博次（Ogi, Hirotsugu）

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：90252626

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：水晶振動子センサーを革新的に進化させ、遠隔かつ無給電状態で発振させる技術を確認し、長距離における無線・無給電の水素ガスセンサー検出システムを確立した。MEMSセンサーチップを改良することにより、高いQ値を有する振動子センサーを開発し、振動子センサーを駆動する送受信アンテナの高効率化および指向性の向上を実施することにより、長距離においても十分高いS/N比により振動子の共振周波数を計測することが可能となった。さらに、水素ガスの検出能力を高めるための水晶上に成膜するパラジウム系薄膜の成膜条件や添加元素種の系統的探求により、20mの距離において水素ガスの検出を実施することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

カーボンニュートラルの実現に向けて世界中で水素社会の到来が確実視されており、関連技術の進化が要求されている。脱炭素エネルギーとしての水素の重要性は記述するまでもないが、甚大な爆発を引き起こす危険性も広く認識されており、水素ガスセンサーの高性能化は国際的にも重要な課題である。高感度化だけでなく、水素プラント等における無酸素環境での計測や（現在主流の半導体型センサーには酸素が必須）、原子力発電所などが立ち入ることのできない箇所での無給電計測については、特に重要な課題である。本研究では、20 m以上の距離における無線・無給電振動子センシング技術を確認しており、安全な水素社会への貢献が見込まれる。

研究成果の概要（英文）：By developing the innovative MEMS quartz-crystal resonator, a remote and battery-less oscillation technology has been established for a long-range wireless and hydrogen-gas detection. By improving the efficiency and directivity of the transmitter/receiver antenna, the resonant frequency of the resonator can be measured with a sufficiently high signal-to-noise ratio even over long distances. Furthermore, by exploring the deposition conditions of the palladium-based thin film deposited on the quartz crystal to enhance the detection sensitivity for hydrogen gas, detecting hydrogen has been achieved at a distance of 20 meters or more.

研究分野：超音波工学

キーワード：QCM 水晶振動子 無線 無電極 水素 無給電

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

カーボンニュートラルの実現に向けて世界中で水素社会の到来が確実視されており、関連技術の進化が要求されている。水素は、高い燃焼エネルギーと無害な副生成物(水)という性質から持続可能なクリーンエネルギーとして注目を集めており、水素社会の実現に向けて関連技術の研究開発が進んでいる。しかし、水素は可燃性ガスであり、空気中で 4-75%の体積比において爆発する危険性がある。また、様々な物質に浸透・拡散して漏洩しやすく、危険性が高いガスであるため、安全に利用するためには水素の漏洩を正確かつ迅速に検知する必要がある。そのため、水素ガスセンサーの高性能化は国際的にも重要な課題である。高感度化だけではなく、水素プラント等における無酸素環境での計測や(現在主流の半導体型センサーには酸素が必須)、原子力発電所など人が立ち入ることのできない箇所での無給電(バッテリーレス)計測については、特に重要な課題である。

2. 研究の目的

本研究では、水晶振動子センサーを進化させ、20メートル以上の距離において、無線かつ無給電状態でその振動を励起・検出することのできる振動子センシング技術を確立することを第1の目的とする。そして、この原理を利用して、半永久使用可能な水素ガスセンサーシステムを開発することを第2の目的とする。無線・無給電の水素ガスセンサーシステムは世界初となる。

3. 研究の方法

水晶は三方晶系の対称性を成す圧電体であり、安価で振動のQ値が高く、特定の結晶方位の共振周波数が温度安定性に極めて優れていることから、これまでも質量検出用のセンサーとして利用されてきた。通常の水晶振動子センサーでは、薄い板形状の水晶振動子の両面に厚さ数百nmの貴金属電極を成膜し、これらに配線を物理的に接続して板厚方向に振動電場を励起することにより、発振させていた。しかし電極や配線は水晶に比べてかなり重く、動的質量が増加してしまい、振動子センサーの質量感度を低下させるという問題があった。そこで本研究では、振動子センサーの感度を飛躍的に向上させるために、電極の代わりにアンテナを使用して、無線・無電極状態での水晶振動子を発振させる。そして、UHF帯の電磁波を用いることで、10メートルを超える距離において水晶振動子の共振周波数を計測する。

無線の水晶振動子は、6mm角のマイクロ流路を有するチップ内に設置してパッケージする。マイクロ流路はMEMSプロセスにより作製する[1]。マイクロ流路の内面に励起アンテナが存在する構造を考案し、これが外面の電極とマイクロピラーにより接続しており、水晶の発振効率を飛躍的に上げることができた。

水素ガスの検出原理は以下の通りである。水晶振動子の片面に成膜したパラジウム薄膜が水素ガスを吸蔵することにより膨張し、振動子に曲げ変形を起し、結果、形状変化により共振周波数が変化する。そして、吸蔵される水素ガスの量は、水素ガスの環境濃度(分圧)に依存することから、共振周波数の変化を計測することにより、水素ガスの濃度が評価できる[2,3]。

