

令和 2 年 6 月 28 日現在

機関番号：32657

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2015～2018

課題番号：15H03889

研究課題名（和文）音響特性が未知の物質の音速と膜厚の同時計測を可能とする次世代音響共鳴顕微鏡

研究課題名（英文）Development of next generation acoustic resonance microscope which can measure sound velocity and thickness of thin film simultaneously

研究代表者

松谷 巖（Matsuya, Iwao）

東京電機大学・理工学部・准教授

研究者番号：00514465

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 10,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、音響共鳴現象を利用した周波数解析と反射超音波の時間計測を組み合わせることで、音速と膜厚の同時計測を可能にする方法を提案した。エポキシ樹脂薄膜の膜厚計測から、本手法で得られた膜厚はレーザー顕微鏡による断面観察結果と非常に良い一致を見せた。音響特性が均一ではなく、なおかつ音速が未知である導電性高分子薄膜やヒトiPS細胞のような計測対象であっても、溶液中における音速と膜厚の同時計測によってその厚さが計測可能であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

バイオ燃料電池などに利用されている高分子薄膜は繊維状に合成された高分子によって形成されるため、その機械的な特性や音響特性が不均一であり、その厚さを合成中に計測することは極めて難しい。それに加えて、合成後に高分子の溶液から取り出すと、空気中では厚さや音響特性が変化してしまう。本研究では、音響共鳴法と超音波パルスエコー計測を組み合わせ、液中における音速と膜厚の同時計測を実現した。音速が未知である薄膜材料であっても、溶液中における音速と膜厚の同時計測によってその厚さが計測可能であることを示した。

研究成果の概要（英文）：In this work, a new method of simultaneously determining the thickness and ultrasound velocity of a material whose mechanical and acoustic properties are inhomogeneous and unknown supposing a conducting polymer thin film of a biofuel cell is presented. The thicknesses and the ultrasound velocities of the epoxy and the P3MT thin film on the metal substrate in the water were measured by the proposed method experimentally. The thicknesses of the epoxy and the P3MT thin films agreed well with a reference measured by laser microscope. These results indicate that the thickness of not only the epoxy, whose characteristics seem almost uniform, and the conducting polymer, whose mechanical and acoustic properties are inhomogeneous in the solution, can be precisely evaluated using the proposed method.

研究分野：計測工学、機械要素

キーワード：超音波 音響共鳴法 膜厚計測

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

導電性高分子は、Li イオン電池やバイオ燃料電池の電極等に應用されており、現代の有機エレクトロニクスに必須の材料である。この材料は、製造制御性の観点から電解重合による成膜中の膜厚を計測する必要がある。一方、未来の再生医療や毒性試験の実現が期待される各種万能細胞は、細胞同士の接触（近接）や水溶性分泌物による（遠隔）相互作用の影響を受けるため、細胞の状態が、集合形状や密度に大きく依存すると知られている。従って、生命現象の実態を解明するうえで、細胞の積層状態（厚さ）を正確に知る必要がある。これらの厚さ計測に対する要望は、一見、対象が全く異なるように思われる。しかし、液中に存在させ続けなければならないこと、音響特性（密度、音速、音響インピーダンス）が不均一かつ時間的に変化すること、 μm オーダーでの計測分解能を要求されることに共通の特徴がある。従来の膜厚測定法として、エリプソメータや触針式膜厚計、SEM や共焦点顕微鏡での断面観察等が挙げられるが、非接触・非破壊・非侵襲での外形の厚み計測を実現することは困難であった。また、東北大学では超音波の音響共鳴現象を利用した薄膜の非破壊計測を実現したが（音響共鳴顕微鏡）、物質固有の音速値が既知であることが必要であるため、質的に不均一な物質に適用できない。そこで、本研究では、音響特性が未知の物質を対象として、音速と厚さの同時計測を可能とする次世代の音響共鳴顕微鏡を開発し、高分子薄膜や細胞の厚さを実測することを通して新たな知見を得ることを目的とする。

