

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289124

研究課題名(和文)高周波変調を利用した核四極共鳴の高感度化の研究

研究課題名(英文)Detection sensitivity improvement on nuclear quadrupole resonance by high frequency modulation

研究代表者

糸崎 秀夫 (Itozaki, Hideo)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：70354298

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：核四極子共鳴(NQR)は、隠匿された爆発物等を検知できる現象として有望である。その検出感度が不十分なため、検知範囲が狭かったことが実用化の課題であった。本研究では検知可能範囲を広げるため、NQRの送受信の改良によって高感度化することを目的とした。まず、送信系の改良によって対象物質の共鳴周波数で高周波を変調することで、励起効率の向上を目指したが、実験的には励起効率が大変低かった。そこで、送受信系のアンテナ構造・シーケンスの最適化によって感度向上を進めた。その結果、高感度化が可能となったので、その成果を踏まえて地雷探知機を試作し、南米コロンビア共和国での実証試験にて埋設地雷の実用的検知に成功した。

研究成果の概要(英文)：Nuclear quadrupole resonance (NQR) is known as one of the promising phenomena to realize the detection of hidden explosives. The short detectable distance due to the weak signal detection sensitivity was a significant issue for its practical use. This study was aimed to extend the detectable distance by improving the sensitivity. Firstly, we tried to increase the transmission efficiency by developing a new transmission and reception system, in which the transmission magnetic field with high frequency was modulated by resonance frequency of the target. However, our experiments showed that the excitation efficiency, caused by the nonlinearity of the spins, was very low. Then, we modified and optimized the antenna structure and the excitation pulse sequence in our conventional system. Finally, we achieved the improvement of NQR detection sensitivity. We also made portable landmine detector, and successfully demonstrated the effective detection of landmines buried in Republic of Colombia.

研究分野：計測工学

キーワード：核四極共鳴 計測システム 高感度化

1. 研究開始当初の背景

爆発物あるいは違法薬物の発見・取り締まりは重要な社会的課題であり、安心安全な社会構築の必須条件である。しかしながら、地面に埋められた非金属製の地雷あるいは体内隠匿の事例に対して、現状で確実に検査できる装置は実用化されていない。こうした背景のもと、我々は、RDXのような爆発物や、覚せい剤のような違法薬物を核四極共鳴 (NQR) により効果的に検出できることを示してきた。NQR は、磁気共鳴現象の一種であり、核スピン量子数が 1 以上の原子核を有する結晶質の固体物質で観測される現象である。固体中に存在する原子核が実効的に受ける電場に勾配が存在する場合、核スピンのエネルギー準位が分裂する。その各エネルギー準位間の差に相当するエネルギーをもつ電磁波、つまり特定の周波数の電磁波を照射すると、共鳴現象が生じ、照射された電磁波のエネルギーを吸収することで核スピンの励起され、緩和時間を経て核スピンの基底状態に戻る。その際に、照射した電磁波と同じ周波数の電磁波が放出される。原子核が受ける電場勾配は、物質の種類によって異なる。したがって、共鳴する電磁波の周波数は物質によって異なる。共鳴周波数は数 MHz と、ラジオに用いられているような低い周波数である。ちなみに、物質に外部から磁場を加えることで生じるエネルギー準位の分裂に起因する共鳴現象が核磁気共鳴(NMR)である。NMR では外部から均一な磁場を加える必要があるが、NQR では外場を与える必要はなく、物質内部の電場勾配で生じる現象であるため、アンテナから電磁波を照射して、戻ってくる電磁波を測定するだけで、その物質があるかないかを調べることができる。われわれは、スピン量子数 1 の  $^{14}\text{N}$  が爆発物や不正薬物の多くに含まれることに着目し、これを対象にして NQR により物質の有無を検知する装置を開発している。しかしながら、アンテナから対象物質までの距離が数 cm 程度と近傍なら測定できていても、NQR 信号は非常に微弱であるため、それ以上離れると測定できていなかった。例えば、対人地雷は土の中に埋められており、これを実用的に検出するには、性能を倍に向上させることが必要であった。このように、NQR 検出範囲を広げることが実用化の際の最大の課題であった。

2. 研究の目的

NQR により特定の物質を検知する装置を実用化するためには、検知できる範囲を拡大することが重要である。本研究は、NQR による物質検知、特に、対人地雷で問題となっている非金属地雷の検知において、従来よりも検出可能距離を倍以上に広げることが目標に、NQR の高感度化を行うことを目的とする。それには励起パルスを効率的に送信することが考えられる。そこで、励起パルスを効率的に送信するため、高周波変調を用いた励起パルス送信法を新規に開発することとした。

