

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 7 月 15 日現在

機関番号：34310

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13766

研究課題名（和文）多重周回横波を利用したパイプセンサによる高感度液体計測

研究課題名（英文）High-sensitivity measurement of liquid properties with a pipe structure sensor using multiple roundtrips of shear acoustic wave

研究代表者

高柳 真司（Takayanagi, Shinji）

同志社大学・生命医科学部・助教

研究者番号：00735326

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：弾性波が伝搬している固体に液体を接触させると、その液体の粘性などの特性を受けて弾性波の音速や振幅が変化する。この変化を計測することで、弾性波の送受波間に負荷した液体の特性を計測できる。本研究では、液体への漏洩が少ない横波型弾性波をパイプ側面で周回させるセンサを作製した。まず、石英基板上に横波を励振可能なZnO薄膜を作製したセンサ構造について、弾性波伝搬シミュレーションを行った。その結果から、直径20mmのパイプセンサを作製した。弾性波伝搬特性や液体負荷特性を測定したところ、液体の粘性による振幅変化を確認できた。さらに、センサを小型化するため、直径6mmのパイプセンサ作製についても検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

弾性波センサの感度は液体が接触した領域の長さで決まる。そのため、従来の平面上で直線的に弾性波を送受波するセンサに対し、パイプセンサではパイプ側面を弾性波が周回することで、小型でもセンサ領域の長い高感度なセンサを実現できる。さらに、パイプ内側にも伝搬する弾性波を用いると、パイプ内部の液体粘度を測定することができる。したがって、6mmパイプなど実験配管で広く利用される規格サイズのセンサを作製できれば、市販の石英パイプ用配管部品を使って液体流路にそのまま組み込める。また、石英ガラスパイプは耐久性、耐薬品性にも優れている。以上より、本研究のパイプセンサは新たな液体用センサとして期待できる。

研究成果の概要（英文）：When a liquid contacts with a solid surface on which an acoustic wave is propagating, the acoustic-wave velocity and amplitude change due to the liquid characteristics such as a viscosity. Therefore, the characteristics of the liquid loaded onto the propagation path can be measured by the velocity and amplitude change. In this study, pipe structure sensors using shear horizontal (SH) acoustic wave roundtrips which leak little to the liquid were fabricated. First, the wave propagation simulation of c-axis parallel oriented ZnO film/silica glass substrate structure was performed. From the results, a pipe sensor with a diameter of 20 mm was prepared. The amplitude change due to the viscosity of the liquid was observed by the measurements of the wave propagation and liquid loading characteristics. Furthermore, the fabrication of a pipe sensor with a diameter of 6 mm was examined to miniaturize the pipe sensor.

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 曲面成膜 弾性波 表面波 横波型

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 近年、燃料電池の反応モニタリング用の導電率センサや、血液の粘性測定用の粘度センサ等、液体の性質を評価できる高感度なセンサの需要が高まっている。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。

。図 1(a)のようにデバイス表面近傍を伝搬する弾性波(弾性表面波)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、液体を載せると圧電体表面が粘性によって負荷を受け、その結果、表面波音速が数 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、粘度を測定できる。しかしながら、伝搬路を 10 mm 程度とすると数 ns の到達時間差を検出しなければならず、高感度測定には時間分解能の高い計測器が必要であった。

(2) 一方、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。多重周回を利用すれば、上記の伝搬路を長くすることができ、小型化かつ高感度化が実現できる。しかし、レイリー型は表面に対して垂直な変位成分を持つため液体中にエネルギーが漏れてしまい、センシング対象は気体に限定されている。

(3) 弾性波のうち、表面に対して平行な変位を持つ「横波型」のものは、伝搬表面に液体を負荷しても液体中に弾性波のエネルギーが漏れにくい特長を持つ。一方、表面に対して垂直な変位成分は、液体中にエネルギーを放射するため、信号を受波できない。したがって、液体用センサには横波型の弾性波が必須である。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。しかし、単結晶を球状に加工する場合には、その異方性によりレイリー型表面波の伝搬に限られるため、液体用のボールセンサは実現していない。

