

補助事業番号 2017M-129

補助事業名 平成29年度 MEMS圧力センサを用いた微小液滴粘度計の開発補助事業

補助事業者名 東京大学 IRT研究機構 下山勲

1 研究の概要

本事業では、わずか数 μL の液体の粘度を正確かつ高速に測定できる小型の粘度計の開発に取り組んだ。提案した粘度計は従来とは異なる測定原理に基づいた液滴振動による測定方法で、微量液滴の粘度を正確かつ高速に測定するものである。最初にデバイス製作・実験セットアップ構築を行った。次に、異なる粘度の液体に対して原理の検証実験を行った。最後、センサチップの生産・評価及び粘度計のシステム化・小型化を行った。

本事業で開発した粘度計の測定対象としては、食品・化学薬品・医薬品などを想定する。例えば、年代や健康状態に合わせて食品の粘度を調整することで、誤嚥事故を減らすことができる。また、MEMSセンサは量産性が高いので、小型の粘度計やディスポーザブルな検査チップも可能である。微量であるがゆえに、測定に要する時間は約30秒と非常に短いといった利点がある。

2 研究の目的と背景

従来の粘度計には、毛細管型、落球型、回転型などの方式があるが、いずれも、液体と固体との相対運動における摩擦と粘性との関係に基づき、粘度を推定している。液体と固体の相対運動を発生させることが必須であるため、少なくとも50 μL 以上のサンプル量が必要であった。装置も大型・高価なため、測定は専門の検査施設で行われる。また、従来の粘度計は低粘度の食品や化学薬品、医薬品には不向きであった。こうした希少かつ変質しやすい試料を取り扱う分野では、それぞれの作業現場で少ない量の試料を使って粘度を測定・評価したいという需要が多い。

そこで本補助事業では、わずか数 μL の微量な液滴の振動特性を微小なMEMS圧力センサを用いて計測することで液体の粘度を高速に測定できる小型微量液滴粘度計の実用化を目指す。

3 研究内容

(1) MEMS圧力センサを用いた微小液滴粘度計の開発(URL)

<http://www.irt.i.u-tokyo.ac.jp/reform/viscometer/index.shtml>

実験用センサ素子の製作

本補助事業の粘度センサ(図1)を構成する超撥水膜と差圧センサの製作を行った。液滴の振動を計測するために、液滴を球体に近い形状に維持できる超撥水面をセンサ上に形成する必要がある。そのために、マッシュルーム型微細構造アレイからなる超撥水膜の製作に関する研究を行った。Siウェハーに厚み約10 μm のフォトレジストをパターニングし、微

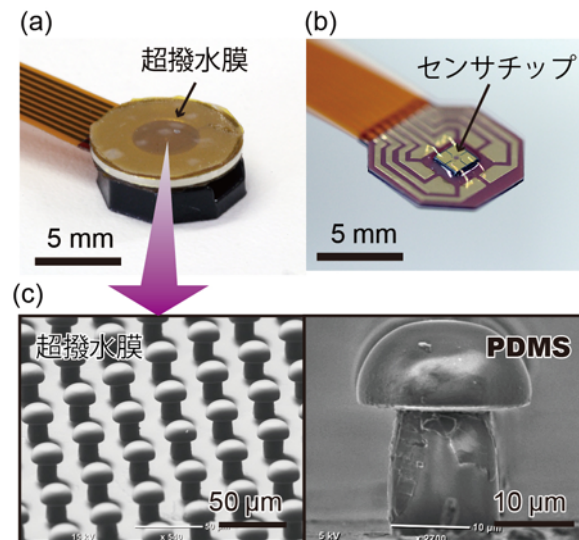


図 1：試作した粘度計

小ホールアレイを成形する。次に、Siへの等方性エッチングを行った後に、液体状のPDMS（ゴム）をスピコートして、80°Cで硬化させる。次に、硬化したゴムをアセトンで溶かし、表面に代替フロン的一种であるC₄F₈をコーティングすることで、マッシュルーム型マイクロ構造アレイの超撥水膜を完成させる。露光条件、エッチング条件等の様々なパラメータについて適切な条件を見出し、マッシュルーム型のマイクロ構造を安定的に製作できるプロセスを確立した。サイズが20 μm程度、配列周期が60 μmのマッシュルーム型マイクロ構造アレイが製作できたことを確認した。また、試作した超撥水膜の撥水性を評価するため、表面張力が20~72 mN/mの液滴を超撥水膜に滴下して、接触角度を計測した。計測結果から試作した超撥水膜は水（72 mN/m）より表面張力がかなり低い液滴に対しても大きな接触角度（すなわち球に近い形状）を維持できることが確認された。さらに、試作した超撥水膜と差圧センサを用いて粘度センサの製作と評価を行った。試作した粘度センサ全体の大きさは約8 mm × 8 mm × 3 mmである。また、試作した粘度センサの共振周波数は3.3 kHzと十分高く、数μLの体積をもつ液滴の振動（共振周波数：数百 Hz程度）を計測が可能であることを確認した。