2. 研究の目的

導電性高分子膜は電解重合で形成されるが、その膜厚を成膜中に計測できれば、バイオ燃料電池等の、有機電子デバイスの製造性の向上に寄与できる。一方、細胞の積層状態（厚さ）を正確に計測できれば、細胞と外界との相互作用や刺激に対する細胞機能を解明できる可能性がある。これらの計測対象は、液中に存在し、音響特性が不均一かつ時間的に変動する点に特徴がある。また、数十 μm の厚さが想定されるため、 μm オーダーの分解能が要求される。従来技術である音響共鳴顕微鏡は、超音波を利用して膜厚の非破壊計測が可能であるものの、音速が既知であることが必須であるため、上記対象物の計測は不可能であった。従来の膜厚測定法として、エリプソメータや触針式膜厚計、渦電流式膜厚計、SEM や共焦点顕微鏡での断面観察等が挙げられるが、非接触・非破壊・非侵襲での外形の厚さ計測を実現することは困難である。例えば、細胞の厚さを計測するためには、ホルマリン等で一旦細胞を死滅させてからの計測となってしまうため、液中における生きたままの計測は実現できていない。

超音波を利用した非接触・非破壊による膜厚計測技術として、伝播する超音波の音響共鳴現象を利用した高精度な膜厚計測方法が報告されている(3), (4)。また、複数の超音波経路における超音波の伝播時間計測から、薄膜の音速と膜厚を同時に計測する方法が提案されている(5)~(7)。しかしながら、音響共鳴現象による膜厚計測では、物質固有の音速値が既知であることが必要であるため、質的に不均一な物質には適用できない事が課題である。また、複数の超音波経路を用いた方法では、0.1 mm 程度の薄膜しか計測例が無い場合、計測分解能の向上も検討する必要がある。そこで本研究では、超音波の周波数解析と時間計測を組み合わせることで、液中において音速と厚さの同時計測を可能とする、次世代の音響共鳴顕微鏡を開発する。また、上記対象物の実測を通して、学術的に新しい知見を得る。

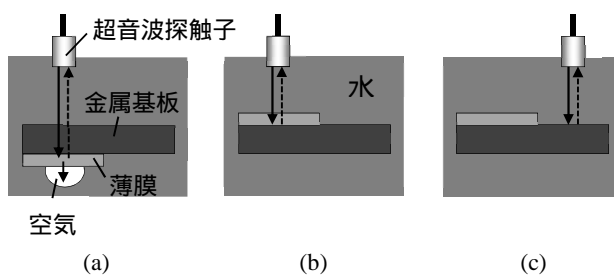


図1 音速と膜厚の同時計測方法

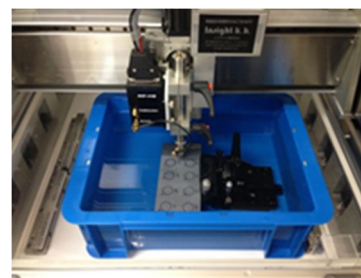


図2 超音波画像処理装置と試験片

3. 研究の方法

図1に音速と膜厚の同時計測方法を示す。最初に、図1(a)のように、薄膜付きの金属基板を下向きに水中に設置し、最下部に空気の層を設け、水浸式超音波探触子を用いて超音波の送受信を行う。このとき、金属、薄膜、空気の順に音響インピーダンスが小さくなるため、音響共鳴現象が発現し、薄膜の膜厚 d に対して $1/4$ 波長の超音波の反射率が低下する。周波数解析により、周波数スペクトルは $1/4$ 波長に対応する周波数で極小値をとる。このときの周波数が共鳴周波数である。共鳴周波数には未知係数が2つあるため、音速と膜厚に関する方程式をもう1つ作る。そこで、図1(b)、(c)のように薄膜を上に向けて配置し、膜の有る箇所と無い箇所の基板表面から

の反射波を計測する。このとき、薄膜の音速の方が水の音速よりも早くなるため、反射超音波の時間波形においてピーク位置に時間差が生じる。この時間差 Δt は、以下のように表現することができる。水の音速 v_w が既知のとき、式(1)および(2)から、膜厚 d と音速 v を同時に求めることができる。本手法を用いることによって、音速が未知の薄膜であってもその膜厚を求めることが可能になる。また、本手法では比較的高周波数を実現できる水浸式超音波探触子を用いており、なおかつ $1/4$ 波長の超音波を利用しているため、従来方式よりも薄い薄膜の膜厚を計測できる。

図2に超音波画像処理装置と試験片を示す。インサイト社の超音波画像処理装置を用いており、公称周波数75 MHzの水浸式超音波探触子をXYZステージで移動可能にしている。得られた超音波波形は、100回の平均化処理をかける。今回評価する試験片として、1 mm厚の鋼板上にエポキシ樹脂(公称音速は2300 m/s)が電着塗装されたものを用いる。また、その公称膜厚は10、15、20、25 μm の4種類である。位置合わせのために、試験片の薄膜のある箇所と無い箇所の境界線上に2.5 mmのアルミニウムテープを貼る。水の音速を $v_w = 1480 \text{ m/s}$ として、エポキシ樹脂薄膜の音速と膜厚を同時に計測する。また、レーザー顕微鏡で試験片の断面を観察し、新手法による計測結果と比較する。

