

SAW溶液センサの開発

Liquid-Phase SH-SAW Sensor

谷津田 博美 小 貝 崇
Hiromi Yatsuda Takashi Kogai

要 旨

SAW溶液センサは、SAW が伝搬しているデバイス表面に溶液を付加すると、溶液の電氣的・機械的性質による影響で SAW の音速と減衰率が変化することを利用したセンサである。実際にSAW溶液センサを用いて、ミネラル水の識別やウイスキーの識別が可能であることが既に確認されている。しかし、比誘電率が一般的に小さいオイルや有機溶媒などは、表面波の漏洩により生じる理論とのずれにより測定対象から除外されている。今回、測定が容易な溶液に直接ディップ可能なセンサを開発し、ジオキサン溶液での漏洩により生じるずれを測定し補正手法を確立した。本手法により、任意の溶液で比誘電率と導電率を測定可能なSAW溶液センサシステムを実現した。

Abstract

Shear horizontal surface acoustic wave (SH-SAW) sensors are highly sensitive in detecting the properties of liquid, which are as relative permittivity, conductivity, viscosity and mass density. In this paper, experimental results of 50 MHz two-channel SH-SAW sensors on 36Y-X LiTaO₃ are presented. The measured relative permittivity and conductivity for the liquid with different concentrations of Dioxane are shown using a relative permittivity-conductivity chart. Since SH-SAW which is propagating on the unmetallized propagation area in the liquid with a low permittivity attenuated due to a lack of energy concentration of the surface, the obtained permittivity and conductivity were slightly different from the exact values. In order to improve this drawback, a compensation method is presented.

1. まえがき

SAW溶液センサ⁽¹⁾は、2チャンネルの異なる伝搬路構造を有する弾性表面波により得られる負荷溶液の電氣的变化(比誘電率・導電率)を特定するセンサであり、溶液を少量(数 μ l)付加するのみで測定可能な特徴を有している。実際にミネラル水の識別⁽²⁾やウイスキーの識別⁽³⁾が可能であることが確認されている。しかし、比誘電率が一般的に小さいオイルや有機溶媒などは、表面波の漏洩により生じる理論とのずれにより測定対象から除外されていた。今回、任意の溶液で比誘電率と導電率を測定可能なセンサを目指し、低比誘電率時に発生する理論とのずれを補正する手法を確立し、図1に示す容易に測定可能な溶液に直接ディップするSAW溶液センサシステム⁽⁴⁾⁽⁵⁾を開発したので紹介する。

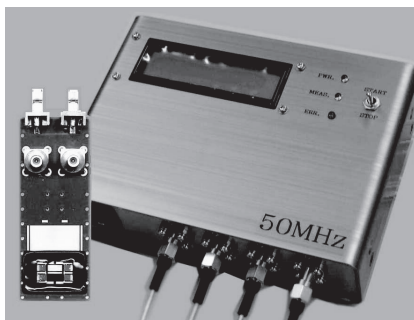


図1 SAW溶液センサ

Fig.1 Photograph of liquid Phase SAW sensor.

2. 動作原理

2.1 SAW溶液センサシステム

使用する弾性表面波は横波型(SH:Shear Horizontal)⁽⁶⁾を用いており表面に塗布された溶液への縦波変位がなく伝搬減衰が少ないため液相系で利用可能である。図2にシステムの概略図を示す。センサは、溶液の電氣的特性を測定するために2つの伝搬路構造を有している。1つは基板面が金属膜で覆われた電氣的に短絡なSHORT領域で、基板面が短絡のため伝搬する弾性表面波の電界が溶液に影響せず力学的変化(質量負荷効果・粘性)のみを検出する。もう一方は基板表面が剥き出しの電氣的に開放なOPEN領域で表面波により発生する電界が溶液に侵入するため負荷溶液の電氣的变化と力学的変化を検出する。両センシング場の差動を取ることで力学的特性と温度特性は相殺され溶液の比誘電率・導電率を測定することができる。

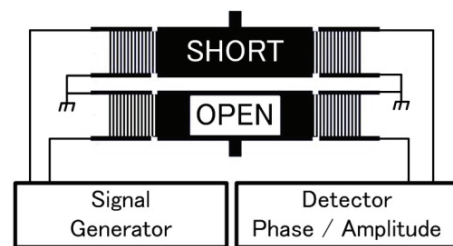


図2 SAW溶液センサ概略図

Fig.2 Liquid Phase SAW sensor configuration.

