

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 3 月 31 日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360197

研究課題名（和文）

超高感度磁気センサを用いた超低磁界 NMR 資源探査システムの構築

研究課題名（英文）

Development of Ultra-Low Field NMR Detection System for Underground Resources using Highly Sensitive Magnetic Sensor

研究代表者

田中 三郎（TANAKA SABURO）

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：10271602

研究成果の概要（和文）：

核磁気共鳴(NMR)は静磁場中で原子が固有周波数の磁気エネルギーを吸収・放出する現象で、これを利用した地中の石油貯留層を探査する地下資源探査システムの研究開発に取り組んだ。rf-SQUID に結合したシステムを作製し、地磁気レベルの低磁場を用いてプロトン ^1H の NMR 信号の計測を行なった。実験の結果、 ^1H のピーク信号が確認でき、このときの SN 比(信号対雑音比)は 7 以上の良好な結果を得ることができた。よって、地磁気中の ^1H -NMR を計測可能な SQUID 地磁気 NMR システムの基礎を構築することができたと考えられる。

研究成果の概要（英文）：

Nuclear magnetic resonance (NMR) is a phenomenon that atoms absorb and radiate electromagnetic energy at a frequency corresponding to a static field applied to the object. One of the applications of EMF(Earth Magnetic Field)-NMR is NMR logging tool. This technology is a method to prospect oil reservoir by detecting the NMR signal of ^1H protons in porous oil reservoir in EMF. We have successfully obtained the ^1H NMR spectrum, which has a signal to noise ratio (SNR) of more than 7. Therefore we conclude that we have developed a prototype of SQUID-EMF-NMR system as a basis for NMR logging tool.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	4,500,000	1,350,000	5,850,000
2010 年度	3,800,000	1,140,000	4,940,000
2011 年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
年度			
年度			
総計	11,900,000	3,570,000	15,470,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：計測工学

キーワード：低磁場、SQUID、磁気センサ、石油資源探査

1. 研究開始当初の背景

石油価格の高騰を受け、北アメリカやメキシコではこれまで採算性が悪く利益の出な

かった油井が見直される状況にあり、新規油井開発のための効率のよい地下資源探査技術の開発は急を要している。SQUID磁気

センサは低周波において超高感度特性を示すので、我々はこれを用いた石油やガスなどの天然地下資源を探索するための低磁場 NMR（核磁気共鳴）装置を開発する。

核磁気共鳴（NMR：Nuclear Magnetic Resonance）は、静磁場中で原子が固有周波数の磁気エネルギーを吸収・放出する現象で、物質の同定や構造解析を行う手法である NMR 分光法などに用いられる。この原理を応用した NMR 地下資源探索システムでは、超高感度検出が期待される。

2. 研究の目的

本研究は超高感度 SQUID 磁気センサを用いた地下資源探査用地磁気 NMR システムの開発を目的とした。

3. 研究の方法

地下の石油層の探査を目的としたときに、SQUID 磁気センサで直接 NMR 信号の検出を行なうことは難しい。図 1 に SQUID によって直接 NMR 信号を検出する場合の、コイル(電磁石)によるサンプルへの分極磁場印加時の様子を示す。この場合、SQUID を分極磁場と垂直な方向に配置し、サンプルに近づけて信号取得を行う。しかし、サンプルに分極磁場を印加した際、コイルが有限長であるために、磁場の垂直成分が SQUID へ印加される。SQUID はある値以上の磁場にさらされると、超伝導薄膜中の粒界や結晶欠陥に磁束がトラップされることで $1/f$ ノイズが増加することが知られている。そこで、我々は分極磁場を増大させて NMR 信号強度を向上させて、測定可能範囲を大きくすることができる常伝導磁束トランス法を考案した。図 2 に常伝導磁束トランス法の概略図を示す。SQUID を磁気シールド容器内に設置し、環境磁気ノイズを遮蔽した状態で、サンプルからの NMR 信号を磁束トランスのピックアップコイルで検出してインプットコイルに伝達する。その信号はインプットコイルと誘導的に結合された SQUID へ磁場として伝達される。この方式では、分極磁場を増大させて、測定範囲を増やすことができる。さらに、SQUID は磁気シールド内に置かれるので磁束トラップの発生が防止されて、 $1/f$ ノイズの増大を抑えることができるというメリットがある。

