

## 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：10103

研究種目：基盤研究(C)一般

研究期間：2009～2011

課題番号：21560434

研究課題名（和文） SQUID モバイル磁束計の高性能化に関する研究

研究課題名（英文） Development of the mobile SQUID magnetometers

研究代表者

松田 瑞史 (MATSUDA MIZUSHI)

室蘭工業大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：20261381

研究成果の概要（和文）：高温超伝導体 SQUID(超伝導量子干渉デバイス)を大きな環境磁場雑音下でも安定動作させることを目的として、可搬型磁束計装置の開発を行った。間接冷却ステージを含む装置筐体の製作後、冷却ステージにマウントする SQUID センサの高出力化と S/N の向上のために、複数個 SQUID を直列接続した Flip-Chip 型直列 SQUID マグネトメータの設計・作製を試みた。その結果、多重接続化により SQUID 出力電圧は増大するが、その改善度は予想されるよりも小さいことがわかった。これは、個々の SQUID にそもそも避けられない特性のばらつきが存在することや SQUID 間の相互作用により、全 SQUID がコヒーレント動作できていないためと考えられる。

研究成果の概要（英文）：The portable magnetometer system with a high- $T_c$  SQUID sensor attached on a sapphire rod, being cooled by thermal conduction, was developed. We have designed and fabricated magnetometers with series-SQUID arrays to achieve higher S/N ratio compared to that for a single SQUID. We found that improvement of modulation voltage for more than two SQUIDs is small probably due to the wide spread of critical currents and the phase-incoherence of voltage-flux characteristics among SQUIDs.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	700,000	210,000	910,000
2010年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2011年度	300,000	90,000	390,000
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子デバイス・電子機器

キーワード：超精密計測、超伝導材料・素子、電子デバイス・機器、計測工学

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 高温超伝導体を用いた SQUID (超伝導量子干渉デバイス) は、液体窒素温度 (77K) で動作する非常に高感度な磁束センサーであり、現在、微小な磁気信号を対象とす

る生体磁気計測や産業用非破壊計測などへの応用が磁気シールドを用いて開始されている。本来これらの応用分野においては、コンパクトな測定システムを用いて、磁気シールド外の本来の環境下において測定対象を計測することが望ましいが、従来用いられて

きた測定システムにおいては、SQUID を浸す比較的大きな液体窒素デューワーを保持して吊るす必要があり、小型化は難しかった。また非シールド環境下では、地球磁場や都市雑音など大きな環境磁場雑音が障害となつて、デバイスが安定動作しないという問題もあった。

(2) そのため、環境磁場雑音中で安定に動作し、小型で簡単に扱え、生体計測等のさまざまなサンプルに対応できる高性能な SQUID 磁束計が望まれていた。

## 2. 研究の目的

(1) 本研究では、コンパクトでしかも環境磁気雑音中でも動作可能な可搬型 SQUID 磁束計の開発を目的とした。これまでに報告されている高温超伝導体 SQUID 磁束計の多くは、センサを液体窒素中に浸す直接冷却型のシステムである。これに対して、センサを冷却ステージにマウントして間接的に冷却するタイプのシステムにおいては、冷却効率の点ではやや劣るものの、測定サンプルと SQUID センサの距離を mm 以下のオーダーまで近接させることが可能であるため、高い空間分解能が期待できる。又、試料に近接できることから微弱な信号を捕らえることもできる。

(2) すでに類似の間接冷却型システムを用いて、数  $10\mu\text{m}$  の空間分解能で集積回路の欠陥検査を行っている例もあり、このタイプは一般に SQUID 顕微鏡と呼ばれている。又、試料に近接できることから微弱な信号を捕らえることもでき、微小磁性粒子や、岩石中の残留磁場の測定、食品中の混入異物の検出報告例がある。又、バイオ計測の例としては、超伝導薄膜上に薄膜コイルと SQUID を一体化した平面型グラジオメータ（ベースライン：3 mm）を使用し、抗原-抗体結合反応の検出を行っている報告がある。しかし、間接冷却 SQUID で長いベースラインを持ったグラジオメータや、大きな S/N 比を有するマグネットメータは未だ報告されておらず、これを実現すれば、環境磁場を低減しつつ信号磁場を捉える効果的なセンサになると期待できる。