ス送信法を新規に開発することとした。

3. 研究の方法

まず、開発することにした高周波変調を用いた励起パルス送信法について説明する。磁気共鳴とは異なる分野であるが、超音波をキャリアとして音の信号を変調して送信し、高い指向性で遠くまで音波を伝えるスピーカーの技術が知られている。キャリアの超音波の周波数は可聴域にないが、空気の非線形性により可聴域の音波に復調されて人の耳に聞こえるようになる。このことに着想を得て、通常、NQR で照射するラジオ波よりも指向性の高いマイクロ波程度の高周波の電波をキャリアとして使用し、従来の共鳴周波数の励起パルスで変調して送信する発想に至った。これを本研究では、高周波変調を用いた励起パルス送信法と呼ぶ。このような高周波の被変調波を用いることで、効率的に遠方まで電波を送信することが可能になることを期待した。ただし、変調した電波によって核スピンの励起されるためには、核スピンの非線形応答が関与しなければならない。これを実証することが、高周波変調を用いた励起パルス送信法によって NQR の高感度化を実現するためには重要だと考えられるので、遠方での測定というよりも近傍での測定に特化して送信系を新規に開発することにした。

さらに、通常のラジオ波の周波数の励起によって検出範囲を拡大することも検討し、アンテナ構造や、励起パルスの見直しすることによって NQR の高感度化を目指した。

4. 研究成果

キャリア波の周波数として、指向性をもたせることができるマイクロ波程度の高周波(VHF 帯-UHF 帯)を用い、物質の共鳴周波数に調整したベース信号である励起パルス信号(MF/HF 帯)によって変調した励起パルス変調波を送信アンテナから照射し、対象物質が NQR 応答を示すかどうかを検証することを目指して、図 1 に示すような変調送信システムを構築した。送信する被変調波は VHF 帯、受信する信号

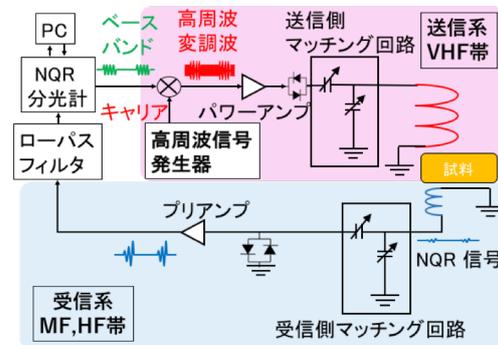


図 1:高周波変調による励起パルス変調波送信・NQR 受信系。送受信を 1 つのアンテナで兼ねる通常の NQR 計測系とは異なり、送受信系で別々のアンテナを使う。

はMF/HF帯(ラジオ波帯)の周波数となるので、それぞれの周波数に合わせた送信用と受信用の2つのアンテナが必要となる。まず手始めに送信系構築の予備検討として、所有のNQR分光器により目的とする動作を実現するシステムを構築できるかを調べる目的で、ファンクションジェネレータ(帯域50 MHz)の外部変調機能を利用し、これとNQR分光器を組み合わせて同期させ、振幅変調(AM)させることで励起パルス変調波を送信できるか確認した。さらに、適切に電波を送信できているかを確認するため、送信用の磁界アンテナの代わりに、電界アンテナ(キャパシタ構造)を用いて励起パルス変調波を送信し、試料の水晶振動子(QCM)に照射する予備実験を行った。ベースバンド信号はQCMの機械共振周波数(1.8 MHz)に合わせておき、送信した電波によって共振が生じれば、圧電応答によってQCMに付帯している電極から直接的に電圧信号として検出することができる。このとき、送信波を受けてベース信号の成分が観察されれば、非線形応答が起きたことになる。アンテナから送信される電場は高周波のキャリア成分と励起するベース信号由来のサイドバンド成分のみが送信されるのが理想的である。当初、受信された信号にベースバンドの周波数成分が観察されたが、これは非線形応答によるものではなく、送信系のアンプ等の歪みによ