室温で水素ガスを効率よく吸蔵するための薄膜の成膜条件を、成膜時の圧力やパラジウムと混合する貴金属元素種等を変化させて検討し、最適の薄膜を成膜する条件を見出した。また、遠隔における水晶振動子の発振効率を向上させるために、また、振動子センサーを駆動する送受信アンテナの高効率化および指向性の向上を目指して、八木式アンテナをベースとし、発振周波数にマッチングしたアンテナを開発し、ダイプレクサーを用いることにより、1つのアンテナにおいて指向性の高い送受信を可能とした。この結果、20メートルを隔てた距離においても、十分高いS/N比により、振動子の共振周波数を計測することが可能となった。さらに、振動子側のアンテナの小型化についても検討した。通常の放射型のアンテナだけでなく、渦巻き型アンテナ、樹脂基板上に作製した蛇行アンテナ等について検討し、接続方法や設置方法等による効率が大きく変化することを確認した。

4. 研究成果

アンテナ駆動は、以下の手順で行なった。シンセサイザからの連続波出力をゲートアンプでパルス波として増幅し、アンテナに接続して電磁波を発した。八木型アンテナにより電磁波は振動子近辺に集束し、振動子の振動を励起する。駆動後、励起を停止しても、振動子の共振は一定時間継続し、その間、振動子から電磁波が発せられる。この電磁波を同じ八木アンテナにおいて受信する。受信信号にはアナログのスーパーヘテロダイン処理を施し、励起信号と同じ周波数成分の信号振幅を抽出し、デジタイザを介してPCに送る。この操作を、励起信号の周波数をスイープして実施することで、振動子の共振周波数において、高い振動振幅を得ることができ、共振周波数を遠隔かつバッテリーを使用せずに測定することができる。

水晶振動子には、片側の面にパラジウムが成膜されており、水素ガスに晒されると、パラジウム薄膜内に水素が侵入し、パラジウムの体積が増加して、振動子が曲がる。これにより水素ガスを検出する(図1)。

この手法により、20メートル隔てた位置にセンサーを設置し、水素ガスにさらした実験を実施したところ、水素ガスにより共振周波数が有意に変化し、遠隔かつ無給電状態において半永久的に水素ガスを検出することが可能であることがわかった。

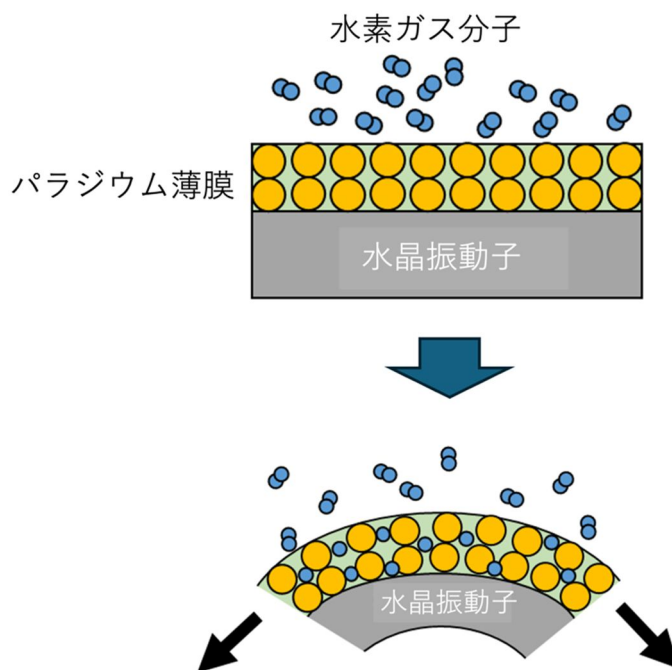


図1 水素ガスを吸着したことによる振動子の変形

引用文献

- [1] L. Zhou, F. Kato, M. Iijima, T. Nonaka, S. Kuroda, and H. Ogi, "Mass-fabrication scheme of highly sensitive wireless electrodeless MEMS QCM biosensor with antennas on inner walls of microchannel", *Anal. Chem.* 95, 13, 5507-5513 (2023).
- [2] L. Zhou, N. Nakamura, A. Nagakubo, and H. Ogi, "Highly sensitive hydrogen detection using curvature change of wireless-electrodeless quartz resonators", *Appl. Phys. Lett.* 115, 171901 (2019).
- [3] L. Zhou, F. Kato, N. Nakamura, Y. Oshikane, A. Nagakubo, and H. Ogi, "MEMS hydrogen gas sensor with wireless quartz crystal resonator", *Sens. Actuat. B.* 334, 129651 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Noritsugu Kanto, Zhou Lianjie, Fumihito Kato, Akira Nagakubo, and Hirotsugu Ogi	4. 巻 43
2. 論文標題 Development of Battery-Free Long-Range Wireless Hydrogen-Gas Sensor Using High-Frequency QCM Resonator	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proceedings of Symposium on Ultrasonic Electronics	6. 最初と最後の頁 1Pa3-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ogi Hirotsugu	4. 巻 63
2. 論文標題 Ultrasensitive wireless quartz crystal microbalance bio/gas sensors	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 040802 ~ 040802
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ad308e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Noritsugu Kanto, Zhou Lianjie, Fumihito Kato, Akira Nagakubo, and Hirotsugu Ogi
2. 発表標題 Development of Battery-Free Long-Range Wireless Hydrogen-Gas Sensor Using High-Frequency QCM Resonator
3. 学会等名 The 43rd Symposium on Ultrasonic Electronics（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hirotsugu Ogi
2. 発表標題 Ultrasensitive wireless quartz crystal microbalance bio/gas sensors
3. 学会等名 The 44th Symposium on Ultrasonic Electronics（USE2023）（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------