

レイリー型表面弾性波を用いた液相系センサーの動作特性

小川健吾^{1,2}・山田真也¹・鳥越俊彦³・澤田 研²・岩佐達郎²

杉山史一²・冨田芳広²・植杉克弘²・福田 永²

¹ファインクリスタル株式会社 ☎ 051-8505 北海道室蘭市茶津町 9-1

²室蘭工業大学 ☎ 050-8585 北海道室蘭市水元町 27-1

³札幌医科大学 ☎ 060-8556 北海道札幌市中央区南 1 条西 17 丁目

(2014 年 1 月 28 日受付 ; 2014 年 4 月 1 日掲載決定)

Electrical Properties of Liquid Phase Sensor Using Rayleigh Type Surface Acoustic Wave

Kengo OGAWA^{1,2}, Shinya YAMADA¹, Toshihiko TORIGOE³, Ken SAWADA², Tatsuo IWASA²,
Fumikazu SUGIYAMA², Yoshihiro TADA², Katsuhiko UESUGI² and Hisashi FUKUDA²

¹FINE CRYSTAL Co., Ltd., 9-1 Chatsu-machi, Muroran, Hokkaido 051-8505

²Muroran Institute of Technology, 27-1 Mizumoto-cho, Muroran, Hokkaido 050-8585

³Sapporo Medical University, Minami-1, Nishi-17, Chuo-ku, Sapporo, Hokkaido 060-8556

(Received January 28, 2014 ; Accepted April 1, 2014)

A surface acoustic wave (SAW) is a wave propagating in which the wave energy concentrates on the piezoelectric material surface. Among various surface wave modes, Rayleigh wave radiates a wave along to surface. Thus, surface sensitive monitoring is expected especially in liquid/solid interface. In this study, the device of which a grooved glass is placed on the propagation path of Rayleigh wave are fabricated and demonstrates the sensing properties to detect the mass concentration of glycerin, alcohols and NaCl in a liquid.

KEYWORDS : surface acoustic wave, Rayleigh wave, liquid phase sensor, bio-sensor

1. はじめに

表面弾性波 (Surface acoustic wave ; SAW) は、圧電体材料の表面をエネルギーが集中した状態で伝搬する波である。SAW は、圧電体基板表面に配置したすだれ状櫛形電極 (Interdigital transducer ; IDT) に高周波を印加して発生させられる。その伝搬速度は 3000~4000 m/s と電磁波と比較して 10 万分の 1 程度であり、また波長あたりの伝搬減衰が小さいため、マイクロ波帯のフィルタとして利用され通信機器の小型化に寄与している。

これまで、固体中を伝播するバルク波を用いた水晶振動子 (Quartz crystal microbalance ; QCM) センサーがすでに製品化されている。しかし機械的強度と安定性に難があるため、それに代わる SAW センサーに期待が寄せ

られている¹⁾。SAW は IDT 電極の幅により高周波化が容易であることから QCM に比べて高感度化が期待できる。SAW は横波型表面弾性波 (Shear horizontal-SAW ; SH-SAW)、屈曲波 (Flexural plate wave ; FPW) およびラブ波などの種類があり、バイオセンサーとして実用化研究がなされている²⁾。一方、レイリー型表面弾性波 (Rayleigh-SAW) の変位は、波の進行方向と基板表面に垂直方向の成分から構成され、かつ表面から深さ 1 波長以内に 90% 以上が集中する特徴がある。Fig. 1 に示すように、レイリー波の伝搬面上に液体があると、エネルギーはその中に放射され急速に減衰していくため、液相系の測定には不向きであると考えられてきた^{3,4)}。本研究では、ガラス基板を溝加工して作製したマイクロ流路を IDT 電極間に配置し、その中に試料溶液を閉じ込めて形状を固定することにより、試料体積内の微量な質量変化でも測定できることを明らかにした。本論文では、温度

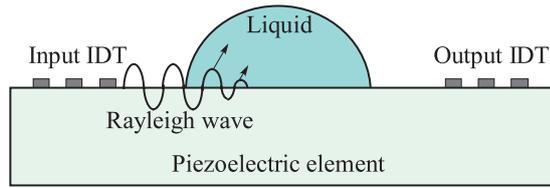


Fig. 1. (color online). Schematic drawing of acoustic wave attenuation when arranges liquid reservoir on the propagation surface.