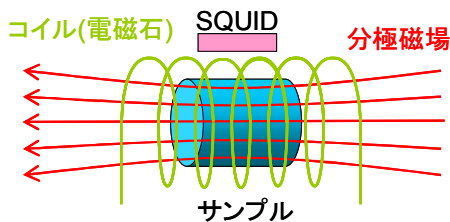


図 1 SQUID 直接検出法の概略図

開発した SQUID 地磁気 NMR システムの概略を図 3 に示す。本システムは、高温超伝導 (HTS)-rf-SQUID 磁気センサ、SQUID と磁氣的に結合している常伝導磁束トランス、静磁場を印加する常温ヘルムホルツコイル型静磁場コイル、磁場補償コイル、分極を行う永久磁石、サンプル移動機構、AC パルスを印加する AC コイル、ファンクションジェネレータ、遅延パルス発生器、電流源、低温容器(デューワー)、磁気遮蔽用 3 層パーマロイシールド、SQUID エレクトロニクス、スペクトラムアナライザなどから構成されている。静磁場コイルは、地面へ向かって約 50° の伏角(水平面からのずれの角度)で、地磁気方向(z 軸方向)と磁場成分が一致する方向に設置した。永久磁石、AC コイルは磁場成分が地磁気に対して直交するようにし(y 軸方向)、また、磁束トランスのピックアップコイルも同様に設置した(y 軸方向)。rf-SQUID と磁束トランスのインプットコイルは、磁気遮蔽用 3 層パーマロイシールド内に置かれたデューワー内で液体窒素により冷却されており、両者は磁氣的に結合している。

次に NMR 信号取得の順序を述べる。サンプルが永久磁石で分極され、信号を検出するピックアップコイルまで、パイプ内をスライドして移動する。このとき、常に存在する静磁場中にサンプルが曝され、磁化モーメントが静磁場方向に向き、歳差運動をすると共に緩和される。次に、AC パルスを印加することでモーメントを励起させ、AC パルス印加後に放出される NMR 信号をピックアップコイルで検出する。ピックアップコイルで検出された NMR 信号は磁束トランスのインプットコイル

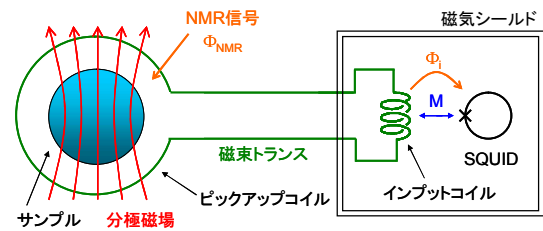


図 2 常伝導磁束トランス法の概略図

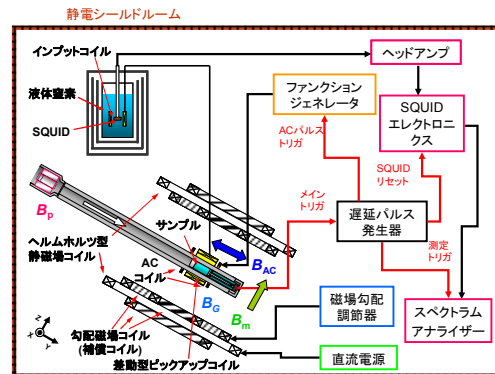


図 3 rf-SQUID-NMR のシステム構成

を介して rf-SQUID へ伝達される。rf-SQUID の出力はスペクトラムアナライザに入力され測定・周波数解析される。図 4 に、本実験で用いた NMR 計測のパルスシーケンスを示す。