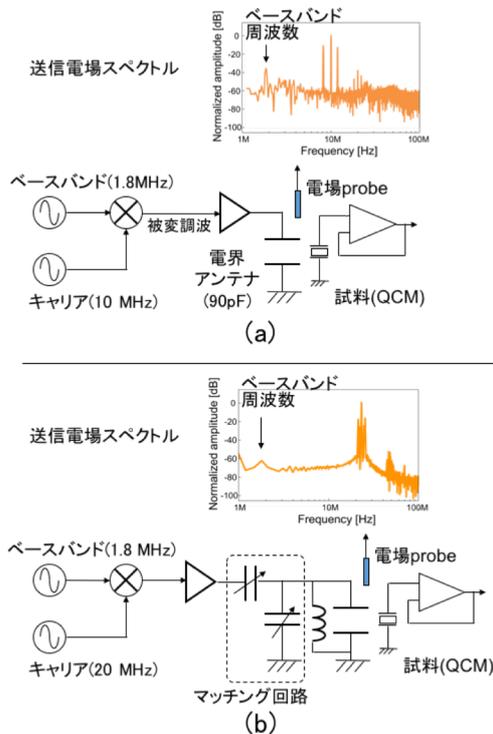


図 2: (a)電界アンテナからと(b)共振器型アンテナから送信したAM被変調波のスペクトルの比較. 共振器型にすることで、アンプの非線形性のために生じるベースバンド信号(1.8 MHz)が減少したことがわかる. なお、キャリアの周波数はアンテナの共振周波数に合わせた.

てベースバンド信号そのものが生じ、それが図2(a)に示すよう送信されていたことが判明した。送信電波からベース信号を除去するため、アクティブ、もしくはパッシブ型のフィルタを追加した場合、あるいはコイルとコンデンサからなる共振器型アンテナの場合を比較し、図2(b)に示した共振器型が最もベースバンド信号の送信を抑制できることがわかった。

この予備検討をもとに、帯域3 GHzの信号発生器を導入し、VHF帯の周波数を有するキャリアを対象物質のNQR共鳴周波数で変調して共振器・磁界型アンテナから送信し、発生した近傍磁界によって対象物質を励起することで、NQR応答を計測するシステム(図1)を構築した。このシステムでは、通常のNQRに必要な強度よりも十分強い近傍磁界を送信する必要があると考えられる。そのため、アンプによる増幅だけでは不十分で、高いQ値の磁界型アンテナを用いる必要があるが、逆に高いQ値では送信可能な帯域が狭くなる。このため、図3に示すような通常の磁界型アンテナを用いてAMの被変調波(変調率:100%)を送信すると、図4に示すように、パワーアンプのところでは十分に変調されていたにもかかわらず、送信された磁場の変調度は大幅に低下してしまうことがわかった。

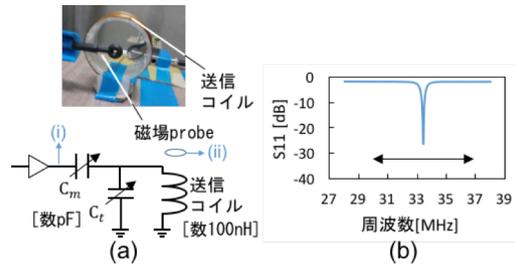


図 3: (a)通常の共振器・磁界型アンテナと、(b)そのS11特性(共振特性). 図(b)中の矢印の範囲が必要な帯域. このときの共振周波数は~33 MHzで、これにキャリア周波数を合わせる必要がある.

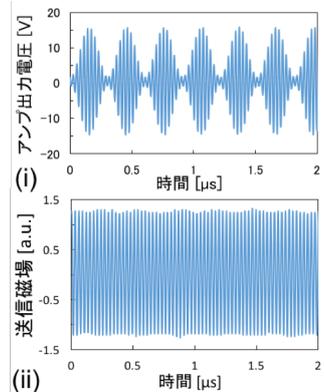


図 4: (i)パワーアンプの出力電圧と、(ii)磁場probeで測定した送信コイルからの磁場波形. それぞれ図3(a)の(i),(ii)の位置に相当.(ベースバンド周波数: 3.3 MHz)

それでは、NQR 信号の検出は期待できないので、図 5 に示すように、新たに二重コイル磁界型アンテナを考案した。この各コイルの共振周波数をキャリアとサイドバンドに割り当て、被変調波を送信した。その結果を図 6 に示す。このように十分変調された状態で磁場が送信されており、そのスペクトルからシングルサイドバンド(SSB) - AM 変調となっていることがわかる。このように第一段階目標の NQR 周波数で変調した近傍磁界の送信に成功した。また、図 7 に示すように、高周波の送信コイルアンテナとは別に、試料の対象物質の NQR 共鳴周波数と同じ共振周波数を有する受信アンテナも配置し、モデル試料としてヘキサメチレンテトラミン (HMT, 共鳴周波数: 3.3 MHz) を用いて原理実証実験を進めた。計測に悪影響を及ぼすアンプ由来ノイズの低減も行ったが、信号は測定されず、信号測定のためには、高出力化が必要と考えた。