## 3. 研究の方法

(1) 従来用いてきた直接冷却型の装置においては、冷却する際に SQUID をマウントしたプローブを 1 時間以上の時間をかけてゆっくりと液体窒素に浸漬しなければならなかった。これは、室温～液体窒素温度までの 200K 以上の温度差熱収縮による SQUID 破壊を防ぐとともに、SQUID ボディである超伝導薄膜への磁束トラップを起こさないようにするためである。これに対して間接冷却

型の場合、冷却ステージを液体窒素に浸すことにより熱伝導で SQUID を間接的に冷却するため、直接冷却型ほど熱収縮による SQUID 破壊に気を使わずに済む。

(2) 間接的にセンサデバイスを冷却する間接冷却型ステージ構成に関する熱伝導・熱絶縁については、室温にある測定サンプルを SQUID 直上に配置できるように、天板を持つ構造を想定する。この構造においては、サンプルとの距離を短くすることが比較的容易であり、測定の S/N 比向上を図ることができる。また、冷却ステージ本体は、銅など熱伝導の良い金属で構成するが、その上に直接 SQUID をマウントした場合には、金属に発生する熱雑音（ジョンソンノイズ）によりシステムのホワイトノイズレベルが増加することが予想されるため、冷却ステージの最上部は、液体窒素温度付近で銅の 2 倍以上熱伝導率の良い非金属材料であるサファイア（約  $1000\text{W/mK}$  @  $77\text{K}$ ）を用いることで、ノイズの増加を避けつつ SQUID の高性能化を図ることを目指した。

(3) 一方、SQUID デバイスの形状としては、S/N 比の高いデバイス構造として、差動型のグラジオメータ（磁束勾配計）構造、または多重接続型のマグネットメータ（磁束計）構造を採用することとした。

## 4. 研究成果

(1) 間接冷却ステージを含む装置筐体を試作し（図 1、図 2）、基礎データの取得を通じてノウハウの蓄積を行った。試作装置においてデバイスを冷却する方式として採用した間接冷却ステージの場合、冷却ステージを液体窒素に浸すことにより熱伝導で SQUID を間接的に冷却するため直接冷却型ほど熱収縮による SQUID 破壊に気を使わずに済むなどの利点がある代わりに、完全には液体窒素温度（77K）まで冷却しない可能性がある。



図 1 可搬型 SQUID 磁束計の外観

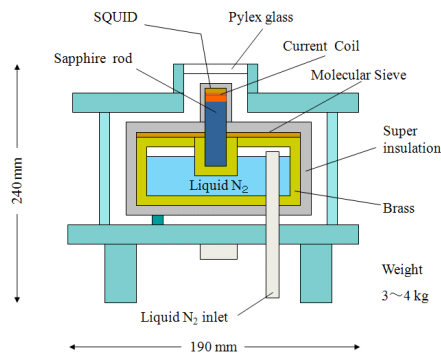


図2 可搬型 SQUID 磁束計の模式図

今回試作した装置においても、78~79K 程度に留まる場合があり、その際には液体窒素中で動作させた場合よりも僅かにセンサデバイス特性が劣化していることが判明した。これは、断熱特性等の向上によりステージへの熱伝導を改善することで改善され、デバイスの安定動作が可能となった。

