

令和 4 年 5 月 27 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K04181

研究課題名(和文)フルデジタル位相検出型QCMの開発

研究課題名(英文)Development of Fully Digital Phase Detection Type Quartz Crystal Microbalances

研究代表者

今池 健 (IMAIKE, Takeshi)

日本大学・理工学部・准教授

研究者番号：10548093

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：数ナノグラム以下の質量変化を共振周波数の変化として検出可能なQCM(Quartz Crystal Microbalances:水晶振動子微量秤)について、より短い測定時間で測定精度を向上させるための研究を行った。従来の測定方法では水晶振動子を発振回路に組み込み、発振周波数の変化を読み取るために周波数カウンタを使用していた。この方法ではカウンタのゲート時間によって測定時間が決まるだけでなく、周波数測定精度を向上するためにはゲート時間をより長くする必要があり、測定精度向上と測定時間の短縮は相反するものであった。本研究成果によって時間分解能はマイクロ秒のオーダーに短縮され、周波数分解能も6桁向上した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来方式のQCMを用いた微小質量計測では、その時間分解能が数ミリ秒～数秒間隔で周波数分解能も数ヘルツ程度であった。本研究成果では時間分解能がマイクロ秒のオーダーで周波数分解能がミリヘルツ以下という超高速・超高分解能なQCM計測が可能となった。この研究成果はバイオセンサ、においセンサなどの更なる性能向上が実現可能で、医療分野や環境モニタリングなど多方面の分野において研究発展に寄与するものである。

研究成果の概要(英文)：We conducted research to improve the measurement accuracy of QCMs (Quartz Crystal Microbalances), which can detect changes in mass of less than a few nanograms as changes in resonance frequency, in a shorter measurement time. In conventional measurement methods, a crystal unit is incorporated into an oscillation circuit and a frequency counter is used to read changes in the oscillation frequency. In this method, not only is the measurement time determined by the gate time of the counter, but also a longer gate time is required to improve the frequency measurement accuracy, which is a contradiction between improving measurement accuracy and reducing measurement time. This research has reduced the time resolution to the order of microseconds and improved the frequency resolution by six digits.

研究分野：電子計測・電子回路

キーワード：QCM 瞬時周波数計測 瞬時位相 水晶発振器 SDR

1. 研究開始当初の背景

数ナノグラム以下の微小質量変化を水晶振動子の共振周波数として検出する QCM (Quartz Crystal Microbalances: 水晶振動子微量秤) はバイオセンサとして抗原抗体反応の計測や、においセンサ等に幅広く利用されている。研究代表者はこれまでに QCM の測定時間短縮と測定精度向上を目的とした周波数オフセット位相同期型 QCM (Frequency Offset Phase Locked QCM: FOPL-QCM) を提案し、1 ピコグラムの質量変化を数ミリボルトの電圧変化として検出可能なことを明らかにした。しかし FOPL-QCM では高感度化と高速化のために、従来の QCM と比較した際にダイレクトデジタルシンセサイザ (DDS)、アナログ PLL 回路、低雑音増幅器を必要としたため回路が複雑化し、高周波回路設計や実装技術が必要になるなど低コストで手軽という QCM メリットが失われた。

2. 研究の目的

本研究では FOPL-QCM の測定時間をより短縮し、測定精度を更に向上させるだけでなく、より低コストな新しい QCM 計測システムの実現を目的とした。そこで、よりシンプルな構成で高性能な QCM を実現するために DDS 等の周波数変換器とフィードバック系を排除し、近年安価になった高速・高分解能 AD コンバータと FPGA を組み合わせることで、QCM の発振信号を直接サンプリングし、数値演算のみで超高速・高精度な QCM を実現するフルデジタル位相検出型 QCM (Fully Digital Phase Detection QCM: FDPD-QCM) を提案した。FDPD-QCM は発振器信号の位相揺らぎをマイクロ秒以下の分解能で計測可能な全デジタル型位相雑音測定法が基になっており、得られた瞬時位相の時間微分値から瞬時周波数を算出することが最大の特徴である。これにより、周波数カウンタを使用した従来の QCM のようにカウンタのゲート時間によって時間分解能と周波数分解能が制限されることがなくなり、高速化と高精度化が実現可能となる。