(4) 研究代表者は、これまでに圧電薄膜の結晶配向制御について研究を行い、通常は形成することが難しい横波を励振可能な ZnO 膜を形成することに成功した。これは圧電軸である c 軸が基板面に対して平行に配向した ZnO 膜(c 軸平行 ZnO 膜)である。この c 軸平行膜はスパッタ成膜法を用いて作製するため、曲面基板にも成膜できる。したがって、パイプ側面に c 軸平行膜に成膜することで、図 1(b)のような横波型弾性波を周回させるパイプセンサが実現できる。

2. 研究の目的

本研究では、c 軸平行 ZnO 膜を石英パイプに成膜することで横波型弾性波を励振し、パイプ円周方向に周回させることで高感度な液体用センサを開発することを目的とする。まず、これまでに試作してきた直径 20 mm のパイプセンサについて、より詳細にセンサ構造や弾性波の伝搬を検討するため、有限要素法によるシミュレーションを行った。続いて、横波型弾性波の励振に不可欠である c 軸平行 ZnO 膜について、パイプ側面に結晶配向性の良い薄膜を得る作製条件を検討した。そして、作製したパイプセンサの弾性波伝搬特性や液体負荷特性を測定した。さらに小型化を目指し、実験配管で広く利用される直径 6 mm の石英パイプを用いたセンサの作製について検討した。

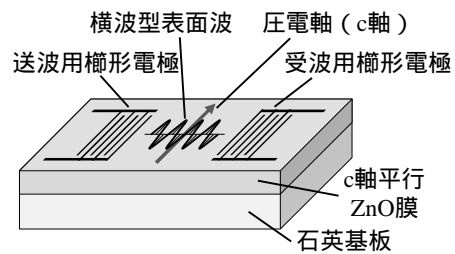
3. 研究の方法

(1) 弾性波伝搬シミュレーション

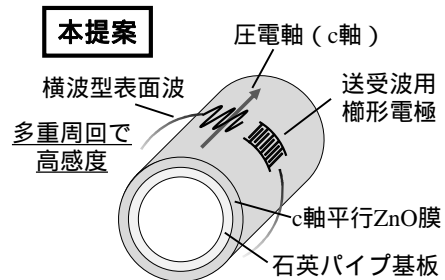
図 1(b)のように石英ガラス上に c 軸平行 ZnO 膜を作製した場合、横波型弾性表面波を励振する際の電気信号から機械振動へのエネルギー変換効率(電気機械結合係数 K^2)は、ZnO 薄膜の膜厚と表面波波長の比(規格化膜厚 H/λ)で決まる。そこで、まず電気機械結合係数 K^2 の数値解析を行った。これをもとに ZnO 薄膜の膜厚と弾性波励振用電極の間隔を決定し、その構造について有限要素法により、横波型弾性波の変位を計算した。

(2) 直径 20 mm のパイプ側面への c 軸平行 ZnO 膜形成

外径 20 mm、内径 17 mm の石英ガラスパイプ側面に c 軸平行 ZnO 膜を形成する手法について検討した。スパッタ成膜装置を図 2(a)に示す。本実験ではパイプ側面全周に ZnO 膜を作製するために基板回転機構を導入し、モーターによりその回転速度を制御した。また図 2(b)のよう



(a) 横波型表面波プレートセンサ
(c 軸平行 ZnO 膜/石英基板)



(b) 横波型弾性波パイプセンサ
(c 軸平行 ZnO 膜/石英パイプ基板)