実験セットアップの構築

液滴の振動の計測と観察を同時に行うための実験セットアップを構築した。液滴の振動を高速度カメラで撮影しながら、粘度センサからの電気信号をアンプ回路で増幅し、オシロスコープで記録する。また、加振器とファンクションジェネレータを用いたセンサに正弦波やインパルスなどの振動を与えることができるので、液滴の共振を周波数スイープや

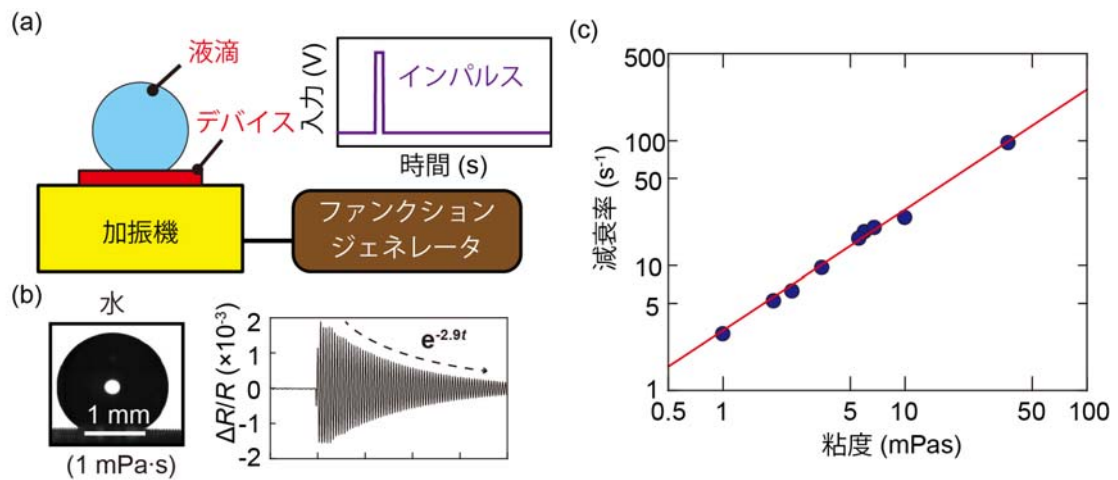


図2 (a)粘度に関する検証実験のセットアップ (b)インパルスによって発生する水滴の共振の計測結果 (c)粘度と減衰率との関係

インパルス応答により調べることが可能である。さらに、液滴のサイズによる周波数応答の違いを調べるために、所定量の微小液滴をセンサの表面に滴下できる機構を考案・製作した。センサの上方に置かれたシリンジからシリンジポンプを用いて液滴を射出する。このとき、シリンジの針の先端の直径を変えることで液滴の体積をコントロールすることができる。

検証実験

試作した粘度センサを用いて、約1.5 μL の水 (表面張力: 72 mN/m、粘度: 1 mPa \cdot s) およびシリコンオイル (HIVAC-F4、表面張力: 34 mN/m、粘度: 37 mPa \cdot s) の振動時の応答を計測した。最初に超撥水膜の中央に液滴を滴下した。次に加振器を用いて液滴を振動させ、液滴の共振周波数を求めた。そして、液滴を共振周波数で振動させ、加振を止めた後の減衰率を求めた。実験の結果、水とオイルの共振周波数はそれぞれ112 Hzと94 Hzであった。また、減衰率はそれぞれ8.7 s^{-1} と146 s^{-1} であり、粘度の違いにより大きく異なることが示された。これらの実験結果は、提案した粘度計測方法が、水や油といった液体に対して、数 μL 程度の試料で粘度が計測可能であることを示している。

上記の実験では、加振機の周波数を液滴の共振周波数に調整する必要があった。そこで、周波数調整を不要とするために、機械的なインパルスによって液滴に共振を起こす方法を検証した。幅10ms、電圧2Vのインパルスを加振機に入力し (図2(a))、液滴の共振が発生するかどうかを確認した。この実験では、液滴の体積を3 μL とし、センサ出力から求めた振動の減衰率と粘度との関係を調べた。実験結果を図2(b)と図5(c)に示す。インパルスを加振機に