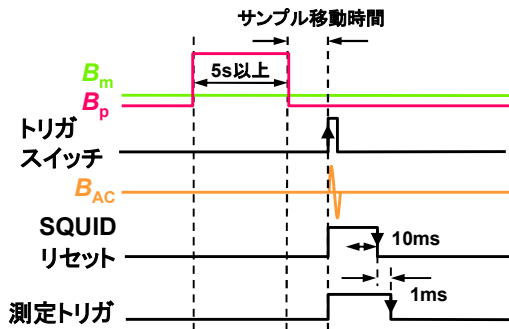


図 4 水サンプル外観

4. 研究成果

実験ではサンプルとして 10 ml の水を使用した。このサンプルを用いて、装置の感度の評価を行った。図 5 に水の入ったサンプル容器の外観写真を示す。表 1 に実験の条件を示す。印加した静磁場強度は約 45 μT であり、これはプロトン ^1H のラーモア周波数、約 1917 Hz に対応する。分極には円筒型永久磁石を用いて 270 mT の分極磁場強度を印加した。このようにして、プロトン ^1H の NMR 信号を rf-SQUID で検出し、そのスペクトルをスペクトラムアナライザで計測した。

図 6 にスペクトラムアナライザで計測したプロトン ^1H の周波数スペクトルを示す。スペクトラムから 1923.5 Hz にプロトン ^1H のピーク信号が確認できる。45 μT の静磁場に対応するラーモア周波数は理論的には 1917 Hz

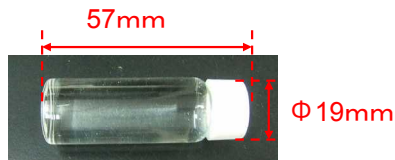


図 5 水サンプル外観写真

表 1 実験条件

サンプル	水道水 10 ml	
静磁場強度	45 μT (1917 Hz に対応)	
分極磁場強度	270 mT	
分極磁場印加時間	5 s	
AC パルス磁場 B_{AC}	44.9 μT_{pp}	
f_{AC}	1914.5 Hz	
τ_{AC}	1 cycle (0.52 ms)	
移動時間	0.7 s	
加算	方法	TIME averaging
	単位	V_{rms}
	回数	1 回

となるはずであるが、+7 Hz (16 nT) の差が生じていることがわかった。これは静磁場コイルに流れる電流の僅かな変動によって静磁場が 45 μT から変化 (増大) したためと考えられる。このときの SN 比 (信号対雑音比) は約 32 となり、十分大きな値を得ることが出来た。精度の指標となるスペクトルの線幅は 2 Hz 程度となり、計算から図 5 に示す水サンプルボトルの左右間 (57 mm) には、47 nT の磁場の不均一性が存在することがわかる。磁場補償によって不均一性を改善することで、さらにスペクトル線幅を狭くすることができると予想される。従って、磁場補償によってプロトン ^1H のピーク信号強度がさらに強くなり、高い SN 比が得られることが期待できる。

地磁気 NMR で石油探査を行う際、石油層、水層の区別が必要となる。それらは、多孔質中のプロトンの T_2^* (磁場不均一性による横緩和) の変化を検出することで区別でき、そのために自由誘導減衰 (FID) 信号を取得することが重要となる。図 7 に計測した FID 信号を示す。外乱の影響で高い SN 比ではないが、1923.5 Hz の周期的な信号が得られているこ