4. 研究成果

図3に音響共鳴現象により得られる周波数スペクトルを示す。極小値である共鳴周波数 f_r は、10~25 μm の試験片に対してそれぞれ46.9、41.0、27.3、23.4 MHzである。図4に、薄膜の有る箇所(図1(b))と無い箇所(図1(c))で計測した基板上面からの反射超音波の時間波形を示す。ここから、時間差 Δt が生じていることが分かる。これらの実測値と音響共鳴時の共鳴周波数の式を用いて、膜厚と音速を算出した結果と、断面観察(第7図)によって得た膜厚を第1表に示す。本手法による膜厚計測結果は、レーザー顕微鏡による断面観察と比較して誤差1 μm 程度であり、良好な精度で膜厚計測ができていくことがわかる。

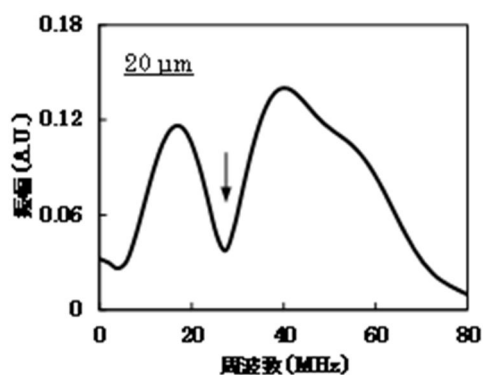


図3 音響共鳴現象発現時における反射超音波の周波数スペクトル

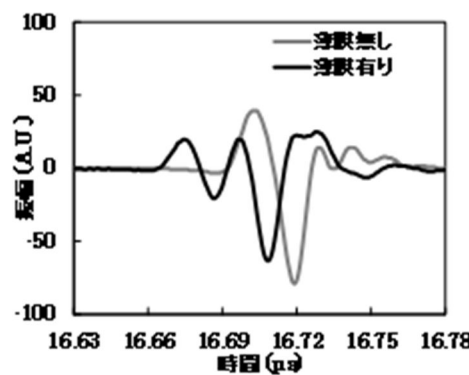


図4 薄膜の有/無箇所における反射超音波の時間波形

音響共鳴現象を利用した周波数解析と反射超音波の時間計測を組み合わせることで、音速と膜厚の同時計測を可能にする方法を提案した。エポキシ樹脂薄膜の膜厚計測から、本手法で得られた膜厚はレーザー顕微鏡による断面観察結果と非常に良い一致を見せた。今後、音響特性が均一ではなく、なおかつ音速が未知である導電性高分子薄膜やヒト iPS 細胞のような計測対象であっても、溶液中における音速と膜厚の同時計測によってその厚さが計測可能であることを示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計27件（うち査読付論文 20件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 9件）

1. 著者名 Iwao Matsuya, Yudai Honma, Masayuki Mori and Ikuo Ihara	4. 巻 18
2. 論文標題 Measuring Liquid-Level Utilizing Wedge Wave	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Sensors	6. 最初と最後の頁 2
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.3390/s18010002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Iwao Matsuya, Yudai Honma, and Ikuo Ihara	4. 巻 32
2. 論文標題 Experimental Study on Liquid-Level Measurement Based on Laser Ultrasonic Technique and Tip-Generated Wedge Wave	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Proceedings of Meetings on Acoustics	6. 最初と最後の頁 30012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1121/2.0000714	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 松谷巖、井原郁夫	4. 巻 65
2. 論文標題 構造ヘルスマニタリングのための超音波横変位センサ	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 非破壊検査	6. 最初と最後の頁 616-620
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 無
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 I. Matsuya, F. Matsumoto, and I. Ihara	4. 巻 15
2. 論文標題 Ultrasonic Lateral Displacement Sensor for Health Monitoring in Seismically Isolated Buildings	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Sensors	6. 最初と最後の頁 17000-17012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/s150717000	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 T. Matsuya, Y. Otsuka, M. Tagaya, S. Motozuka, K. Ohnuma, Y. Mutoh	4. 巻 C 58
2. 論文標題 Formation of stacked luminescent complex of 8-hydroxyquinoline molecules on hydroxyapatite coating by using cold isostatic pressing	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering:	6. 最初と最後の頁 127-132
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.msec.2015.08.020	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72件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 18件)