(2) 可搬型 SQUID 磁束計を免疫反応検査に応用することを想定して、ナノメートルサイズの磁性微粒子に結合したバイオターゲットを高感度 SQUID センサにより磁氣的に計測するための予備実験を行った。実際の生体磁気信号計測・バイオ計測への応用としては、ナノメートルの粒径をもつ磁性微粒子（磁気マーカー）と結合したバイオターゲットがクラスターを形成し、そのクラスターの磁気緩和時間が未結合磁気マーカーの緩和時間よりも数桁長いことを利用した交流帯磁率測定法により、結合磁気マーカー量（結合バイオターゲットの量）に比例した出力を得ることを試みた。またその基礎実験を通して、交流磁場中の磁気マーカーの周波数応答など、多くの知見を得た。交流帯磁率測定による免疫検査応用のために、まず磁性ナノ粒子の検出技術の開発を行った。検出システムにおける励起コイル、検出コイルを試作し、信号雑音比を向上させるための検討を行った。交流帯磁率測定では、信号磁場は励起磁場よりもずっと小さいので、励起磁場からの干渉を避けることが重要であり、システムの感度は励起周波数成分の除去率に依存する。検出コイルと励起コイルの相対的位置を微細にバランス・固定させ、容量性の結合による位相ずれ成分を回路的に位相・振幅調節をして検出コイルに磁界補償することで、最終的に励起周波数成分を  $1/10^7$  程度に低減した（図3）。また、市販の磁性ナノ粒子を用いて、磁性ナノ粒子のブラウン緩和過程を観測した。凝集している磁性ナノ粒子を希釈することで、粒子を分散させ、この粒子サイズの変化による微弱信号の位相変化を測定することでブラウン緩和を検出することができた。

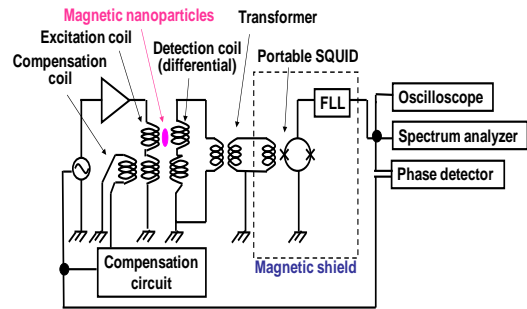


図3 交流帯磁率測定システムの概略

さらに、低雑音増幅器による電圧測定システムと SQUID による電流測定システムの磁性ナノ粒子の検出限界を調べ、比較・検討した。SQUID はマグネトメータ型で有効磁場面積の大きいものを使用することで検出感度の向上を図った。50~1500 ng の範囲の磁性ナノ粒子の検出を行った。その結果から、検出感度は低雑音増幅器では 30 ng, SQUID では 15 ng となり（図4）、SQUID の方がわずかに高い感度となった。

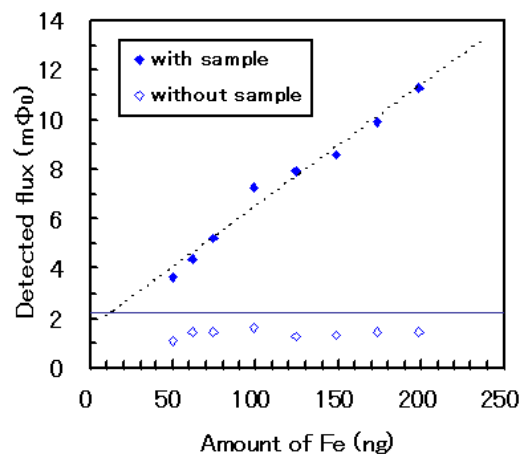


図4 交流帯磁率測定における磁束信号と  $Fe_3O_4$  微粒子の関係

(3) 高温超伝導体 SQUID (超伝導量子干渉デバイス) を、大きな環境磁場雑音下でも安定動作させることを目的として、磁場雑音に強い最適なセンサデバイス形状の検討を行った。具体的には、SQUID 磁束センサの高出力化とその S/N 比の向上を目的として、複数個の SQUID を直列接続した Flip-Chip 型直列 SQUID マグネトメータの設計・作製を試みた。SQUID の直列アレイ化（図5は6個接続の場合）について検討した結果、多重接続化により SQUID 出力電圧は増大するが、その改善度は予想されるよりも小さいことがわかった。この原因としては、個々の SQUID にそもそも

避けられない特性のばらつきが存在することや個々の SQUID 間の相互作用により、全 SQUID がコヒーレント動作できていないためと推測された。今後さらに個々の SQUID 特性を揃えることで接続数に応じた高出力とする必要がある。