入力すると、図2(b)のように液滴の共振が発生し、時間とともに減衰していくことがわかった。この結果から、インパルス入力方式でも液滴の共振を発生させることができ、インパルス入力に対するセンサ出力を利用すれば、液滴の減衰率を計算できることが検証された。

次に、異なった粘度の液体に対しても同様の実験を行い、それぞれの減衰率を求めた。計測結果から得られた粘度と減衰率との関係を図2(c)に示す。センサの出力から計算された振動の減衰率は粘度とほぼ比例することがわかったので、この関係を用いれば、センサの出力から粘度を推定することが可能である。

体液の粘度計測

試作したデバイスを用いて血液と唾液の粘度計測を行った。子牛の血液と人間（男性、32歳）の唾液、それぞれの3 μ Lのサンプルを用いて計測を行った。計測に先立ち、市販の粘度計(京都電子工業社製、EMS-1000)を用いて、試料の粘度を計測した。市販の粘度計で計測された血液と唾液の粘度はそれぞれ5.5 \pm 1.0 mPa \cdot s、7.2 \pm 1.2 1.0 mPa \cdot sであった。次に、試作したデバイスでの計測を行った。計測方法は図2(a)に示すセットアップを用いて、液滴に機械的インパルスを与え、共振を起こした。センサの応答から計算された振動の減衰率と図2(c)の結果より求められた粘度と減衰率との関係から血液と唾液の粘度がそれぞれ5.9 mPa \cdot s、7.4 mPa \cdot sとなり、市販の粘度計での計測結果と一致したことがわかった。

さらに、試作したデバイスが粘度変化の連続的計測にも適用できることを検証した。実験セットアップは図2(a)に示したものを使用した。なお、以前の単一計測の実験とは異なり、本実験ではファンクションジェネレータを用いて3秒間隔で断続的にインパルスを与え、液滴に共振を発生させた。また、全体で20分間の計測を行った。センサ応答の記録と同時にカメラを用いた液滴の観察も行い、カメラの画像から液滴の体積と接触角を求めた。試料としては、血液と水を使用した。測定開始直後の血液の液滴の体積は約4.3 μ Lであったが、蒸発により時間とともに体積が小さくなり、20分後には2.4 μ Lになった。この間のセンサの出力からは、時間とともに振動の減衰が速くなった。計測開始直後は水滴の体積が2.3 μ Lであったが、20分後には0.9 μ Lになった。センサの出力から計算された振動の減衰率とカメラの画像から得られた液滴の体積・接触角から粘度の変化を求めた。計測している20分間に、蒸発による液滴の体積が大きく変化しても、計算された水の粘度はほぼ一定であったことがわかった。血液の場合、含まれる水分の蒸発によって液滴の粘度は上昇するが、水の場合にはこの現象は起こりえない。すなわちこの結果は、提案した粘度計測手法が体積よらずに正確な粘度を算出できることが検証された。さらに重要なことに、水滴が1 μ L以下になっても計測可能であった。一方、計算された血液の粘度は時間とともに高くなった

ことがわかった。具体的に、粘度が計測開始から15分後に最初の粘度の約4倍、20分後に10倍に高くなった。この粘度の上昇は水分の蒸発だけでなく、血液の凝固にもよると考えられる。血液の凝固速度はサイズによって異なるが、これまではできなかった微小液滴の粘度のリアルタイム計測が提案手法では可能となり、微量血液の凝固過程の解析に役立つと考えられる。

