

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：17104

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K21225

研究課題名(和文) 微小体積での多成分ガス検知を目指したセンサ用素子の階層的配置と3次元溝構造の制御

研究課題名(英文) Design and arrangement of the sensors for the detection with small volume of multiple types of gases

研究代表者

村上 直 (Murakami, Sunao)

九州工業大学・大学院情報工学研究院・助教

研究者番号：90443499

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、複数種のガスを検知できる複数個のセンサ素子の配列(アレイ)のプラットフォーム構造(ガスを検知する感応膜を形成する前の共通構造)となる弾性表面波(SAW)デバイス素子を作製した。さらに、それらの素子間を構造的に分離するための3次元溝構造も同一基板上に複数配置させた「3次元溝構造を有するSAWデバイス素子アレイ」の作製プロセスの確立、および、それらのデバイスの特性評価などにより、微小な分析用チャンパー内への配置に適したセンサアレイチップの実現につなげていくことを目的とした。

研究成果の概要(英文)：Surface acoustic wave (SAW) device has received much attention as the possible substitute for physical and chemical sensing. The device can be used for gas sensing when the sensitive films which can adsorb target gases are prepared on the surficial regions of the device. We have attempted to develop the sensor chips using the SAW devices with the three-dimensional microgaps as the detection elements for the sensors which can detect multiple types of gases simultaneously.

研究分野：マイクロデバイス、微細加工

キーワード：弾性表面波デバイス 3次元溝構造 素子分離 センサ

1. 研究開始当初の背景

近年、医療・健康分野では、呼気などのガス試料中の成分のその場検知を、疾患等の診断や予防などに利用するニーズが増大している。それらの用途では、産業界や家庭でのガス漏れ検知などの従来用途と比較して、検知対象となるガス成分の種類がはるかに多く、複数種のガス成分の、同時かつ高精度なその場検知の実現が強く求められる。しかし、従来よりの汎用センサ素子では、検知できるガス成分は(例えば酸化物半導体型なら還元性ガスなどに)限定され、その大幅な拡大も必要不可欠である。また、検知に必要なガス試料(呼気など)の量の低減等による患者負担の軽減には、より小体積のガス試料での、複数種のガス検知の実現も重要である。

申請者らは以前、表面にガス感応膜を形成した複数個のマイクロ機械振動子(図1)を検知部とするガスセンサシステムを開発し、大気中で複数種ガス成分を同時にその場検知可能なことを報告した[①]。しかし、その機械振動子の可動構造の強度の低さと可動性ゆえに、その表面への感応膜の形成は、容易ではなかった。さらに、ガス検出では必須の非真空中環境下で駆動した際に、機械振動子の共振特性の不安定化も観察された。

そのため本研究では、質量センサとしては上記の「機械振動子」と同様の長を共通して有する一方、ガス検知の素子構造が2次元構造であるために機械的強度や上記感応膜の形成においては利点を有すると考えられる「弾性表面波(surface acoustic wave; SAW)デバイス(図2)」をガスセンサのベース構造とする研究を新たに開始することとした。

2. 研究の目的

本研究では、多成分ガスを、より小体積のガス試料から検知できるセンサユニットの実現を、最終的な研究目標としている。特に

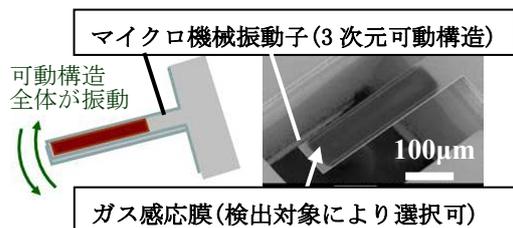


図1. ガス感応膜を表面形成した機械振動子型ガスセンサ (左:模式図, 右: 走査型電子顕微鏡写真)

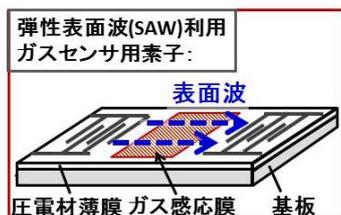


図2. SAW利用型ガスセンサ用素子

本研究期間(3年間)では、本研究のセンサ素子のプラットフォーム構造(ガス感応膜を形成する前の共通構造)となるSAWデバイス素子を作製した。その後さらに、それらの素子間を構造的に分離するための3次元溝構造も同一基板上に複数配置させた「3次元溝構造を有するSAWデバイス素子アレイ」の作製、および、それらのデバイスの特性評価の方法確立などにより、微小な分析チャンパー内への配置に適したセンサアレイチップの実現につなげていくことを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 窒化アルミニウム薄膜の成膜条件の最適化:

本研究でSAWデバイスの圧電材薄膜として採用した窒化アルミニウム(AIN)薄膜の、反応性スパッタリングでの成膜条件について検討した。具体的には、その成膜時の印加電圧、アルゴンおよび窒素のガス流量・流量比、および、成膜時の基板温度等を変更させた。その後、上述の各条件を変えて形成したAIN薄膜のX線回折(XRD)、および、そのAINを成膜した試料断面の走査型電子顕微鏡(SEM)による観察により、AIN薄膜の配向性や微小構造などを評価し、その成膜に適した条件を検討した。

(2) 3次元溝構造を有するSAWデバイス素子アレイの作製と評価:

上記・AIN薄膜を形成した基板に、複数のSAWデバイス素子の配列(アレイ)を同時作製するプロセスを確立した。また同時に、そのSAWデバイス素子アレイ基板に、圧電材薄膜とその下地のシリコン基板を深掘り微細加工した3次元の溝構造を組み合わせたデバイスを作製するプロセスの確立も試みた。その3次元溝構造は、SAWデバイス素子基板の電極材薄膜・圧電材薄膜・シリコン基板の各層を順次エッチング加工(化学反応による除去加工)するプロセス手順により作製した。

(3) 水晶基板上へのSAWデバイス素子アレイの作製と評価:

上記項目(1),(2)の検討に加え、励振・検知されるSAWの強度がより高いSAWデバイスを作製する目的で、単結晶基板(水晶基板)上へのSAWデバイスの作製も実施した。

4. 研究成果

(1) 窒化アルミニウム薄膜の成膜条件の最適化:

図3に、反応性スパッタリングによるAINの成膜条件の検討結果の一例として、成膜時の基板温度を変化させて成膜したAIN薄膜のXRD測定結果を示す。いずれの基板温度でも、 $2\theta/\theta = 36$ 度付近にAIN<002>によるピークを確認できたが、成膜時の基板温度を115°Cにした条件での成膜時にそのピークは最も明確で、AIN薄膜が高い圧電特性を示す配向になっていることを示すことができた。

さらに、上記の基板温度115°Cの条件で、

熱酸化で酸化膜(SiO<sub>2</sub>膜)を形成したシリコン(Si)基板の上に、AlNを反応性スパッタ成膜した試料の断面のSEM観察像を図4に示す。AlN薄膜をSiO<sub>2</sub>層上へ形成できていることが確認できた。

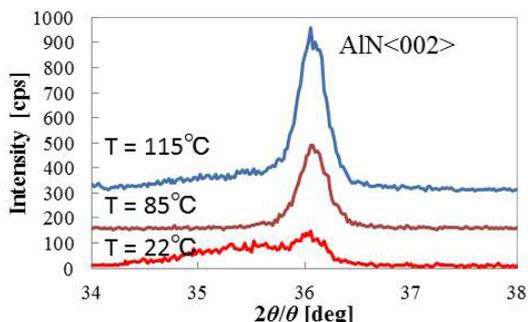


図3. AlN薄膜のX線回折結果  
(成膜時の基板温度の影響)

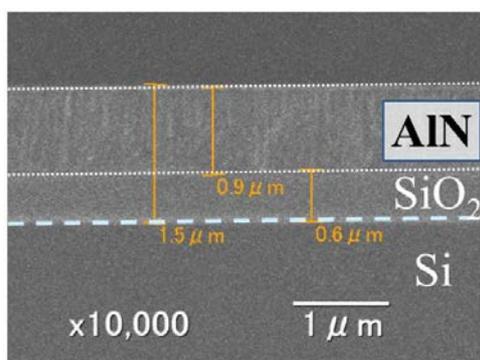


図4. AlN成膜後の試料断面のSEM観察像

(2) 3次元溝構造を有するSAWデバイス素子アレイの作製と評価:

前項(1)で記述したAlN薄膜上に、SAWの励振・検出に必要な「櫛歯形状の電極(IDT)部位を含む金属薄膜電極パターン」を作製するプロセスを確立した。電極材としては、金(Au)/クロム(Cr)薄膜、および、ニッケル(Ni)薄膜の2種類を採用した。図5に、Au/Crの各層の逐次ウェットエッチングにより作製したAu/Cr薄膜電極のIDT部位を、上面より光学顕微鏡で観察した像を示す。また、そのAu/Cr薄膜電極パターンを作製した試料のIDT部位の断面のSEM観察像を図6に示す[2]。AuおよびCr薄膜のウェットエッチング時間の制御により、設計値(配線幅6μm)に対して2%以内の精度で、AlN薄膜上にIDTを作製することに成功した。電極材をのみ異なるNi薄膜の電極パターンについても同様に、AlN薄膜上に作製することができた。

さらに、上記SAWデバイス素子と同一基板上に組み合わせ配置する「3次元溝構造」の作製プロセスの確立も試みた。具体的には、SAWデバイス素子基板の電極材および圧電材の薄膜とその下地のシリコン基板の各層を順次エッチング加工(化学反応による除去加工)するプロセス手順により作製した。図7

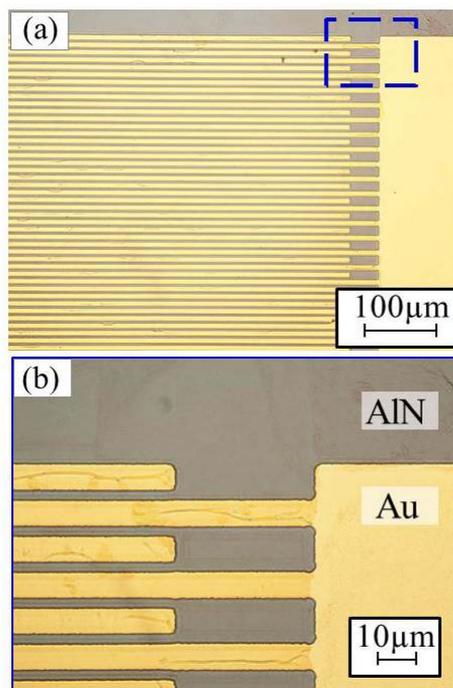


図5. Au/Cr薄膜電極(IDT部位)の試料上面よりの光学顕微鏡像

(a):広域観察像, (b):(a)の青枠部の拡大観察像

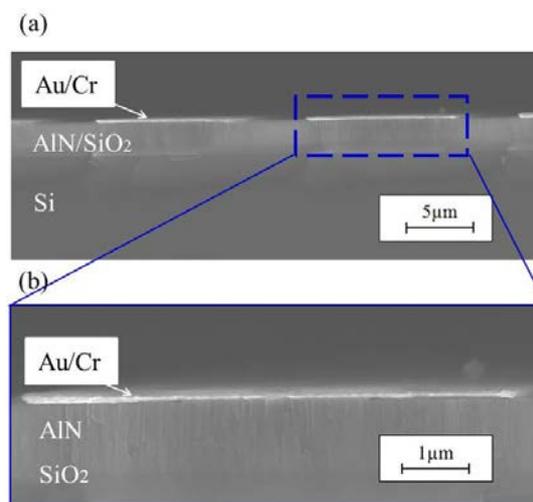


図6. Au/Cr薄膜電極(IDT部位)の断面のSEM観察像

(a):広域観察像, (b):(a)の青枠部の拡大観察像

に、Ni薄膜電極パターンを有するSAWデバイスを構成するNi, AlN, SiO<sub>2</sub>の各層、および、Si基板を順次エッチングすることで、(基板未貫通の)深溝構造を作製した際の試料断面のSEM観察像を示す[3]。NiおよびAlNの各層はウェットエッチングにより、SiO<sub>2</sub>層はドライエッチングにより、溝構造部分の除去加工を行った。その後シリコンの深掘りドライエッチング(Si D-RIE)により、Si基板へ(基板未貫通の)深溝構造を作製した。さらに、そのSi D-RIE工程の時間を長くすることで、Si基板の貫通エッチング加工を行い、Si基