図1 弾性波センサ

に、ZnO ターゲットと対向した部分にのみ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て成膜した。

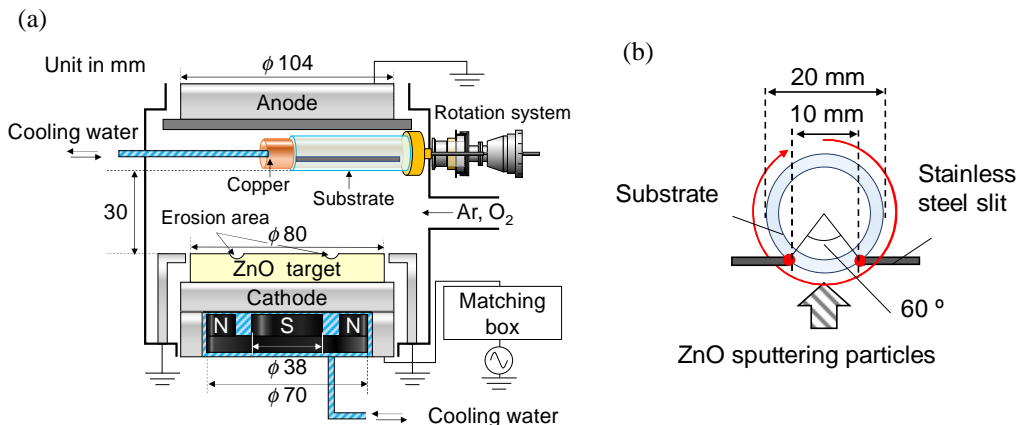


図2 (a)スパッタ装置を用いた石英パイプ側面への成膜と(b)スリットの設置

(3) 直径 20 mm のパイプセンサの弾性波伝搬特性と液体負荷特性の測定

パイプ側面の ZnO 膜上にフォトリソグラフィ技術を用いて Al 楕円電極を作製し、ネットワークアナライザを用いて弾性波を励振し、その周波数特性を測定した。

また、伝搬する横波型弾性波として、図 3 の表面波と板波の 2 つが考えられる。表面波ではパイプ外側、板波ではパイプ外側と内側の両方の液体負荷により伝搬特性が影響を受けると予想される。そこで、純水とグリセリン水溶液をパイプ外側と内側に負荷した場合について、周波数特性を測定した。

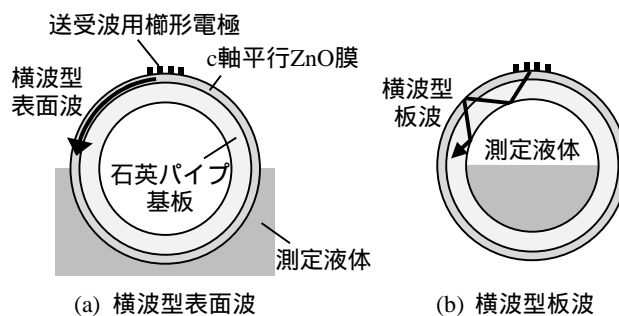


図3 パイプセンサにおける液体の測定

(4) 直径 6 mm のパイプセンサ作製に関する検討
パイプセンサの小型化のため、直径 6 mm のパイプセンサの作製について検討した。図 2(a)と同様に自動回転機構を用いた成膜を行い、c 軸平行 ZnO 膜の結晶性を評価した。

続いて、直径 20 mm の場合と比較してパイプの曲率が大きく、通常のフォトリソグラフィ技術による Al 楕円電極の作製が困難であったため、インクジェット描画装置による Al 電極の直接描画について検討した。

また、ネットワークアナライザを用いた測定では周波数特性の測定が基本となるため、時間波形を得るには逆フーリエ変換による信号処理が必要となる。これにより、解析できる時間長さや時間分解能が限定されてしまうため、新たに図 4 に示す方向性結合器とオシロスコープを用いた測定系についても検討した。