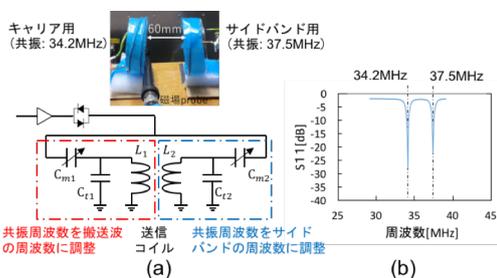


図 5: (a) 新規に開発した二重コイル磁界型アンテナと、(b) その S11 特性 (共振特性). S11 特性に 2 つある共振ディップに対して、キャリアとサイドバンドのうち片方の周波数を合わせる。

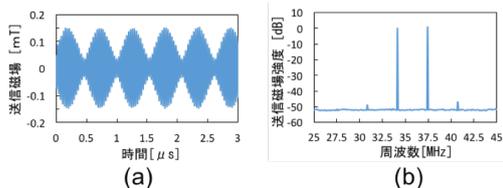


図 6: 二重コイル磁界型アンテナよりアンテナ中心付近に送信された磁場. (a)時間領域波形、および(b)周波数領域波形. 入力した AM 被変調波は図 4(i)に示すような波形で、スペクトルはキャリアの 34.2 MHz を中心として、3.3 MHz だけ離れた両側にサイドバンドのピークをもっていた。(アマチュア無線用パワーアンプを使用. ベースバンド周波数: 3.3 MHz)

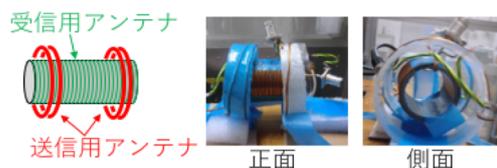


図 7: 二重コイル磁界型アンテナおよび NQR 受信アンテナを組み合わせた様子. アンテナコイル内に試料を配置する。

そこで、広帯域および高出力のパワーアンプを導入し、システムに適用することで、VHF 帯-UHF 帯のキャリアを数 MHz 程度の周波数で変調し、強い励起磁場として送信することができるようにシステムを発展させた。実際に、出力を増やして送信を試みた。しかし、マッチング用の可変コンデンサとしてガラスコンデンサを使用していたのだが、高周波では放電しやすくなるため、送信電力を増やすと 10 W 以上のときに、共振作用によってコンデンサの耐圧を超え、内部放電が生じて、出力端電圧が飽和した。さらにその発熱によってコンデンサが破壊されるなど高出力化に課題が生じた。そこで、マッチングコンデンサの検討を行った。容量の調整範囲は狭くなるという問題は残ったが、耐圧のある固定コンデンサと可変コンデンサの直列接続によって解決を図った。送信可能な電力を増加できたが、次にケーブル間等で放電する現象が起きたため、例えば図 8 のように 35 MHz 程度であっても送信できる最大電力は 70 W が限度であった。それでも数 10W も投入すれば、ある程度の強度の磁場を発生させることがわかる。そこで、放電しない範囲で被変調波を入力し、検証実験を進めた。図 9 は、磁場 probe で測定した送信磁場波形である。2 つのアンテナのバランスが悪いのために、通常の AM 変調に近い状態に見えるが、SSB-AM 変調されている。実際に、HMT (11.6g) を試料として、試料があるときと、ないときで、図 1 の装置構成で二重コイル磁界型アンテナから高周波パルス変調波を照射して、自由誘導減衰(FID)シーケンスの 1000 回積分により測定した結果を図 10 に示す。

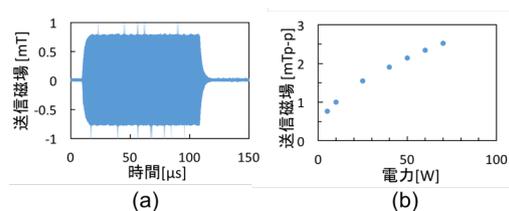


図 8: (a)アンテナを接続したパワーアンプから送信電力 25 W でキャリアのみをパルス状に出力し、磁場 probe で観察した送信磁場の時間波形と、(b)送信電力強度に対する送信磁場強度依存性(キャリア周波数: 35 MHz のとき). 周波数が高いため 70 W 以上で放電した。