2.2 比誘電率・導電率チャート

比誘電率・導電率による特性変化を速度変化（位相差）と減衰（振幅比）で表すと式（1）・（2）のセンサ感度式が得られる。式（1）、（2）において、 K_s^2 は溶液負荷時の電気機械結合係数であり基板材料に依存した定数であり、この値が大きいほど溶液の比誘電率・導電率変化をより大きな速度変化、減衰変化としてセンシングすることができる。そのため、基板には電気機械結合係数の大きい（ $K_s^2 = 0.029$ ）中心周波数50MHz・36度回転Y-Cut LiTaO₃を用い、振動モードをX軸伝搬のSH-SAWとした。また、センサ感度式は横軸を速度変化、縦軸を減衰でプロットすることで図3に示すスミスチャートに似た比誘電率・導電率チャートが導かれる。図中、破線が導電率一定の比誘電率変化で実線が比誘電率一定の導電率変化を表している。測定試料の時間変化や、試薬調合時の特性変化、複数個のサンプルを比較する場合などに応用でき、瞬時に測定可能なディップ式が適している。

$$\frac{\Delta V_1}{V} = -\frac{K_s^2(\sigma'/\omega)^2 + \epsilon_0(\epsilon_{r1}' - \epsilon_r)(\epsilon_{r1}'\epsilon_0 + \epsilon_p^T)}{2(\sigma'/\omega)^2 + (\epsilon_{r1}'\epsilon_0 + \epsilon_p^T)^2}, \quad \text{式 (1)}$$

$$\frac{\Delta \alpha_1}{k} = \frac{K_s^2}{2} \frac{(\sigma'/\omega)(\epsilon_r\epsilon_0 + \epsilon_p^T)}{(\sigma'/\omega)^2 + (\epsilon_{r1}'\epsilon_0 + \epsilon_p^T)^2}, \quad \text{式 (2)}$$

ΔV ：速度変化， V ：音速， α ：減衰， $\Delta\alpha$ ：減衰変化， ω ：角周波数， $\sigma' \cdot \epsilon_r'$ ：被測定液体導電率・比誘電率， ϵ_r ：基準液体比誘電率， ϵ_p^T ：基板の実効誘電率， ϵ_0 ：空気の誘電率， k ：波数

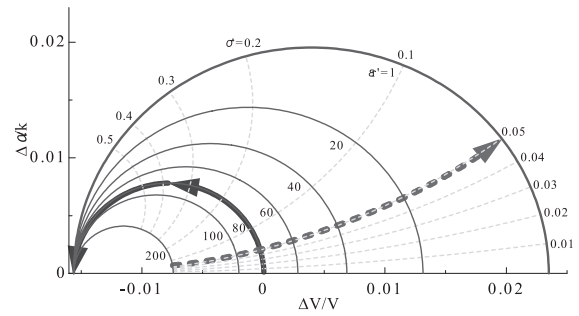


図3 比誘電率・導電率チャート
Fig.3 Permittivity - conductivity chart.

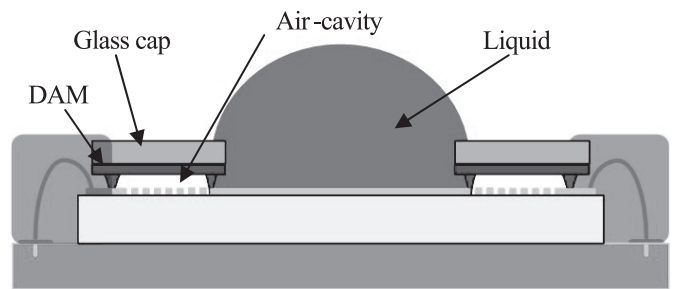


図4 SAW溶液センサ断面図
Fig.4 Diagram of SH-SAW sensor device.