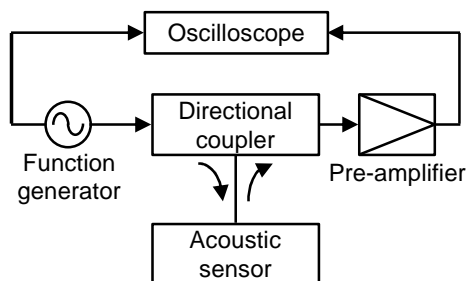


図4 オシロスコープを用いた測定系

4. 研究成果

(1) 弾性波伝搬シミュレーション

c 軸平行 ZnO 膜/石英基板構造における横波型弾性表面波の電気機械結合係数 K^2 について数値解析を行った結果、規格化膜厚 $H/\lambda = 0.27$ において $K^2 = 2.7\%$ で最大となった。本実験で用いた楕円電極の間隔から $\lambda = 23 \mu\text{m}$ であるため、解析結果をもとに $H/\lambda = 0.27$ に近づくよう以降の成膜で膜厚を調節した。

続いて、有限要素法により c 軸平行 ZnO 膜/石英基板構造における弾性波の振動変位を計算した。その結果を図 5 に示す。図 5 は平面状のセンサ構造の一部を切り出したものであり、ZnO 薄膜の厚みは $4.2 \mu\text{m}$ 、石英基板の厚みは 1mm であ

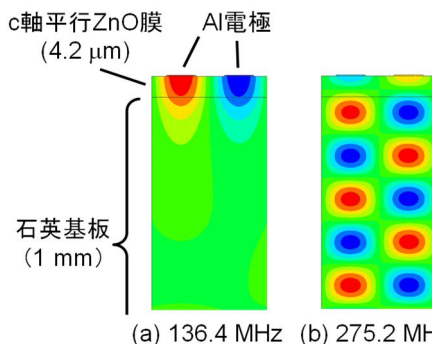


図5 有限要素法による変位解析 (赤が紙面奥、緑が変位無し、青が紙面手前、)

る。計算結果から、表面に対して平行な変位を持つ弾性波が励振されていることが判った。136 MHz 付近では変位が表面に集中しており、横波型表面波が励振されている。一方、それ以外にも数 MHz 間隔で基板底面まで横波の変位を持つ弾性波が励振されている。よって、図 5(a)の振動では ZnO 薄膜側への液体負荷による影響を受け、図 5(b)の振動では ZnO 薄膜側と石英基板底面側の両方への液体負荷により影響を受けると考えられる。

(2) 直径 20 mm のパイプ側面への c 軸平行 ZnO 膜形成

基板を回転させることにより、基板側面はスリットを通して部分的にターゲット粒子が飛来する。基板回転速度が変化すると、スリットを 1 回通過するまでの成膜量が変化する。この成膜量の変化が結晶化のばらつきに影響を及ぼすか検討した。基板回転速度を 0.8, 1.6, 3.2, 6.4 rpm として成膜を行い、X 線回折測定を行った結果、(11-20) 面配向の強いピークが観測された。図 6 にそれらの積分強度をまとめる。基板回転速度によって、円周方向の測定場所ごとのばらつきが変化した。3.2, 6.4

