

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 20 日現在

機関番号：32665

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23760373

 研究課題名（和文） 環境ガス計測を目的とした位相同期型 QCM センサの開発
 —サブピコグラム検出への挑戦

研究課題名（英文） Development of Phase Locked type QCM for surrounding gas measurement

研究代表者

今池 健（IMAIKE TAKESHI）

日本大学・理工学部・助教

研究者番号：10548093

研究成果の概要（和文）：数ナノグラム以下の微量質量を検出可能な水晶振動子微量秤の測定精度向上，測定時間の短縮を目的とし，位相同期型 QCM を提案した．結果，1 ng の質量変化を数 V の電圧変化として検出可能な事を明らかにした．また，QCM をより高感度化するために有効な発振周波数の高周波化において振動子が発振条件を満たさなくなる問題について，原因となる電極間容量をキャンセルする手法を提案し，実際に発振可能なことを実証した．

研究成果の概要（英文）：This research showed improvements for measurement accuracy of Quartz Crystal Microbalance. We proposed phase locked type quartz crystal microbalance which could detect whit mass less than several nanograms. In the results, we showed that it could detect a mass change of 1ng as a voltage change of several volts. We suggested technique to cancel the capacity between the electrode and really demonstrated that the oscillator could oscillate.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・計測工学

キーワード：センシングデバイス

1. 研究開始当初の背景

数 ng（ナノグラム）以下の微量質量変化を水晶振動子の共振周波数変化として検出する QCM（水晶振動子微量秤）はバイオセンサとして，生体の抗原抗体反応の計測や，においセンサ等，比較的分子量の大きい計測に多く利用されている．しかし，大気中の汚染物質測定等の分子量の小さいガス測定への利用範囲は限定されている．これは，数 ppm または数 ppb といった極めて希薄な雰囲気中では QCM に付着する物質の質量が小さいためである．環境ガス計測における公定法としては，ガスクロマトグラフィー法，赤外線利用による測定，SPR（表面プラズモン共振）等が挙げられる．しかし，装置の

導入・維持コストが QCM に比べて 2 桁以上必要となるほか，装置の移動にも制限があり，測定にも長時間を要する．一方 QCM では比較的簡便で，非常に安価な上に，再現性に優れた計測が可能であることから，QCM でガス計測が実現できれば，コストの大幅な削減が期待できる．

これまで，QCM の高感度化に対するアプローチとしては，QCM 表面のガス吸着膜の吸着効率を向上させる事が主であったが，QCM の性質上，目的とする物質のみと選択的に反応し，かつ高感度な膜材料の開発は大きな困難を要する．また，従来方式の QCM では，温度変化による発振周波数のドリフトが避けられないほか，周波数カウンタを用いて

計測を行うため、±1カウントエラーの影響やゲート時間による待ち時間が生じる。

2. 研究の目的

本研究では、QCMの感度向上と、温度補償、測定時間の短縮のために、主に電子回路側の性能を向上させ、従来型QCMの問題点を解決した新たなQCMの実現を目的とし、位相同期型QCMを提案しその性能について研究を行った。

3. 研究の方法

本研究では、従来型よりも高性能なQCMとして、位相同期型QCMを提案した(図1)。

位相同期型QCMでは、1枚の水晶基板上に2組の電極対を付加する事で、同一の特性を持った水晶振動子を用いる(図2)。位相同期型QCMはこの振動子を用いて、2台の水晶発振器を作製し、PLL(位相同期ループ)を構成する。

片側の水晶振動子は基準発振器としてフリーラン状態で発振させるのに対し、もう一方は質量検出用として使用する。位相同期型QCM形式では、水晶振動子の温度に変化が起こった場合でも、両振動子が同じ温度特性を持っているため、温度変化による発振周波数の影響が相殺されることになる。そして、位相同期ループによって、2台の発振周波数が常に同一となるよう自動制御されるため、質量検出側の振動子に物質付着による質量増加がおこると f_2 が低下するため、それを f_1 と同一にするために負帰還電圧 V_d が変化する。この V_d を測定することで、質量変化に基づく発振周波数の変化を、電圧の変化として