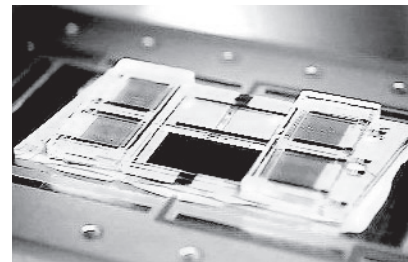


図5 SH-SAWセンサデバイス
Fig.5 Photograph of SH-SAW sensor device.

3. ディップ式溶液センサ構造

溶液に直接浸すのみで測定可能なディップ式であれば、センサとして簡便に取り扱うことができる。SAWを励振する櫛歯状電極（IDT）には溶液の浸入を阻止する空間封止構造が必要である。溶液に直接ディップ可能な空間保護封止DAMを光感光性エポキシ樹脂を用いてフォトリソグラフィにより形成した。封止構造の断面図を図4に示す。伝搬路間DAMは損失を抑えるために幅80μm（1λ）高さ50μmで形成し、その損失は1 dBと低損失を実現した。空間封止構造は、最高部のガラス基板上に接着フィルムを張りDAM上へ張り合わせ形成する。図5に顕微鏡写真を示す。IDT上はガラスキャップにより保護され溶液を負荷する伝搬路が露出していることがわかる。信号はワイヤーボンディングにより配線しワイヤーを保護する樹脂でチップ外周を封止する。チップ概観は図1に示したものである。

4. 実験結果

4.1 導電率

濃度変化により導電率変化を示す塩化カリウム（KCl）水溶液により測定しセンサ感度式との比較を行った。基準値として塩化カリウム各濃度での導電率は市販導電率計により測定した。横軸を各KCl濃度に対応する導電率とした場合の、図6に速度変化を図7に減衰変化を示す。結果、破線で示すセンサ感度式と一致し理論通りであることが確認さ

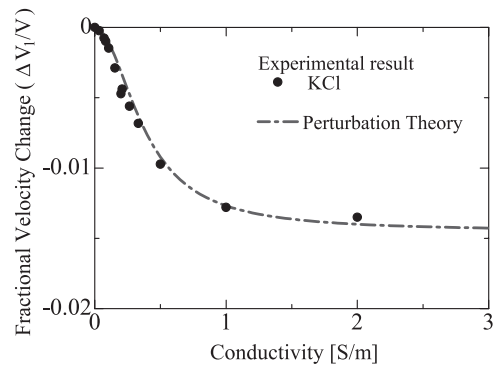


図6 導電性変化による速度変化
Fig.6 Fractional velocity change vs conductivity.

特
集

新
分
野

れた。導電率変化を示す水溶液での測定範囲は市販導電率計と同程度の性能が得られた。導電率変化は式(1)・(2)より σ'/ω と周波数に依存するため、センシング周波数を変えることにより測定範囲を任意に変更することが可能である。

4.2 比誘電率

濃度変化により比誘電率変化を示すジオキサン水溶液を用いて測定した。ジオキサンは、密度1.04、粘性率0.012mPa・sと水に近い性質を示し、比誘電率が2.1と低い値であるため利用した。表1にジオキサン水溶液の各濃度における比誘電率 ϵ_r' を示す。ジオキサン水溶液各濃度での速度変化を図8に、減衰変化を図9に示す。実験結果から、比誘電率が小さくなるにつれて式(1)と不一致が見られた。これは、図9に示すように比誘電率が小さくなると減衰量が増加しているためである。式(2)より、導電性0の場合減衰変化はゼロである。この減衰は、比誘電率が小さくなると表面波が基板内部へ漏洩するため式に考慮されていない。このように、比誘電率の小さな溶液では、センサ感度式の適用に制限があることがわかる。

表1 ジオキサン比誘電率
Table1 Dioxane Concentration

| 濃度wt% | 比誘電率 ϵ_r' |
|-------|--------------------|
| 0 | 80.37 |
| 20 | 62.38 |
| 50 | 35.25 |
| 80 | 10.99 |
| 100 | 2.102 |