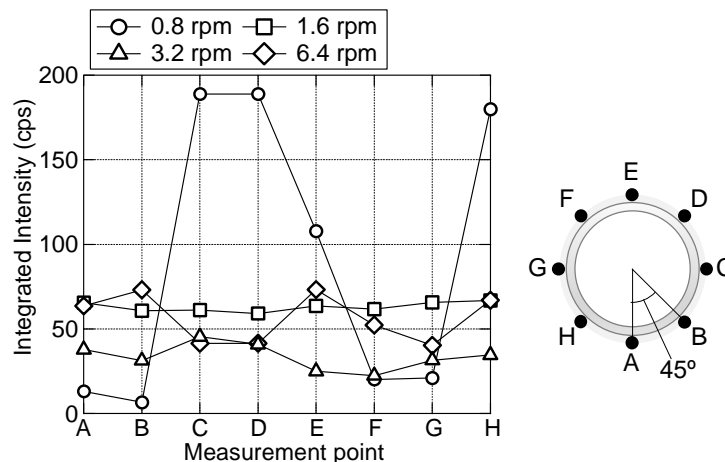


図6 自動回転速度を変えて成膜した薄膜における XRD パターンの ZnO(11 $\bar{2}$ 0) ピーク積分強度

rpm の試料では、各積分強度の平均値から最大で 30% 以上のばらつきを持つ点が存在するが、1.6 rpm の試料では円周方向におけるばらつきが小さく、平均値から最大でも 6% 程度のばらつきに収まった。以上より、回転速度をある程度低くして、スリットを 1 回通過する間に成膜される量を確保することで、円周方向の結晶性のばらつきを抑えることができると考えられる。しかし、基板回転速度 0.8 rpm では平均値から 2 倍以上の積分強度が得られた場所があるなど大きなばらつきが観測された。これは部分的に一度に多く成膜してしまうことで、不均一につながる可能性が考えられる。以上より、基板回転速度をある程度遅くすることで、石英ガラス管の側面全体に均一な c 軸平行配向 ZnO 膜が形成されることが示唆された。

(3) 直径 20 mm のパイプセンサの弾性波伝搬特性と液体負荷特性の測定

c 軸平行 ZnO 膜上に Al 楕円電極を作製したパイプセンサの電気特性をネットワークアナライザにより測定した。構造をに側面の ZnO 膜上にフォトリソグラフィ技術を用いて Al 楕円電極を作製し、ネットワークアナライザを用いて弾性波を励振し、その周波数特性を測定した。時間ゲートの信号処理により計算した各周波数成分の時間応答を図 7 に示す。130 MHz 付近に見られる表面波成分は 2 周目まで観測することができた。一方、それより高周波の成分の連なりは 4 周目まで観測された。この連なりは有限要素法の解析結果から、パイプの内側にも伝搬する板波の成分だと考えられる。

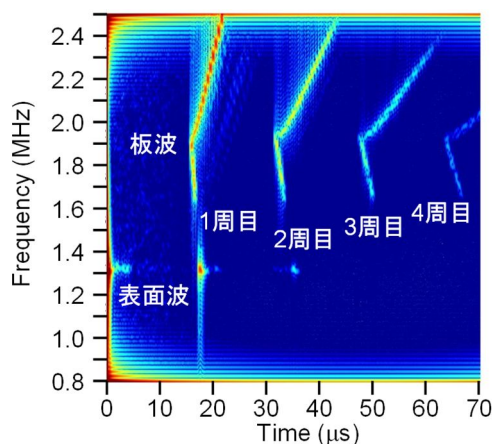


図7 パイプセンサから励振された音波の周波数および時間特性

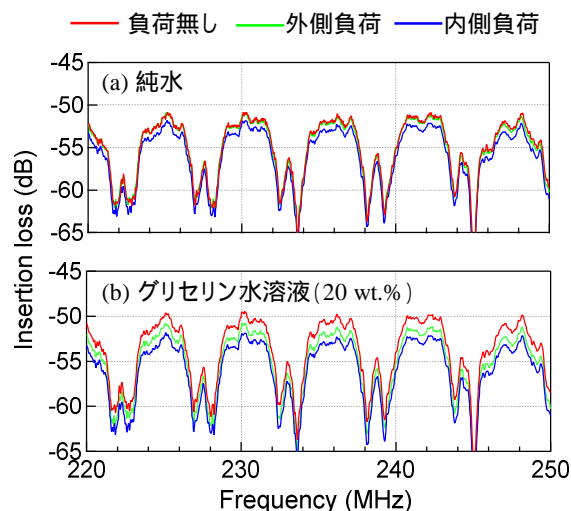


図8 パイプセンサの液体負荷特性

このパイプセンサの外側と内側に、純水もしくは 20 wt.% のグリセリン水溶液を負荷した。1 周目の成分に着目したところ、130 MHz 付近では、純水とグリセリン水溶液ともにパイプ外側への負荷で振幅の減衰が見られたが、内側では減衰が見られなかった。よって、予想通り横波型