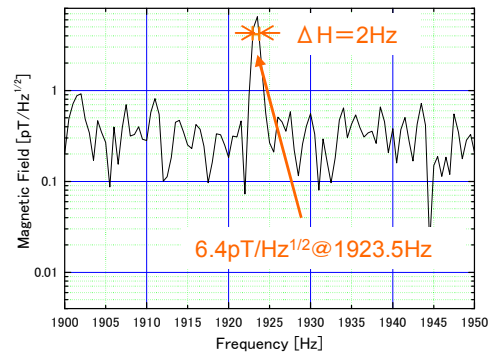


図 6 水サンプルの NMR 周波数スペクトル

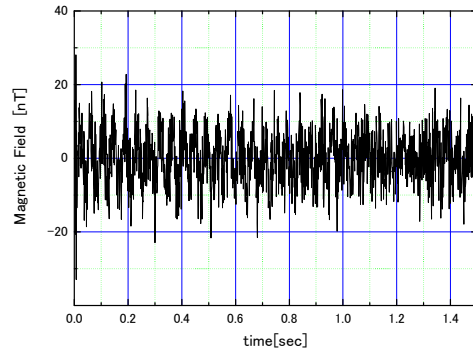


図 7 水サンプルの時間波形

とがわかる。このことから地下資源探査用 SQUID 地磁気 NMR システムの基礎を構築することができたといえる。

本研究の成果の総括を以下に示す。

- (1) NMR 現象を利用した地中の石油貯留層を
探査する地下資源探査システムの開発に
取り組んだ。システムは HTS-rf-SQUID 磁
気センサ、常伝導磁束トランス、静磁場
コイル、磁場補償コイル、永久磁石、サ
ンプル移動機構、AC コイル、などから構
成される。
- (2) 磁束トランスのインプットコイル、ピッ
クアップコイルの巻き数の最適値を計算
によって求め、それを指標として複数の
コイルを作製した。ピックアップコイル
には環境ノイズを減少させるため差動形
を用いた。その中で信号対雑音比が最も
優れた組み合わせを採用した。
- (3) 試作したシステムを用いて、 ^1H プロトン
NMR 信号を計測した。静磁場コイルで地
磁気レベル(約 $45\ \mu\text{T}$)の低磁場を印加し、
1923.5Hz にプロトン ^1H のピーク信号を
得ることが出来た。このときの SN 比は 7
以上であった。これにより、地磁気と同
レベルの磁場下で、磁束トランスを用い
てプロトン ^1H の NMR 信号が得られるこ
とを明らかにした。
- (4) 磁束トランスを用いることで、地磁気程
度の静磁場を用いて水サンプルから ^1H
プロトンの FID 信号を得ることが出来、
地下資源探査用 SQUID 地磁気 NMR システ
ムの基礎を構築することができた。

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 9 件)

- [1] Dan Zhang, Shohei Fukumoto, Shingo
Tsunaki, Yoshimi Hatsukade, Saburo
Tanaka, “Development of signal to
noise ratio of HTS-rf-SQUID for
ultra-low field NMR / MRI by 77K LC
resonant circuit”, Physics Procedia,
(2012) to be published.
- [2] Shohei Fukumoto, Shingo Tsunaki,
Takumi Chigasaki, Yoshimi Hatsukade
and Saburo Tanaka, “ULF-NMR system
using HTS-SQUID and permanent

magnet”, Physica C, (2012) to be
published.

- [3] 福元翔平、綱木辰悟、村田隼基、千ヶ
崎卓巳、廿日出好、田中三郎、
“HTS-rf-SQUID 及び永久磁石を用いた
超低磁場 NMR/MRI システムの開発”、電
子情報通信学会技術研究会技術研究報
告 Vol.111 No.418、SCE2011-20
(2012-01)、p7-10、(2012).
- [4] S. Fukumoto, M. Hayashi, Y. Katsu,
M. Suzuki, R. Morita, Y. Naganuma, Y.
Hatsukade, O. Snigirev and S. Tanaka,
“Liquid-State Nuclear Magnetic
Resonance Measurements for Imaging
using HTS-rf-SQUID in Ultra-Low
Field”, IEEE Trans. Appl. Supercond,
21, (2011) 522-525.
- [5] O. Snigirev, M. Hayashi, S. Fukumoto,
Y. Hatsukade, Y. Katsu, S. Tanaka,
“Development of Ultra Low Field
Nuclear Magnetic Resonance Imaging
System Using HTS rf SQUID”, J. of
Supercond. & Novel Magn., DOI
10.1007/s10948-010-0876-8,
24(2011)1133-1136.
- [6] 福元翔平、勝行広、鈴木美帆、森田遼
介、長沼悠介、廿日出好、田中三郎、
“HTS-rf-SQUID を用いた超低磁場 MRI
システムの開発”、電子情報通信学会技
術研究会技術研究報告 Vol. 110 No. 385、
SCE2010-38、p13-16、(2011).
- [7] M. Hayashi, Y. Hatsukade, Y. Katsu, S.
Fukumoto and S. Tanaka, “Development
of low field nuclear magnetic
resonance system using HTS rf SQUID”,
J. of Phys: Conf. Ser., vol.234,
p.042013, 2010.
- [8] Longqing Q. Qiu, Yi Zhang,
Hans-Joachim Krause, Alex I.
Braginski, Saburo Tanaka and Andreas
Offenhäusser Andreas Offenhäusser,
“High-Performance Low-Field NMR
Utilizing a High-Tc rf SQUID”, IEEE
Trans. Appl. Supercond., 19, (2009)
831-834.
- [9] Y. Zhang, L. Q. Qiu, H. -J. Krause, H.
Dong, A. I. Braginski, S. Tanaka and
A. Offenhäusser, “Overview of Low-
field NMR Measurements Using HTS
rf-SQUIDs”, Physica C, 469, (2009)
1624-1629.