3. 研究の方法

本研究で提案した FDPD-QCM は図 1 に示すように 1 枚の水晶板上に 2 組の水晶振動子を構成したツインセンサのうち、一方を周波数基準、他方を質量検出用とする構成である。このツインセンサを用いた 2 台の発振器出力は 2 つの AD コンバータでそれぞれサンプリングされ、DDC (Digital Down Conversion) 部の演算により瞬時位相値が得られる。ここで両瞬時位相値を減算し微分することで、瞬時周波数の差に変換される。ツインセンサを用いて 2 つの信号を減算することにより、周囲の温度変化による周波数のふらつきがキャンセルされるほか、ADC を駆動するクロックの位相雑音も除去される。サンプリングされた時間波形を演算によって瞬時位相に変換する DDC 部では直交復調の原理を応用し、図 2 に示すように NCO (Numerical Controlled Oscillator) を用いて発振器信号の周波数と同一周波数で位相が 90° 異なる正弦波データを乗算後、逆正接演算 (\tan^{-1}) によって位相を算出した。水晶振動子は約 30 MHz の共振周波数で、25 pg の質量増加に対して 1 Hz 周波数が低下するセンサを使用した。発振回路は図 3 に示すように無調整型水晶発振器にバッファ回路を付加し 30 MHz の発振信号をサンプリングするために 16 bit、160 MHz の AD コンバータを使用した。QCM センサ上に

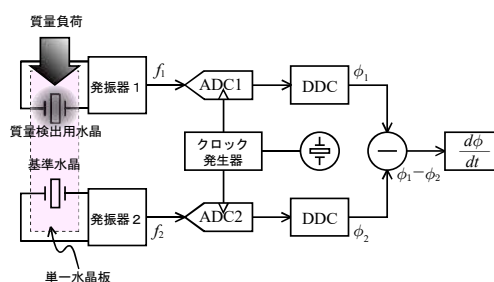


図 1 フルデジタル位相検出型 QCM (FDPD-QCM) の構成図^{②③}

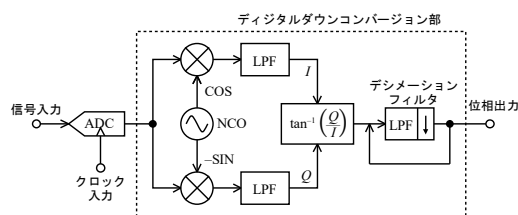


図 2 デジタルダウンコンバージョン (DDC) による位相算出原理図^{②③}

ピコグラムオーダーの質量増加を与えるのは困難であるため、質量変化による周波数変化を与えるために、水晶振動子と直列にバラクタダイオードを挿入し、印加する逆バイアス電圧を制御することで質量変化を模擬した。FDPD-QCM の時間分解能と周波数分解能の性能を明らかにし優位性を示すため、周波数カウンタを使用する従来型の QCM との比較を行った。2010 年代の文献^①によると、周波数カウンタはその進化に応じて 1970 年代から 2000 年代まで 10 年ごとに 4 つの世代に分類されており、本研究では安価なユニバーサルカウンタに使用されている第 2 世代のレジプロカル方式のカウンタおよび、レジプロカル方式にアナログ補間器を組み合わせた第 3 世代のカウンタを使って、PDFD-QCM との比較を行った。さらに次世代となる第 4

世代の周波数カウンタについては回帰分析による補間を行っているため、QCMのように時間と共に周波数が変化する用途では測定誤差が大きくなることから比較の対象外とした。

4. 研究成果

質量変化模擬機能を付加した FDPD-QCM 発振回路を作製した結果、74 Hz/V の周波数可変感度が得られ、前述のツインセンサの仕様から 1.85 pg/mV の質量変化に相当することが明らかとなった。

次に QCM 電極上の質量負荷が時間と共に変化する状態を想定して、質量検出側のバラクタダイオードに 3 Hz の三角波を印加し、発振周波数をスイープした状態で瞬時周波数の変化を測定した。図 4 に測定結果の一例を示す。FDPD-QCM では測定結果が時間軸、周波数軸共に連続でプロットされているのに対し、ユニバーサルカウンタでは周波数分解能が 10 Hz、時間分解能が 1 ms となっていることがわかる。これは内部発振器 10 MHz のレシプロカルカウンタをゲート時間 1 ms としたことから周波数分解能は 4 桁、時間分解能は 1 ms となるためである。周波数分解能を 1 桁向上するためにはゲート時間を 10 倍にすれば良いが、時間分解能も 10 倍となるため、周波数分解能の向上と時間分解能の向上は両立できない。一方 FDPD-QCM の測定結果は 160 MSamples/s のレートで得られた瞬時周波数データを 1/10 デシメーションフィルタを 4 回通過させることで 16 kSamples/s へ間引いた出力であるが、時間分解能については 62.5 μ s、周波数分解能は 10 桁が得られた。さらに高性能な第 3 世代ユニバーサルカウンタとの比較を図 5 に示す。第 3 世代ユニバーサルカウンタは補間器によって周波数分解能と時間分解能が向上しているものの、ゲート時間が 1 ms では周波数値にばらつきが見られる。一方 FDPD-QCM ではデシメーション回数 4 回（時間分解能 6.25 μ s）の条件においても十分高精度な周波数測定が実現できていることがわかる。以上の結果より、本研究により従来型 QCM の性能を大幅に上回る次世代 QCM を実現することに成功した。QCM の超高速・超高分解能計測を可能にした本研究成果は従来のバイオセンサやおいセンサだけでなく、より希薄な雰囲気中におけるガスセンサとしての応用や、第 5 世代方式のユニバーサルカウンタの可能性を示すなど国内外で多大なインパクトを残した。