表面波であると考えられる。一方、220-250 MHz 付近の結果について図 8 に示す。こちらは純水、グリセリン水溶液ともにパイプ内側への負荷の方が振幅の減衰が大きいことが判った。したがって、パイプ内側でも振動変位を持つ板波の成分であることが確認された。また、純水よりも粘度の高いグリセリン水溶液の方が、振幅の減衰が大きく見られることから、振幅減衰に着目することで、粘度を測定可能であることが示唆された。

(4) 直径 6 mm のパイプセンサ作製に関する検討

パイプセンサの小型化のため、直径 6 mm の石英パイプを用いて、自動回転機構を用いて c 軸平行 ZnO 膜の成膜を試みた。成膜した試料について X 線回折パターンを測定し、得られた回折ピークの積分強度を図 9 に示す。直径 20 mm の場合に良好な c 軸平行膜が得られた 1.6 rpm では、直径 6 mm にすると(0002)面のピークが側面 1 周で観測された。(0002)面は c 軸が基板面に対して垂直な面であり、横波を励振することができない。そこで、成膜時の回転速度を遅くして 0.25 rpm としたところ、(10-10)面と(11-20)面のピークが混在した薄膜が得られた。両者とも c 軸が基板面に対して平行となっていることを示したピークであり、c 軸平行膜を得ることができた。直径を小さくしたことで、同じ回転速度でもスリット幅の間で成膜される時間が短くなったため、より回転速度を遅くする必要があったと考えられる。

この直径 6 mm のパイプでは曲率が高いため、通常の写真リソグラフィ技術で Al 櫛形電極を断線無く作製することは難しい。そこで、インクジェット描画装置により金属ナノ粒子を直接塗布することで電極の作製を試みた。塗布条件を検討した結果、平面の石英基板上であれば 10 μm 程度の幅の櫛形電極作製に成功した。現在は、パイプ形状への塗布について検討している。

また、図 4 に示す方向性結合器とオシロスコープを用いた測定系で弾性波伝搬の時間応答を測定できないか検討した。直線上を弾性波が伝搬し反射波が返ってくる試料を用いて測定したところ、数 100 ns の多重反射について観測することができた。しかし、直径 6 mm のパイプセンサを用いた場合には、弾性波の伝搬が小さく観測することはできなかった。よって、引き続き、c 軸平行 ZnO 膜の作製や Al 櫛形電極の作製手法について検討し、弾性波が強く励振されるよう検討が必要である。

以上から、直径 6 mm のパイプセンサの作製では、依然として課題が残っているが、直径 20 mm では複数の横波型弾性波の成分が周回していることが確認され、液体負荷特性も測定できた。直径 6 mm のパイプセンサでも構造の問題を解決することで、同様の周回を観測することが期待される。