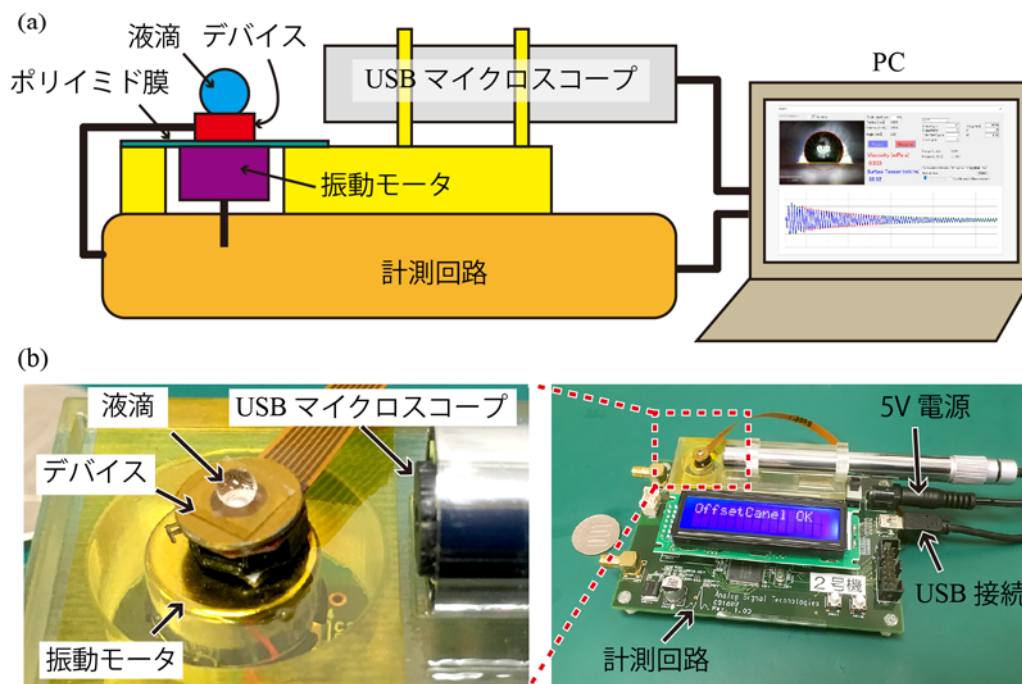


図3 試作したプロトタイプ機

プロトタイプ機の製作

提案した粘度計測手法に基づいたポータブル粘度計を実現するため、デバイスのシステム化・小型を行った。構築したシステムの概念図を図3(a)に示す。微小液滴の共振を起こすためのアクチュエータは、小型振動モータ（日本電産コパル社製、LAV11-004）を用いて実現した。厚み100 μm のポリイミド膜の下面にモータを取り付け、膜の上に試作したデバイスを設置した。また、液滴の体積と接触角を計算するために、USBマイクロスコープ（MixMart顕微鏡：A1-Microscope）を利用した。さらに、振動モータの駆動やセンサの抵抗変化率を測定できる計測回路を設計・試作し、センサ出力からの減衰率の計算は回路中のマイコンで行えるようにした。USBマイクロスコープはPCに接続され、マイクロスコープの映像から液滴の体積と接触角を計算するプログラムを作成した。

試作したプロトタイプ機の写真を図3(b)に示す。プロトタイプ機のサイズは20

cm×15cm×2cm以内である。図3(b)の左は振動モータとセンサデバイス、その上に滴下した液滴の写真を示す。また、PC側のプログラムの「Reset」ボタンを押すことで計測準備を行い、「Measure」ボタンを押すと、計測が実行される。最初にマイクロスコープが自動的に液滴を撮影し、その画像から液滴の体積と接触角が計算される。その後、計測回路がインパルスの電圧を振動モータに与え、液滴に共振を起こす。センサ出力は10kHzのサンプリング周波数で記録され、PC画面にセンサ応答のグラフが表示される。また、計算された粘度はPCの画面に表示され、計測回路側のディスプレイにも表示されるようにした。

以上の結果から、提案した粘度計のシステム化・小型化に成功したといえる。今後はワイレス通信とアプリ開発を行うことで、計測データをスマートフォンやタブレットにも表示することが可能である。

4 本研究が実社会にどう活かされるかー展望

本事業の微量液滴粘度計の研究開発では、粘度計の原理検証、センサチップの少量産試作、プロトタイプ機の製作を行った。これらの成果として、1 μ L程度の微量サンプルで粘度を正確に計測できることを実証した。また、粘度計の主要デバイスであるMEMSカンチレバー型センサチップの量産が安定的に行えることも検証された。さらに、今後の製品化・実用化に向けて小型のプロトタイプ機の製作にも成功した。

本事業で開発された粘度計は従来の粘度計とくらべて、微量量（数 μ L）かつ短時間（数秒）で計測できるという利点があり、医療、ヘルスケア、製薬等の業界で広く応用されるものと期待される。医療の現場で患者さんの血液の粘度を容易に計測でき、例えば心疾患の検査・治療にも役立つはずである。また、高価な抗体薬やDNA溶液の粘度を微量で評価できるメリットは大きく、製薬分野への応用にもつながる。

提案した微小液滴の振動計測手法は粘度のみならず、原理的には表面張力も計測可能である。例えばイオン液体の液滴にガスが拡散するときの粘度と表面張力の変化を計測することで、ガスセンサとしての利用が可能であり、各種製造工程の管理や環境のセンシングに応用可能である。