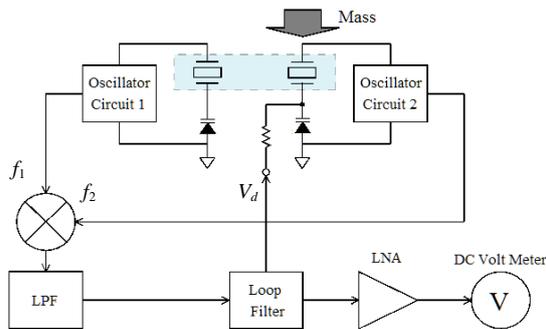


図1 位相同期型QCMの構成

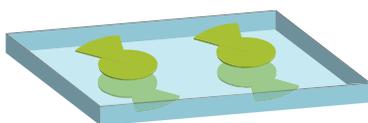


図2 位相同期型QCMの水晶振動子

検出可能となる。

さらに、フリーラン状態の発振器1の発振周波数を周波数カウンタでモニターすることで、周囲環境の温度を測定可能なため、温度変化により生じる発振周波数の誤差をマイクロコンピュータで補正することでより高性能な温度特性の補正が可能となる。

本研究では、センサとなる水晶振動子部分と回路部分の設計・作製・性能評価を行った。

4. 研究成果

まず、位相同期型QCMの感度について検討を行った。位相同期型QCMは従来のQCMとは異なり、質量の変化を周波数変化として検出するのではなく、変位した周波数を元に戻すための制御電圧を検出する形式であるため、QCMセンサ上に質量変化が生じた場合の共振周波数変化を想定し、周波数が変化した場合にどの程度の電圧として検出できるか検討を行った。図3に示す、水晶振動子をRLCの等価回路で表した水晶発振回路の簡略化モデルおよび、バラクタダイオードに直並列に容量を付加しバラクタダイオードの感度を低下させたモデル(図4)について比較を行った。ここでは、ループ内のリ