特性が良好でかつ化学的に安定な水晶を圧電体基板に用い、表面弾性波であるレイリー波方式により液相試料中での濃度変化の定量化を試みた。

2. 実験方法

2.1 デバイスの作製手順

Fig. 2 (a) に示すように、水晶原石の結晶軸から ST カットで切り出した水晶基板を圧電体材料として用いた⁵⁾。水晶表面にレイリー波を発生させるため、IDT アルミニウム電極は X 軸方向で対向するように配置し、フォトリソグラフィ技術により電極ピッチ (P) 10 μm 幅で作製した (**Fig. 2 (b)**)。レイリー波伝搬速度 (v) は 3158 m/s であるので、中心周波数 (f) は $f = v / (2 \times P)$ より 157 MHz となる。入力側 IDT から基板内部方向に放射されたバルク波が、基板裏面で反射されて出力側 IDT で検出される場合があるため、裏面はすりガラス状に加工して反射を低減させた。先に述べたように、レイリー波は伝搬方向とそれに垂直な深さ方向の成分を持っており、液滴中を伝搬するにつれて波が減衰しやすいため、出力側 IDT で電気信号として容易に取り出せない。そこで、レイリー波が大きく減衰しない程度に試料溶液を微量化できれば十分な感度で弾性波信号が測定可能となる。本研究では、マイクロ流路の溝を形成したガラス (以後、溝ホルダー) をレイリー波伝搬路上に配置し、その中に試料溶液を導入して測定する手法を提案し、その特性を評価した。**Fig. 3** に溶液を保持するための溝ホルダーの断面形状を示す。溝加工は、ダイヤモンド砥石が高速回転するブレードを用いて行った。**Fig. 4** に示すように、溝ホルダーを SAW デバイス上に完全に密着させず僅かに隙間をあけて設置させることで、伝搬信号強度の減衰を抑えることを試みた。完全に密着させずに溝から試料溶液が漏れだすのを防ぐため、溝内壁は親水性、溝部周辺は撥水性に表面処理し、固液界面での表面張力を利用した溝流路構造とした。弾性波信号測定にはネットワークアナライザー (Agilent 社製 E5061A) を用い、レイリー型 SAW 溝流路デバイス⁶⁾を

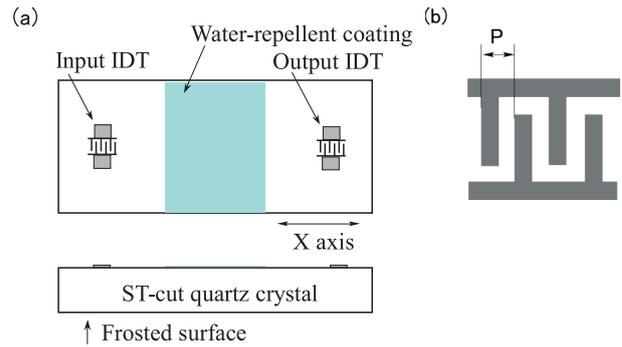


Fig. 2. (color online). Schematic drawing of (a) IDTs and water-repellent coating formed on a ST-cut quartz surface and (b) aluminum IDTs electrode structure.

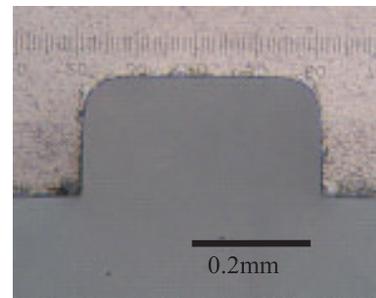


Fig. 3. (color online). Photograph of the cross-sectional shape of the groove.

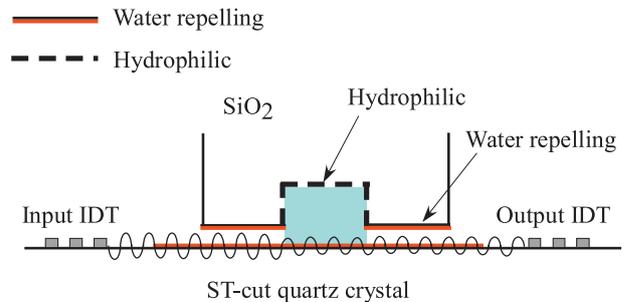


Fig. 4. (color online). Schematic drawing of the groove channel structure and Rayleigh wave passing through the solution in the groove.