5 教歴・研究歴の流れにおける今回研究の位置づけ

申請者はこれまでに、MEMSデバイスを研究し、様々な用途で利用できる小型・高感度ピエゾ抵抗型センサを実現してきた。これらのセンサの検知部はpm変位を計測できるピエゾ抵抗型カンチレバーやビームで構成されている。申請者がこれまでに研究開発したセンサは細胞のようなマイクロメートルサイズから人間、機械、インフラ構造物などのメートルサイズにわたるマルチスケールの対象物に適用できる。また、1 Hzから1 MHzまでの超広帯域の振動を高感度に計測することが

可能である。これらのセンサを用いて、これまでは実現できなかった計測ができるようになるため、計測で得られた結果は学術的貢献にとどまらず、産業・工学応用にもつながる。

本事業では申請者のコア技術であるMEMS力センサの利点を生かして、従来困難であった数 μL のサンプル量での粘度計測が可能となった。本事業を実施したことにより、微小液滴の物理、MEMS力センサ、計測技術などの幅広い分野において多くの新たな知見が得られた。また、大学で開発した技術を社会実装する上で、様々な課題を解決するためのノウハウも得られた。今回行った事業の成果は粘度計に限らず、触覚センサ、振動センサ、圧力センサなどの様々なMEMSセンサデバイスの商品化・実用化に役立つと考えられる。

6 本研究にかかわる知財・発表論文等

特許出願：

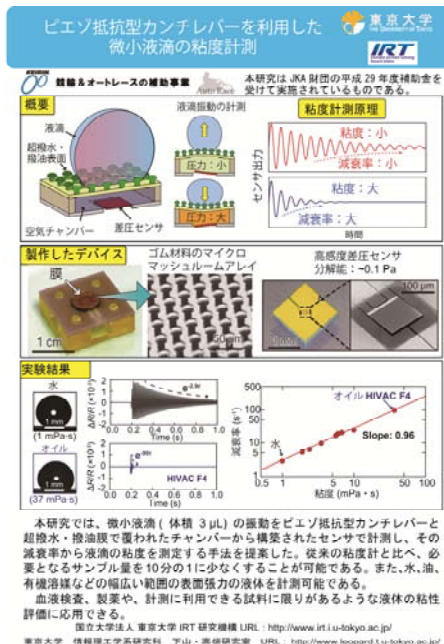
1. 下山勲、ゲンミンジュン、ゲンタンヴィン、“脈波センサ”、特願2018-25397

学会発表：

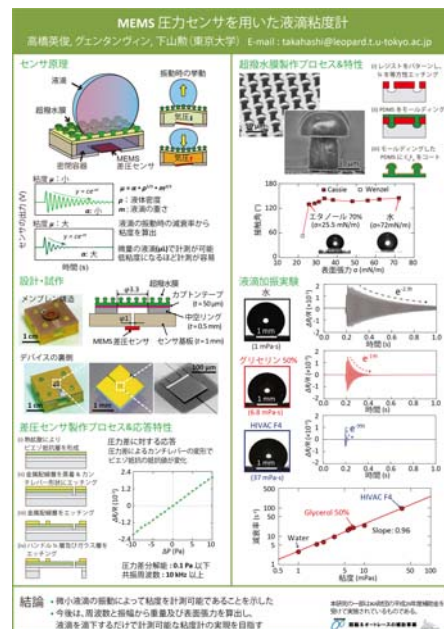
1. 高橋英俊、ゲンタンヴィン、下山勲、“MEMS 圧力センサを用いた液滴粘度計,” 第34回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム、02pm1-PS-222、広島、31 October - 2 November、2017.

7 補助事業に係る成果物

(1)補助事業により作成したもの



MEMSセンシング&ネットワークシステム展 2017と国際ロボット展2017 展示ポスター



第34回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム 発表ポスター

1. MEMSセンシング&ネットワークシステム展 2017、2017年10月4日～6日、幕張メッセ、「ピエゾ抵抗型カンチレバーを利用した微小液滴の粘度計測」のパンフレット 100部
2. 国際ロボット展2017、2017年11月29日-12月2日、東京ビッグサイト 「ピエゾ抵抗型カンチレバーを利用した微小液滴の粘度計測」のパンフレット 100部
3. 第34回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウムにおいて発表したポスター

(2)(1)以外で当事業において作成したもの

なし

8 事業内容についての問い合わせ先

所属機関名： 東京大学(トウキョウダイガク)

住 所： 〒113-8656

東京都文京区本郷7-3-1

担 当 者： 役職名:教授(キョウジュ)

担 当 部 署： IRT研究機構(アイアールティケンキュウキコウ)

E-mail: isao@leopard.t.u-tokyo.ac.jp

URL : 所属機関(研究室等)HPのトップページのURL

<http://www.leopard.t.u-tokyo.ac.jp/>