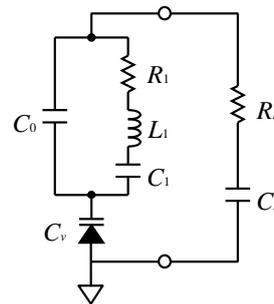


図3 発振回路モデル

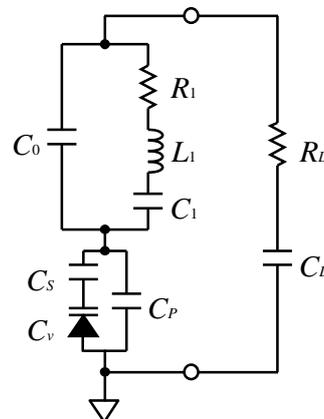


図4 周波数の感度を調整した発振回路モデル

表1 水晶振動子等価パラメータ

$R_1[\Omega]$	$L_1[mH]$	$C_1[fF]$	$C_0[pF]$
10	15.9	19.6	4.3

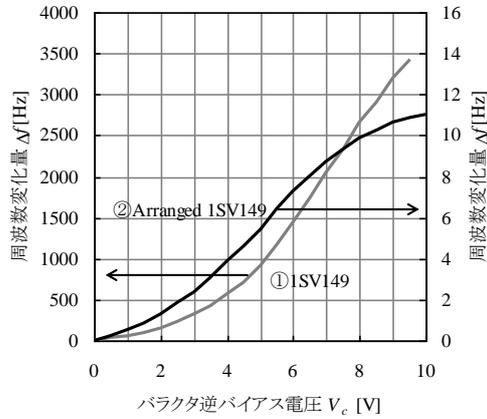


図5 バラクタ感度の違いによる周波数の変化量

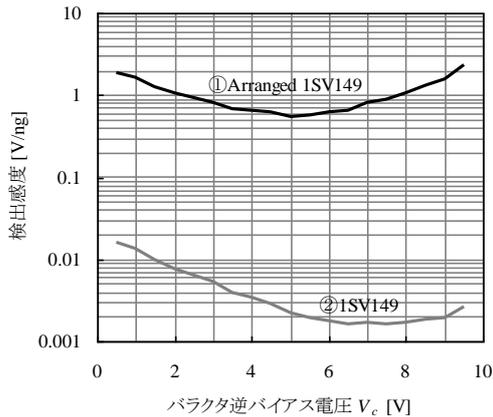


図6 1 ngあたりの電圧検出感度

アクタンス成分が零となる周波数を発振周波数として用いた。水晶振動子の等価定数は表1とし、バラクタダイオードは、700pFから20pFまでの可変幅を持つもの(1SV149)を想定した。また、容量可変幅を制限した図4の回路については、500pFから460pFの可変幅とした(Arranged 1SV149)。この結果、バラクタダイオードに印加される制御電圧と周波数変化量は図5の特性が得られた。図6は図5の結果より、質量変化1ngあたりの出力電圧(検出感度)を算出したもので、バラクタ単体の場合では、2mV/ngから20mV/ng程度の出力感度となったが、バラクタダイオードに容量を付加した場合には0.5V/ngから2V/ng程度の検出感度が得られ、100倍以上に改善できることを明らかにした。

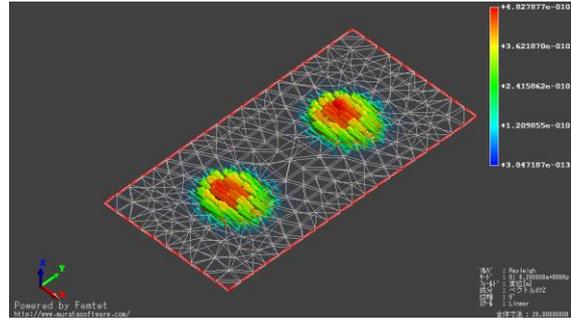


図7 位相同期型QCM水晶振動子の振動モード解析結果

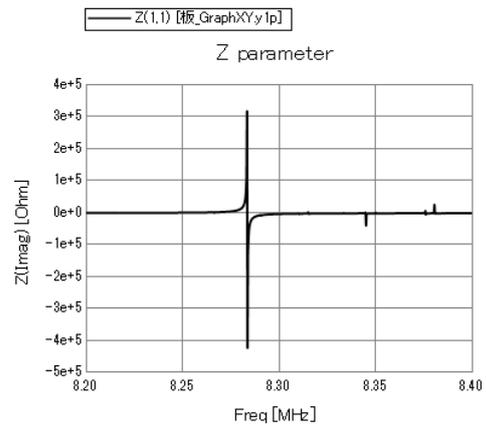


図8 位相同期型QCM水晶振動子の振動モード解析結果

また、検出感度の直線性も改善されることを明らかにした。さらに、この V_d を低雑音増幅器で増幅することで感度を2桁向上できる見込みを得た。

位相同期型QCMでは1枚の水晶板上に2つの水晶振動子を作製する必要がある。このとき、水晶振動子間の距離は可能な限り接近させたほうが、両振動子のインピーダンス特性、温度特性の点では有利である。しかし、距離が近くなるにつれ、一方の振動子の振動が他方の振動子へ伝わることによる影響が予想された。位相同期型QCMの場合、両振動子がそれぞれ独立に振動する必要があり、振動子間のアイソレーションが低下すると、引き込み効果によって、PLLの制御とは無関係に両周波数が一致して、負帰還制御が機能しなくなる。そこで、有限要素法による計算機シミュレーションで、振動子の寸法を種々変更し、共振特性とクロストークに着目した設計を行った(図7、図8)。計算機シミュレーションの結果を元に、図9に示す水晶振動子を作製した。振動子の特性については、ベクトルネットワークアナライザを用いて、インピーダンス特性は反射法、アイソレ