1. 発表者名 Iwao Matsuya, Hiroki Yamada, Yuji Baba, Takayuki Ishibashi, and Ikuo Ihara
2. 発表標題 Detecting Ultrasound Using Scanning Near-Field Optical Microscope
3. 学会等名 6th JSME/ASME International Conference on Material and Processing (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松谷 巖、吉村天平、井原郁夫
2. 発表標題 くさび波による液面レベル計測
3. 学会等名 日本機械学会 2017年度年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 森 雅之、井原郁夫、松谷 巖
2. 発表標題 ウェッジ波の励起と伝播に関する数値シミュレーション
3. 学会等名 日本機械学会 2017年度年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Iwao Matsuya, Yudai Honma, and Ikuo Ihara
2. 発表標題 Study on Liquid-level Sensing Utilizing Wedge Wave
3. 学会等名 The 6th International GIGAKU Conference in Nagaoka (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Iwao Matsuya, Yudai Honma, and Ikuo Ihara
2. 発表標題 Measuring Liquid-Level Utilizing Wedge Wave
3. 学会等名 International Congress on Ultrasonics (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小黒弥悠、松谷 巖、井原郁夫
2. 発表標題 エバネッセント光によるくさび波の励起に関する検討
3. 学会等名 超音波による非破壊評価シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉村天平、松谷 巖、井原郁夫
2. 発表標題 くさび波を用いた液面高さ計測手法に関する検討
3. 学会等名 日本機械学会 北陸信越支部 第54期総会・講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山田大貴、松谷 巖、馬場勇至、石橋隆幸、井原郁夫
2. 発表標題 近接場光顕微鏡の構築とそれを用いた超音波の検出に関する検討
3. 学会等名 日本機械学会 北陸信越支部 第54期総会・講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山田大貴、松谷 巖、馬場勇至、石橋隆幸、井原郁夫
2. 発表標題 近接場光顕微鏡の構築と超音波振動の検出
3. 学会等名 第24回 超音波による非破壊評価シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松谷 巖、山田大貴、馬場勇至、石橋孝幸、井原郁夫
2. 発表標題 近接場光顕微鏡による超音波振動の検出
3. 学会等名 第24回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P2016)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 I. Matsuya, T. Saito, T. Kuwahara, M. Kondo, K. Ohnuma, and I. Ihara
2. 発表標題 Measuring Thickness and Ultrasound Velocity of Thin Film by Means of Acoustic Resonant Spectroscopy
3. 学会等名 Asia-Pacific Conference on Fracture and Strength (APCFS 2016) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 山田大貴、松谷 巖、横山太一、蔡 永福、石橋隆幸、井原郁夫
2. 発表標題 近接場光による超音波の検出に関する検討
3. 学会等名 日本機械学会 2016年度年次大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Iwao Matsuya, Takamasa Saito, Kiyoshi Ohnuma, Takashi Kuwahara, Mizuki Kondo, and Ikuo Ihara
2. 発表標題 Simultaneous Determinations of the Ultrasonic Velocity and Thickness of Thin Films by a Combined Method of Acoustic Resonant Spectroscopy and Pulse-echo Measurement
3. 学会等名 4th International Symposium on Laser Ultrasonic and Advanced Sensing (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 山田大貴、松谷 巖、齊藤崇允、大沼 清、桑原敬司、近藤みずき、井原郁夫
2. 発表標題 音響共鳴現象と超音波パルスエコー法を利用したソフトマテリアルの膜厚と音速の同時計測
3. 学会等名 日本機械学会 2015年度年次大会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 松谷 巖、松本二三也、井原郁夫
2. 発表標題 免震建物のヘルスマonitoringのための超音波横変位センサ
3. 学会等名 日本機械学会 第23回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P2015)
4. 発表年 2015年

〔図書〕 計1件

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京電機大学 教員情報
<https://ra-data.dendai.ac.jp/tduhp/KgApp?kyoinId=ymdyygbggy>
長岡技術科学大学 井原郁夫研究室HP
<http://mcweb.nagaokaut.ac.jp/~ihara/>

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
研究分担者	大沼 清 (Ohnuma Kiyoshi) (50396834)	長岡技術科学大学・工学研究科・准教授 (13102)	
研究分担者	桑原 敬司 (Kuwahara Takashi) (50525574)	長岡技術科学大学・工学研究科・准教授 (13102)	
連携研究者	井原 郁夫 (Ihara Ikuo) (80203280)	長岡技術科学大学・工学研究科・教授 (13102)	