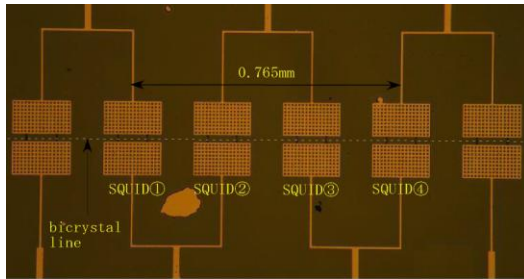


図5 直列 SQUID アレイの概観

次に、直列 SQUID アレイと別な基板で作製した検出コイルとを貼り合わせ、Flip-Chip 型直列 SQUID マグネットメータの作製を試みた。未だ磁気結合について不明な点があり、貼り合わせる前と比べてノイズレベルは必ずしも減少していないものの、単体の SQUID と比べて大きく感度は変化し、一体としての磁束計動作が確認できた。

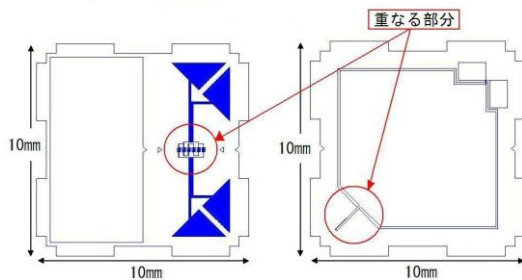


図6 貼り合わせ用 SQUID アレイと検出コイル

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

- ① M. Matsuda, T. Mukaidate, A. Jinnohara, and S. Kuriki: "Ac Susceptibility Measurement System of Magnetic Nanoparticles", Extended Abstracts of the 5th East Asia Symposium on Superconductor Electronics, 査読無, W3-6, pp.42 (2009, October, Nanjing).
- ② M. Matsuda, H. Fujii, S. Mizuseki, and S. Kuriki: "Fabrication and characterization of series-SQUID arrays with flip-chip-type pickup loop", Proceedings of 12th International Superconductive Electronics Conference, 査読無,

SQ-P03, pp.49-50 (2009, June, Fukuoka).

- ③ T. Mukaidate, M. Tainaka, M. Matsuda, and S. Kuriki: "Ac Susceptibility Measurement System of Magnetic Nanoparticles using SQUID Current Meter", Proceedings of 12th International Superconductive Electronics Conference, 査読無, SQ-P24, pp.89-90 (2009, June, Fukuoka).

〔学会発表〕(計7件)

- ① 酒田克志、石村敏幸、松田瑞史: "Sapphire-A面単結晶基板を用いた超伝導 Nb 薄膜特性向上の試み", 第47回応用物理学会北海道支部/第8回日本光学会北海道支部合同学術講演会, A-10, (2012, January).
- ② 佐々木一寿、久保田恭介、松田瑞史: "RF-スパッタ法による Nb 系超伝導薄膜の作製と評価", 第47回応用物理学会北海道支部/第8回日本光学会北海道支部合同学術講演会, A-12, (2012, January).
- ③ 陣野原啓晃、諸戸孝之、松田瑞史: "モバイル SQUID システムの感度向上に関する研究", 第46回応用物理学会北海道支部/第7回日本光学会北海道支部合同学術講演会, C-30, (2011, January).
- ④ 鎌戸達也、松田瑞史: "High-Tc SQUID グラジオメータの試作", 第46回応用物理学会北海道支部/第7回日本光学会北海道支部合同学術講演会, C-31, (2011, January).
- ⑤ 水関作智子、松田瑞史: "Flip-Chip 型直列 SQUID マグネットメータの試作", 第46回応用物理学会北海道支部/第7回日本光学会北海道支部合同学術講演会, C-32, (2011, January).
- ⑥ 若林高史、小川哲雄、松田瑞史: "超伝導 Nb 薄膜特性の膜厚依存性", 第45回応用物理学会北海道支部/第6回日本光学会北海道支部合同学術講演会, C-6, (2010, January).
- ⑦ 松村和音、酒田克志、佐々木一寿、松田瑞史: "MgO 基板を用いた高品質 Nb 薄膜の作製とデバイス化への検討", 第45回応用物理学会北海道支部/第6回日本光学会北海道支部合同学術講演会, C-7, (2010, January).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

松田 瑞史 (MATSUDA MIZUSHI)  
室蘭工業大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 20261381