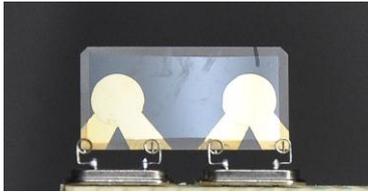


図9 作製した位相同期型QCM
水晶振動子

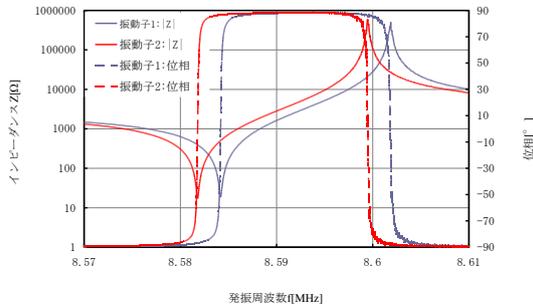


図10 インピーダンス, 位相特性

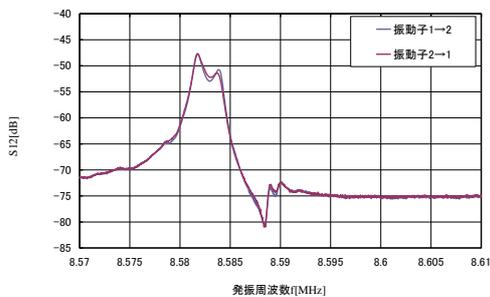


図11 アイソレーション特性

表2 振動子等価パラメータの比較

	$R_1[\Omega]$	$L_1[\text{mH}]$	$C_1[\text{fF}]$	$C_0[\text{pF}]$	$Q \times 10^3$	$f_0[\text{MHz}]$
A	18.6	16.0	21.4	5.2	46.5	8.58419
B	17.1	14.9	22.9	5.6	47.0	8.58180

ーションは伝送法により測定を行った。特性の一例としてインピーダンスと位相特性は図10を得た。また、振動子間のアイソレーション特性は図11が得られた。個々の振動子に着目すると表2の等価定数が得られ、共振周波数の差は約2kHzであった。水晶振動子の性能を表すQ値に着目すると、市販の水晶センサと同程度が得られた。また、周波数差に関しては、振動子と直列にリアクタンス素子を挿入することで補正可能な周波数差であり、位相同期させるという観点から見た場合、問題とはならないことを明らかにした。また、アイソレーションに関しては振動が最大となる直列共振周波数において45dB以上の減衰が得られた。さらに、クロストークの影響を改善する方法として、2組の水晶振動子を異なる周波数で振動させ、発振器の出力

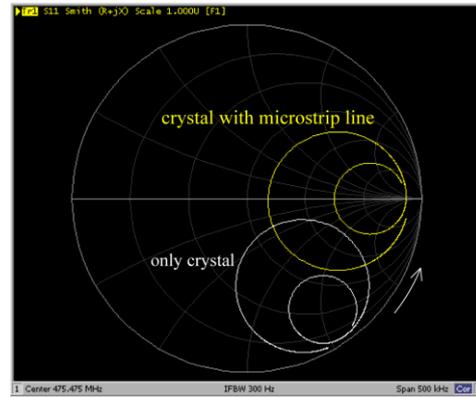


図12 高周波化における問題点を解決した振動子のインピーダンス特性

表3 提案回路の有無による振動子等価パラメータの比較

	$R_1[\Omega]$	$L_1[\text{mH}]$	$C_1[\text{fF}]$	$C_0[\text{pF}]$	$Q \times 10^3$
Crystal	60	0.44	0.25	3.8	22
With MSL	64	0.47	0.24	0.08	22