5. 漏洩弾性表面波の影響

5.1 比誘電率・導電率の補正方法

センサ感度式は、溶液の定量的・定性的な比誘電率と導電率で評価が可能であり、材料定数を厳密に計算する手法に比べ比誘電率変化と導電率変化のみで取り扱えるため実用的である。そこで、適用範囲を比誘電率の小さい領域まで拡張する補正式をセンサ感度式に導入する。ジオキサン測定結果から、式(3)・(4)より比誘電率 $\epsilon_r'_1$ と導電率 σ'_1 を導出する(n=1)。図9より比誘電率の影響による減衰分式(5)を求め発生する減衰分 $\Delta\alpha'_1/k$ を相殺し、相殺後を $\Delta\alpha_2/k$ とする。次に、式(3)・(4)により減衰補正に伴う比誘電率 $\epsilon_r'_2$ 、導電率 σ'_2 を求める(n=2)。比誘電率のセンサ感度式からのずれは文献値と実験結果補正值 $\epsilon_r'_2$ の関係より式(6)で示され補正後比誘電率を $\epsilon_r'_3$ とする。

$$\epsilon_r'_m = \left(\frac{K_s^2/2 \cdot (K_s^2/2 + \Delta V_1/V) (\epsilon_0 \epsilon_r + \epsilon_r^T) - \epsilon_r^T}{(K_s^2/2 + \Delta V_1/V)^2 + (\Delta\alpha_n/k)^2} - \epsilon_r^T \right) / \epsilon_0, \quad \text{式(3)}$$

$$\sigma'_n = \left(\frac{K_s^2/2 \cdot (\Delta\alpha_1/k - \Delta\alpha_2/k) \cdot (\epsilon_0 \epsilon_r + \epsilon_r^T) \omega}{(K_s^2/2 + \Delta V_1/V)^2 + (\Delta\alpha_n/k)^2} \right) \omega, \quad \text{式(4)}$$

$$\frac{\Delta\alpha'_1}{k} = (6.61 \times 10^{-3} \exp(\frac{-\epsilon_r'_1}{7.18}) + 1.37 \times 10^{-3} \exp(\frac{-\epsilon_r'_1}{36.9}) - 1.40 \times 10^{-4}), \quad \text{式(5)}$$

$$\epsilon_r'_n = 97.2 \exp(\frac{\epsilon_r'_2}{1.21E+2}) - 1.08 \times 10^2. \quad \text{式(6)}$$

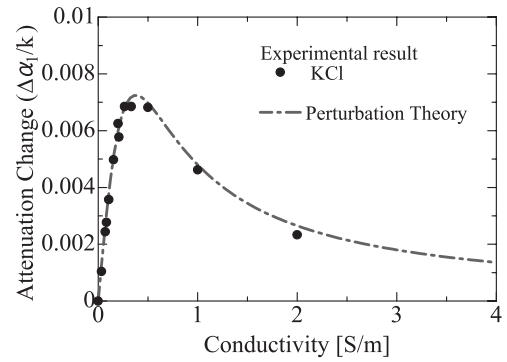


図7 導電性変化による減衰

Fig.7 Attenuation change vs conductivity.

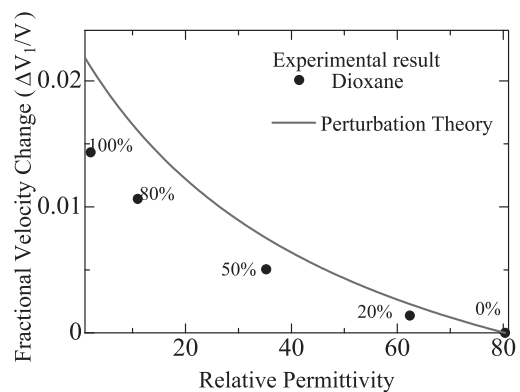


図8 比誘電率変化による速度変化

Fig.8 Fractional Velocity change vs relative permittivity.