[学会発表] (計 8 件)

- [1] 福元翔平、綱木辰悟、村田隼基、千ヶ
崎卓巳、廿日出好、田中三郎、
“HTS-rf-SQUID 及び永久磁石を用いた
超低磁場 NMR/MRI システムの開発”、電

子情報通信学会技術研究会技術研究報告 Vol.111 No. 418、SCE2011-20 (2012-01)、p7-10、2012年1月26日、機械振興会館、東京。(口頭発表)

- [2] 田中三郎、“超伝導アナログエレクトロニクス”、超伝導100周年特別シンポジウム、「100年の歴史に学ぶ超伝導」～新たな100年の発展に向けて～、超伝導分科会・応用物理学会東北支部共催、文翔館、山形、2011年8月30日。(招待講演)
- [3] S. Fukumoto, T. Chigasaki, S. Tsunaki, Y. Hatsukade and S. Tanaka, “UFL-NMR/MRI System using HTS-SQUID and Permanent Magnet”, 24th International Symposium on Superconductivity (ISS2011), FDP-48, pp268-268, Oct. 26, 2011, Tokyo, Japan. (Poster)
- [4] D. Zhang, S. Fukumoto, S. Tsunaki, Y. Hatsukade and S. Tanaka, “Improvement of Signal to Noise Ratio of HTS-rf-SQUID for Ultra-Low Field NMR/MRI by 77K LC Resonant Circuit”, 24th International Symposium on Superconductivity (ISS2011), fdp-49, pp269-269, Oct. 26, 2011, Tokyo, Japan. (Poster)
- [5] 福元翔平、勝行広、鈴木美帆、森田遼介、長沼悠介、廿日出好、田中三郎、“HTS-rf-SQUIDを用いた超低磁場MRIシステムの開発”、電子情報通信学会技術研究会報告 Vol.110 No.385、SCE2010-38、p13-16、2011年1月24日、機械振興会館、東京。(口頭発表)
- [6] S. Fukumoto, M. Hayashi, Y. Katsu, M. Suzuki, R. Morita, Y. Naganuma, Y. Hatsukade O. Snigirev and S. Tanaka, “Liquid-State Nuclear Magnetic Resonance Measurements for Imaging using HTS-rf-SQUID in Ultra-Low Field”, 5EPJ-05, Applied Superconductivity Conference 2010 (ASC2010), August1-6, 2010. Washington DC, USA. (Poster)
- [7] O. Snigirev, M. Hayashi, S. Fukumoto, Y. Hatsukade, Y. Katsu and S. Tanaka, “Development of Ultra Low Field Nuclear Magnetic Resonance Imaging System Using HTS rf SQUID”, International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM2010), p737-737, April 25-30, 2010, Antalya, Turkey. (Poster)
- [8] M. Hayashi, Y. Hatsukade, Y. Katsu, S. Fukumoto and S. Tanaka, “Development of low field nuclear magnetic resonance system using HTS rf SQUID”,

Abstract of 9th European Conference on Applied Superconductivity 2009 (EUCAS2009), P-127, p28-28, Sep. 13-17, 2009, Dresden, Germany. (Poster)

[産業財産権]

○ 出願状況 (計1件)

名称：超低磁場におけるSQUID検出核磁気共鳴装置

発明者：田中三郎

権利者：豊橋技術科学大学

種類：特許

番号：特願 2011-077367

出願年月日：2011年3月31日

国内外の別：国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 三郎 (TANAKA SABURO)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：10271602

(2) 研究分担者

廿日出 好 (HATSUKADE YOSHIMI)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：90339713

岩佐 精二 (IWASA SEIJI)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：30303712