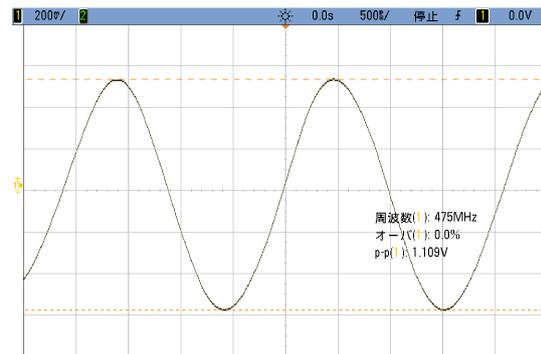


図13 提案回路を用いた場合の発振波形

を逡倍・分周することで、位相比較器に入力する周波数を同一にする形式の周波数オフセット位相同期型QCMの着想に至った。

作製した位相同期型QCMの振動子は、10MHz程度では振動子として十分に機能したが、より感度を向上させるために周波数を高周波化した結果、水晶振動子の共振特性が表れず、機能しない点が問題となった。これは、水晶振動子の電極によって構成されるコンデンサのインピーダンスが高周波化によって低下し、水晶駆動電流が振動子のモーションアルーム側ではなく、電極容量をバイパスするために起こった。このため、水晶振動子と並列にインダクタンスを接続し、共振周波数において電極容量と並列共振させることによりキャンセルする方法を提案した。高周波領域では損失の少ない可変インダクタを

実現するのは困難であるため、マイクロストリップラインによる分布定数線路上に可変コンデンサを接続した、等価可変インダクタを用いた。

図1 2に水晶振動子単体と、本手法を用いた特性を示す。同図より、水晶振動子単体では実数軸上をインピーダンス軌跡が通過しておらず誘導性を示していないが、提案した手法では、インピーダンス軌跡が容量性から誘導性へと変化しており、一般的な水晶振動子の特性を得られることを明らかにした。このときの振動子の等価定数はそれぞれ表3に示すとおりで、提案回路を付加したことによる振動子の性能低下はほとんど見られないことを明らかにした。この提案手法を用いて水晶発振器を作製した結果、従来形式では発振しない振動子でも図1 3に示すように発振可能な事を明らかにした。

この手法はこの研究にのみ利用できるものでなく、たとえばGHz帯の水晶発振器をより高周波化する場合にも有効なほか、溶液中などでQCMを使う場合のように、水晶振動子の等価抵抗が大きくなり、励振電流が電極容量をバイパスするような場合にも、非常に有効な手立てとなるものである。

位相同期型QCMの性能を評価するために、質量変化を擬似的に再現するため、フリーラン状態の発振器の周波数を低下させ、そのときのVdを測定した結果、1ngの質量変化に相当する周波数変化に対し、0.3Vから0.9Vの変化として検出可能な事を明らかにした。

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)

[雑誌論文] (計1件)

① 今池健, 作田幸憲, 関根好文, QCMセンサの精度向上を目的とした高周波水晶振動子の電極間容量キャンセル手法, 電気学会論文誌C (電子・情報・システム部門誌), 査読有, Vol.132, No.11, pp.1882-1883
DOI : 10.1541/ieejieiss.132.1882

[学会発表] (計5件)

① 山田翔平, 今池健, 作田幸憲, 関根好文, 位相同期型QCM用水晶振動子の作製とその評価, 平成24年電気学会全国大会, 1-116, p.144(2013)

② 今池健, 作田幸憲, 関根好文, QCMセンサの精度向上を目的とした水晶振動子のC0キャンセルに関する一検討, 電気学会精密周波数の発生と高精度分配のための次世代回路技術調査専門委員会, 招待講演, (2012)

③ 今池健, 作田幸憲, 関根好文, QCMセンサの精度向上を目的とした水晶振動子のC0キャンセルに関する一検討, 電気学会東京支部連合研究会 (計測研究会), IM-12-039(2012)

④ 金子陽祐, 今池健, 作田幸憲, 関根好文, 位相同期型QCMの検出感度に関する検討, 電気学会東京支部連合研究会 (計測研究会), IM-11-038(2011)

⑤ Yousuke Kaneko, Takeshi Imai, Yukinori Sakuta, Yoshifumi Sekine, A Proposal of Phase Locked Type Quartz Crystal Microbalance(QCM), The 26th International Technical Conference on Circuits/Systems, Computers and Communications, 3-007, pp.373-374(2011)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

今池 健 (IMAIKE TAKESHI)

日本大学・理工学部・助教

研究者番号 : 10548093