作製した (**Fig. 5**)。

試料溶液は、マイクロピペットを用いて溝内に注入した。マイクロ流路内の溶液は周りの湿度や液の蒸発等による影響が少ないため、揮発性の高い試料溶液でも安定して観測することが可能になった。

Table 1 は SAW デバイスパラメーターを示す。測定周波数は最大感度を得るため、振幅が最も高い 157.6

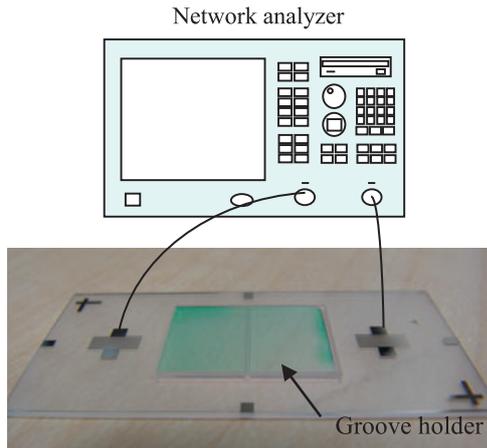


Fig. 5. (color online). Schematic drawing of Rayleigh-SAW type groove channel device.

Table 1. The parameters of SAW devices.

| | | |
|---------------------------------------|-------------------------------------|----------|
| ① Rayleigh wave velocity[m/s] | — | 3158 |
| ② Electrode width(P)[μm] | — | 10 |
| ③ Frequency[MHz] | $\text{①} \div (2 \times \text{②})$ | 157.6 |
| ④ Wavelength[mm] | $\text{①} \div \text{③}$ | 0.02 |
| ⑤ Groove width[mm] | — | 0.4, 0.8 |
| ⑥ Groove depth[mm] | — | 0.2 |

MHzとした。このとき波長 λ は0.02 mmとなる。溝幅は0.4, 0.8 mmとし、それぞれ λ の20および40倍となるように作製した。また、バイオセンサーとしての応用も考慮し、微量の試料溶液で特性が検出できるようにするため、溝長さを10 mm、溝深さを0.2 mmとし、溝に入る溶液量を0.8と1.6 μl とした。

3. 実験結果および考察

3.1 デバイス特性

Fig. 6は、試料溶液として純水を用いたときのレイリー型 SAW 溝流路デバイスの振幅に対する周波数依存性を示す。Fig. 1に示すように溝ホルダーを用いず、SAW伝搬路に液滴しただけの③溝ホルダーなしでの特性では、①基本波に対して振幅が50 dB以上と大幅に減衰しており、出力側へは信号がほとんど伝わらないことがわかる。一方、今回作製した②溝ホルダーを用いて測定すると、約10 dB程度の減衰に抑えることができた。

溝ホルダーに純水とグリセリン水溶液試料を注入して位相の周波数依存性を測定した。Fig. 7に示すように、試料溶液の違いにより位相シフトが明瞭に観測できることがわかった。これらの結果より、本研究で提案する溝

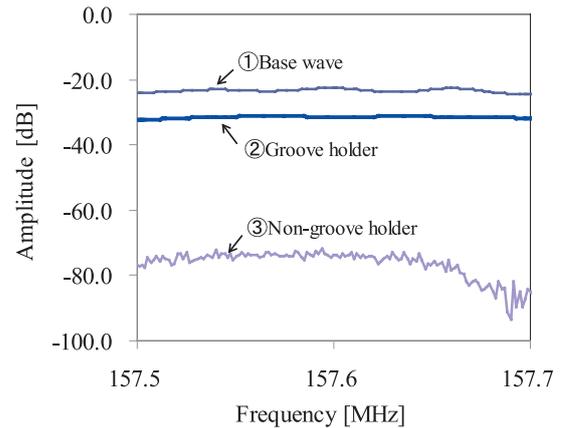


Fig. 6. (color online). Comparison of the amplitude of the Rayleigh wave in the groove holder use or non-use (① Base wave : Characteristic without sample solution into the groove holder, ② Groove holder : Characteristic with pure water into the groove holder (the width and depth are 0.4 and 0.2 mm, respectively), ③ Non-groove holder : Characteristic arranged the form of droplets of pure water to the SAW propagation path as shown in Fig. 1).

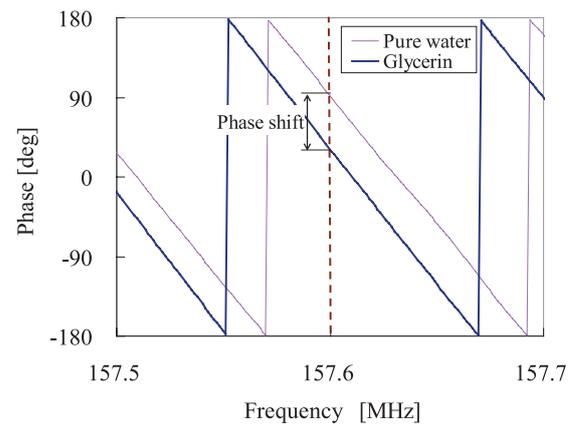


Fig. 7. (color online). Comparison of the phase difference of glycerin and pure water.