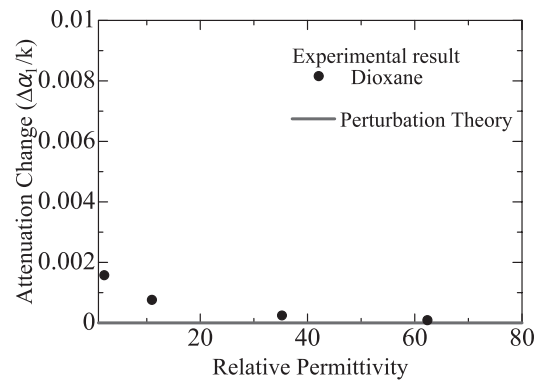


図9 比誘電率変化による減衰

Fig.9 Attenuation change vs relative permittivity.

5.2 比誘電率・導電率の補正結果

補正の有効性をエタノールにより確認した。表2にエタノール比誘電率(7)を、図10に比誘電率・導電率チャートでの結果を示す。結果、溶液種類に依存せず比誘電率を正しく読み出すことが可能であるとわかった。

表2 エタノール比誘電率
Table2 Ethanol Concentration

| 濃度wt% | 比誘電率 ϵ_r' |
|-------|--------------------|
| 0 | 80.37 |
| 20 | 68.66 |
| 50 | 50.38 |
| 80 | 33.89 |
| 100 | 25.00 |

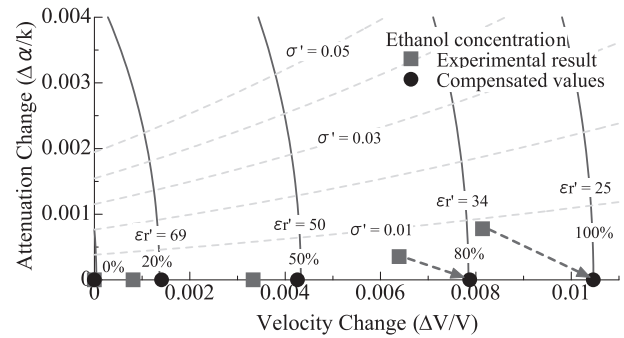


図10 エタノール測定結果

Fig.10 Permittivity-conductivity chart with compensated values for ethanol-water mixture liquids.

6. あとがき

いろいろな溶液に直接ディップすることが可能なIDT上空間封止構造を有するSAW溶液センサを開発した。センサ感度式を利用した比誘電率・導電率チャートに関して、弾性表面波の漏洩に伴う測定結果とのずれをジオキサン溶液を用いて補正式を導いた。その結果、被測定溶液の適用範囲を広げることができた。アルコール類など比誘電率が低い対象の場合に補正は必須である。今後、SAW溶液センサの複合的且つ容易に電気的性質を測定可能な特徴を活かした応用が期待される。

謝辞

本件での電気的変化によるセンサ感度式導出理論に関して、静岡大学ベンチャー企業のSAW&SPR-Tech塩川祥子元静岡大学教授に多大なる協力を頂きました。深く感謝致します。

参考文献

- (1) T. Moriizumi, Y. Unno, and S. Shiokawa: Proc. IEEE International Frequency Control Symp., 1987, p.579.
- (2) J. Kondoh, M. Nakamura, Y. Matsui and S. Shiokawa: 12th Sensor Symp., 1994, p.175.
- (3) J. Kondoh, S. Shiokawa: IEICE Trans. J78-C-2 (1995) 71 [in Japanese].
- (4) T. Kogai, H. Yatsuda, S. Shiokawa : Jpn. J. Appl. Phys. 47-5 (2008) 4091.
- (5) T. Kogai, H. Yatsuda, S. Shiokawa: EM symp. 36 (2007) 49 [in Japanese].
- (6) K. Nakamura, M. Kazumi and H. Shimizu: Proc. IEEE Ultrasonics Symp., 1977, p.819.
- (7) K. Ebihara: Kagaku Binran (Chemical Handbook) (Maruzen, Tokyo, 1984) pp. 448 and 495 [in Japanese].

用語一覧

SAW: Surface Acoustic Wave (弾性表面波)
SH: Shear Horizontal (横波型)
IDT: Interdigital Transducer (電極指)