<引用文献>

- ①Staffan JOHANSSON, 堀田享士, 周波数カウンタ, レーザー研究, Vol.39, No.10, pp.775-779 (2011)
- ②白井亜紀利, 今池健, QCM の測定分解能向上のための新手法, 電気学会電子回路研究会資料, 2019 (80), pp.75-78 (2019)
- ③今池健, フルディジタル位相検出型 QCM, 電気学会論文誌 A (基礎・材料・共通部門誌), Vol.141, No.9, pp.498-503 (2021)

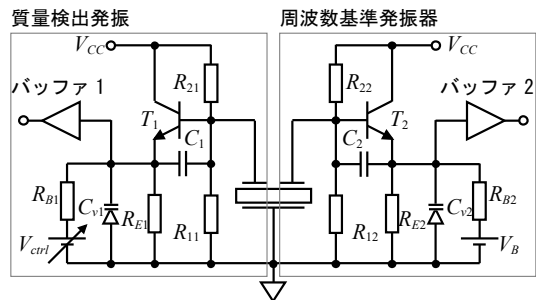
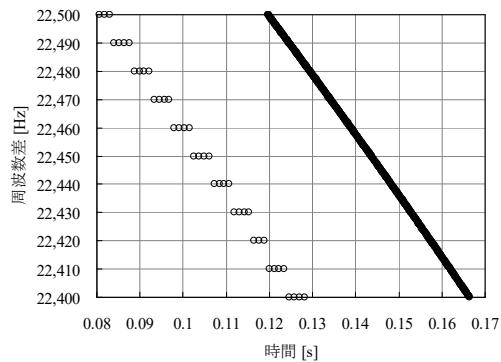
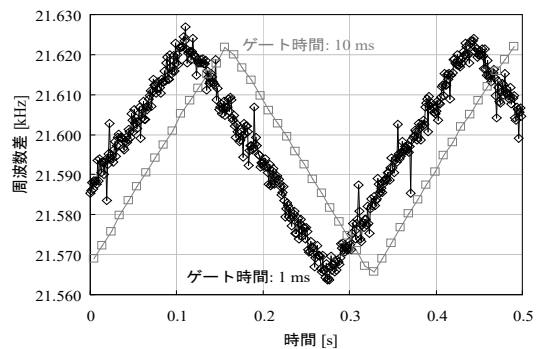


図 3 微小質量変化の模擬機能を有する FDPD-QCM 発振回路^{②③}

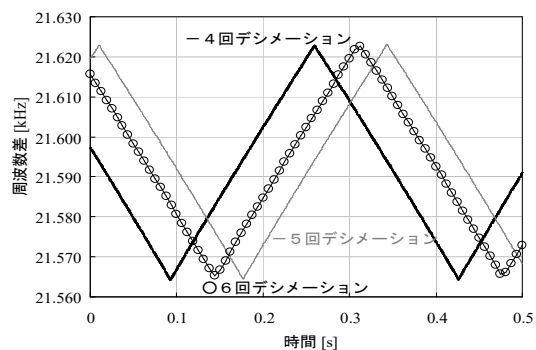


● : FDPD-QCM ○ : Univ.カウンタ

図 4 FDPD-QCM と第 1 世代ユニバーサルカウンタによる周波数変化の計測結果^{②③}



(a) 第 3 世代ユニバーサルカウンタ



(b) FDPD-QCM

図 5 測定性能の比較^{②③}

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1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 Imaike Takeshi	4. 巻 141
2. 論文標題 Fully Digital Phase Detection Quartz Crystal Microbalances	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials	6. 最初と最後の頁 498 ~ 503
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1541/ieejfms.141.498	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3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 白井亜紀利, 今池健
2. 発表標題 QCMの測定分解能向上のための新手法
3. 学会等名 電気学会 電子回路研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 白井亜紀利, 今池健
2. 発表標題 フルデジタル位相検出型QCMの提案
3. 学会等名 電気学会東京支部千葉支所研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山口遼太, 今池健
2. 発表標題 QCMの物質堆積位置と検出感度に関する基礎的検討
3. 学会等名 電気学会東京支部千葉支所研究発表会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------