板を貫通加工した「3次元溝構造」を素子間に有する SAW デバイス素子アレイも作製した。その SAW デバイスアレイ (2 連) の全体写真を図 8 に示す。

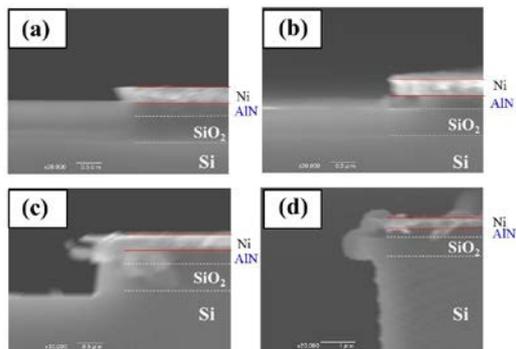


図 7. SAW デバイス基板の構成各層までのエッチング時点での試料断面の SEM 観察像 (a) Ni 薄膜まで, (b) AlN 薄膜まで (c) SiO<sub>2</sub> 層まで, (d) Si 基板まで



図 8. 3次元溝構造を有する SAW デバイス素子アレイの全体写真

### (3) 水晶基板上への SAW デバイス素子アレイの作製と評価:

前項までで述べた AlN 薄膜上に作製した SAW デバイスでは、その S パラメーターをベクトルネットワークアナライザ (VNA) で計測した際に検知される SAW のシグナル強度が、そのまま応用するには不十分であった。そこで、そのシグナル強度を増大させるための検討と並行して、単結晶である水晶基板上にも、同様に金属薄膜の電極パターンを作製する実験も実施した。Ni 薄膜電極パターンを有する SAW デバイスに関して S パラメーター ( $S_{21}$ ) を計測した際の結果を図 9 に示す。155MHz 付近に明確なピークを有する計測結果が得られた。それにより、本研究で設計・作製した SAW デバイスの周波数特性についても確認することができた。

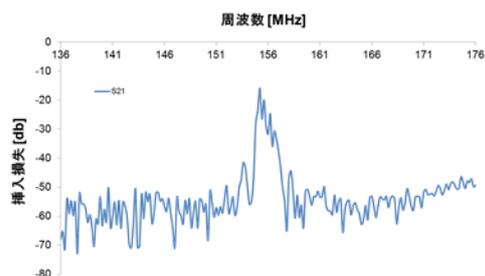


図 9. 水晶基板上に作製した SAW デバイス (Ni 薄膜電極) の周波数特性

### <引用文献>

- ① T. Mihara, T. Ikehara, M. Konno, S. Murakami, R. Maeda, T. Fukawa, M. Kimura, Sensors and Materials, 23, pp. 397-417 (2011)
- ② 力丸 真也、富山 直人、村上 直、伊藤 高廣、2017 年度精密工学会秋季大会学術講演会 講演論文集 (E06) (2017)
- ③ 富山 直人、石井 朋幸、村上 直\*、伊藤 高廣、第 33 回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム 講演論文集 (25am2-PS-021) (2016)

### 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)

[学会発表] (計 5 件)

- ① S. MURAKAMI\*, N. TOMIYAMA, S. RIKIMARU and T. ITO, Microfabrication of the Interdigital Transducers of Metal Thin Film on Piezoelectric Materials, 第 6 回バイオメカニクス研究センター エレクトロニクス実装学会九州支部 合同研究会 (招待講演)、2018 年
- ② 力丸 真也、富山 直人、村上 直\*、伊藤 高廣、圧電マイクロデバイスのための金属薄膜電極パターンの作製、2017 年度 精密工学会九州支部 熊本地方講演会、2017 年
- ③ 力丸 真也、富山 直人、村上 直\*、伊藤 高廣、金/クロム薄膜電極を有する弾性表面波デバイスの作製、2017 年度 精密工学会秋季大会学術講演会、2017 年
- ④ 富山 直人、石井 朋幸、村上 直\*、伊藤 高廣、弾性表面波デバイスアレイへの素子分離溝の作製、第 33 回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム、2016 年
- ⑤ T. ISHII, S. MURAKAMI\*, and T. ITO, Development of parallelized SAW devices partitioned by microgap structures on a chip, International Conference on Biosensors, Bioelectronics, BioMedical Devices, BioMEMS/NEMS and Applications 2015, 2015 年

### 6. 研究組織

#### (1) 研究代表者

村上 直 (MURAKAMI, Sunao)

九州工業大学・大学院情報工学研究院・助教  
研究者番号：90443499

#### (2) 研究協力者

伊藤 高廣 (ITO, Takahiro)

九州工業大学・大学院情報工学研究院・教授  
研究者番号：1036740

富山 直人 (TOMIYAMA, Naoto)

力丸 真也 (RIKIMARU, Shinya)