ホルダーを用いた SAW デバイスにより、試料溶液の状態によるレイリー波の変化が測定可能になることがわかった。

3.2 グリセリン水溶液の測定

MEMS 圧力センサー方式を用いた粘度計が研究され⁷⁾、すでに装置が販売されている。この装置は、シリコン基板上に形成されたマイクロチャネルの中へ試料溶液を一定の流量で流して測定するため、液量として数十～数百 μl が必要とされる。

グリセリンは、粘性測定の感度評価用標準液として用いられる。今回実験に用いたグリセリン水溶液は、純水

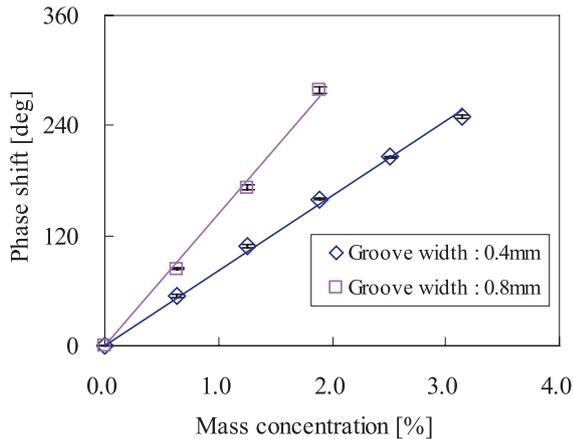


Fig. 8. (color online). Dependence of phase shift on the mass concentration of glycerin (Error bars indicate standard deviation.).

を希釈液として質量濃度 0.6~3.1% で作製し、純水での位相を基準にして各試料における位相シフトを評価した。**Fig. 8** は、0.4 および 0.8 mm 幅の溝ホルダーを用いて測定した位相シフトの質量濃度依存性を示す。各溶液において 3 度測定を繰り返し、その標準偏差 σ も示す。

この結果から、グリセリンの質量濃度が増えるにつれ位相シフトが増加し、比例関係になっていることがわかる。すなわち、グリセリンの粘度(粘性率)はその質量濃度に比例することから、本手法による位相シフト量測定により溶液中の濃度や粘度を数 μl にて直接求めることができる。また、溝幅が大きくなると位相シフト量が約 2 倍となるため、測定感度を高くできることがわかった。

3.3 アルコール水溶液の測定

試料にメタノールとエタノール水溶液を用い、各溶液中の質量濃度による位相シフトを測定した。特に、メタノールは燃料電池の原料として注目されており、その濃度を観測するセンサーとして SAW デバイスが注目されている¹⁾。

希釈液は純水を用い、各質量濃度 0.4~2.0% で作製した。**Fig. 9** は、0.4 mm 幅の溝ホルダーを用いて測定した位相シフトの質量依存性を示す。グリセリン水溶液と同様、アルコール水溶液中の濃度の増加に比例して位相シフト量が増加することがわかった。メタノールとエタノールでは質量濃度に対する位相シフトの傾きが異なっており、これは溶質による粘度、誘電率、導電率、音速などの違いが位相シフトの変化に影響を及ぼしているためと考えられる。

3.4 NaCl 水溶液の測定

無機塩類として NaCl を用いて、質量濃度による位相

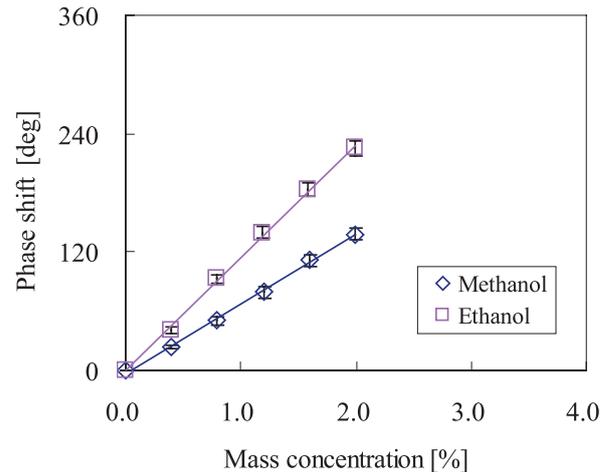


Fig. 9. (color online). Dependence of phase shift on the mass concentration of methanol and ethanol.