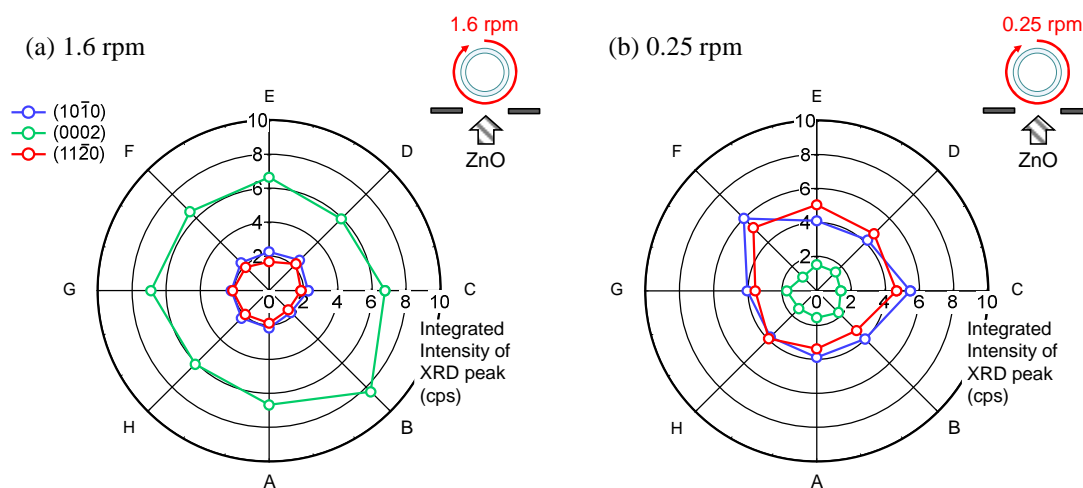


図9 自動回転機構を用いて直径6 mmの石英パイプ上へ成膜したZnO膜の各XRDピークにおける積分強度

< 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).
- J. J. Campbell and W. R. Jones, *IEEE Trans. Sonics Ultrason.*, **15**, 209 (1968).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 1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 篁 佑太、高柳 真司、松川 真美、柳谷 隆彦	4. 巻 118
2. 論文標題 石英ガラス管全面へのc軸平行配向ZnO薄膜の成膜	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 電子情報通信学会技術研究報告（IEICE technical report）	6. 最初と最後の頁 25-30
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 宮田 昌哉、高柳 真司、松川 真美、柳谷 隆彦	4. 巻 119
2. 論文標題 ZnO薄膜を用いた厚みすべりモード共振子の作製と液体負荷時の周波数特性	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 電子情報通信学会技術研究報告（IEICE technical report）	6. 最初と最後の頁 33-37
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 Wakabayashi Takuya, Takayanagi Shinji, Matukawa Mami, Takamura Yuta, Yanagitani Takahiko	4. 巻 2019-October
2. 論文標題 Improvement of c-Axis Parallel Orientation of ZnO film on Silica Glass Pipes with Various Diameters for SH-SAW Pipe Sensor	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proceedings of 2019 IEEE International Ultrasonics Symposium	6. 最初と最後の頁 671-674
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/ULTSYM.2019.8925796	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5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 篁 佑太、高柳 真司、松川 真美、柳谷 隆彦
2. 発表標題 石英ガラス管全面へのc軸平行配向ZnO薄膜の成膜
3. 学会等名 電子情報通信学会 超音波研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 篁 佑太、高柳 真司、松川 真美、柳谷 隆彦
2. 発表標題 SH型SAWパイプセンサの作製に向けた石英ガラス管へのc軸平行配向ZnO膜の形成
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 宮田 昌哉、高柳 真司、松川 真美、柳谷 隆彦
2. 発表標題 ZnO薄膜を用いた厚みすべりモード共振子の作製と液体負荷時の周波数特性
3. 学会等名 電子情報通信学会 超音波研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Wakabayashi Takuya, Takayanagi Shinji, Matukawa Mami, Takamura Yuta, Yanagitani Takahiko
2. 発表標題 Improvement of c-Axis Parallel Orientation of ZnO film on Silica Glass Pipes with Various Diameters for SH-SAW Pipe Sensor
3. 学会等名 2019 IEEE International Ultrasonics Symposium (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 紀本 佳苗、高柳 真司、柳谷 隆彦
2. 発表標題 熱処理によるc軸平行配向ZnO膜のすべりモード電気機械結合係数の向上
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

同志社大学 研究者データベース
<https://kendb.doshisha.ac.jp/profile/ja.5b17e6886f96b1f4.html>
同志社大学 生命医科学部 超音波エレクトロニクス・生体計測研究室
<https://ultrason.doshisha.ac.jp/>

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
--	---------------------------	-----------------------	----