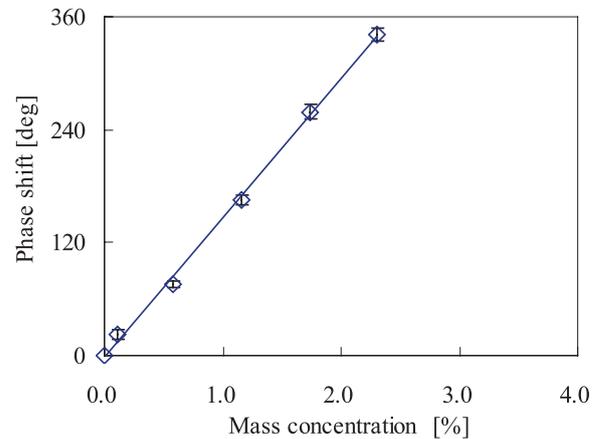


Fig. 10. (color online). Dependence of phase shift on the mass concentration of NaCl.

シフトを測定した。血液やリンパ液中に 1% 弱含まれる NaCl は体の水分量を調整する重要な役割を果たしている。水に溶けると Na^+ と Cl^- に電離し、上記で用いたグリセリンやアルコール水溶液と比較して高い導電率を示す。希釈液は純水を用い、各質量濃度 0.1~2.3% で作製した。**Fig. 10** に 0.4 mm 幅の溝ホルダーを用いて測定した位相シフトの質量濃度依存性を示す。グリセリン、アルコール水溶液と同様、NaCl 水溶液でも濃度の増加に比例して位相シフト量が増加している。これより、溶液中の溶質がイオンの状態でも本手法により評価することが可能であることがわかった。

4. ま と め

本研究では親水性と撥水性部分を設けた溝ホルダーを伝搬路上に設置したレイリー型 SAW 溝流路デバイスを

提案し、その動作特性を示した。溝ホルダーで試料溶液の容量を微量化することにより、レイリー波の減衰が抑えられ、溶液の微量な質量濃度の変化を測定することが可能となった。グリセリン、アルコール、NaCl水溶液の試料において、レイリー波の位相シフト量がそれらの濃度に比例した関係にあることを明らかにした。今後は溶液の特性である粘度、誘電率、導電率、音速などの定量測定や、それら物理量とレイリー波の位相シフトとの関係を明らかにすることが必要である。

また、微量な試料溶液にて、簡便で迅速に生体成分が分析できる装置開発が求められている⁸⁾。タンパク質や抗原抗体の状態や反応過程の検知を目的としたバイオセンサー⁹⁾への応用を今後進めていきたいと考えている。

謝 辞

本研究の一部は、科学研究費補助金「基盤研究 (C)」課題番号 25420310 および「新学術領域研究」課題番号 24120006 の援助を受けて行われたものである。また、本研究の遂行にあたりご助言頂いた SEE-I 技術研究所 所長 佐藤完二氏、北海道立工業技術センター 研究主査 菅原智明氏、室蘭工業大学 地域共同研究センター 嶋田 秀一教授、古屋温美准教授、ファインクリスタル株式会社 副社長 清野芳紀氏、部長 阿部敏広氏に心から感謝

します。

文 献

- 1) 三國 聡, 近藤 淳, 沢田直見, 太田 徹: 社団法人電子情報通信学会 信学技報 **72**, 7 (2009).
- 2) 近藤 淳: 社団法人電子情報通信学会 信学技報 **65**, 15 (1996).
- 3) 山之内和彦: “弾性波デバイス技術” 日本学術振興会 弾性波素子技術第 150 委員会 (オーム社, 2004) p. 405.
- 4) T. Nagayama, J. Kondoh, T. Oonishi and K. Hosokawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **52**, 07HD09 (2013).
- 5) 日本水晶デバイス工業会: “水晶デバイスの解説と応用” (日本水晶デバイス工業会, 2012) p. 27.
- 6) K. Ogawa, T. Abe, Y. Seino, T. Torigoe, Y. Tada, K. Uesugi, H. Fukuda, K. Sawada and T. Iwasa: Abstracts on 26th International Conference on Microprocesses and Nanotechnology Conference (2013) 7P-7-102.
- 7) V. Sharma, A. Jaishankar, Y.-C. Wang and G.H. McKinley: *The Royal Society of Chemistry Soft Matter* **7**, 5150 (2011).
- 8) 鈴木博章: *IEEJ Journal* **134**, 144 (2014).
- 9) K. Ogawa, T. Abe, Y. Seino, T. Hirai, K. Uesugi, H. Fukuda, K. Sawada and T. Iwasa: Abstracts on 7th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (2013) p. 231.