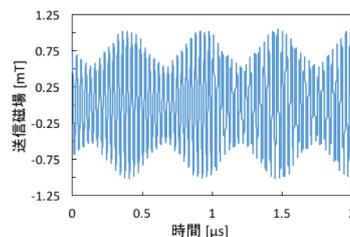


図 9:パワーアンプから送信電力 43 W で高周波変調波を送信し、磁場 probe で観測したときの時間波形。

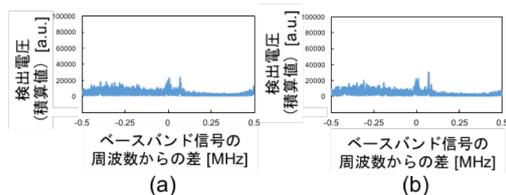


図 10: HMT を試料とし、高周波励起パルス変調波を二重コイル磁界型アンテナから送信することによって、受信アンテナで検出された電圧のスペクトル. (a)試料なしと(b)ありの場合.

開発したシステムで AM 変調によって送信した励起波は、2つのアンテナのバランスの均衡をとることが難しく、キャリアの電力  $P_c$  と片方のサイドバンド  $P_s$  の電力の比 ( $P_s/P_c$ ) は、条件で異なるが 10% ~ 1% であった。このことも原因として考えられるが、図 10 のように、試料の有無で検出された電圧スペクトルに明確な差を確認することができなかった。試料の共鳴周波数に合わせたベースバンド信号で AM 変調した磁場 (高周波励起パルス変調波) を送信したとき、試料の非線形応答が十分大きければ、その変調波のキャリアとサイドバンドの周波数の差の成分、つまりベースバンド信号成分が生じて NQR 応答し、受信アンテナからベースバンド信号が明瞭なピークとして検出されると予想していた。しかし、信号が確認できなかったことから、想定よりも NQR 応答の非線形性が小さく、その効率が大変低いことを示唆していると思われる。

そこで、検出範囲を広げるという目的を達成するために、さらに他の手法もあわせて高感度化する方策を検討することにした。アンテナの送信および受信感度を向上させるには、アンテナの Q 値を向上させることが重要となる。そのため、超伝導により共振アンテナを作製することなども検討した。超伝導共振器としては、BSCCO 超伝導線材によりコイルを作製して共振アンテナを作製することなどを行った。作製したアンテナを実際に液体窒素で冷却して NQR の感度が向上するか調べた。その Q 値はこれまで作製していた銅コイルの室温のときよりは高くなるが、従来の銅コイルを冷却する方が高いという結果となった。これは表皮効果のため、芯部にある超伝導部の周囲を覆う通常の金属部にしか電流が流れないことが原因だと考えられ、今後、改良していくことが課題である。

超伝導共振アンテナの Q 値は、高周波になるほど銅コイルと大差なかったもので、銅コイルで検出感度を向上させる方法を模索した。その 1 つの方策として、送信電力を増加させることを考え、非金属製地雷に用いられる硝酸系の物質 (共鳴周波数: 0.4 MHz) に対して、送信電力の増加により感度向上ができるか調べた。その結果を図 11 に示す。

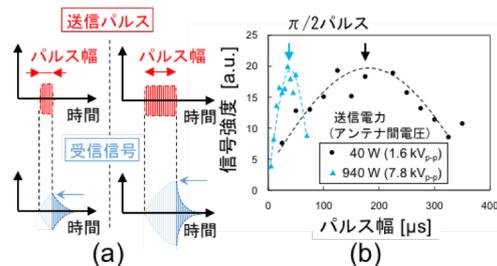


図 11: (a) FID シーケンスにおいて、送信パルスの幅で受信信号強度が変化の様子. (b) 送信電力 40 W と 940 W (連続波送信時の値で表記) の 2 通りで、硝酸系の物質で取得した受信信号強度に対する送信パルス幅依存性 (距離: 3 cm, 積算: 30 回, 試料の質量: 500g). 各送信電力で受信強度が最大になるパルス幅を  $\pi/2$  パルスと呼ぶ。送信電力を増やすと、 $\pi/2$  パルスの幅は短くなるが、受信信号には変化が見られていない。

単純に送信電力を増加させると、パルス幅は短縮できるものの、検出信号自体の強度はあまり変化しない結果となった。これは実効緩和時間 ( $T_2^*$ ) が非常に短い場合には、パルス幅が短くできることで感度向上が見込まれる場合もあるが、測定物質では  $T_2^*$  が 5 msec 程度とやや長く、実質的効果が限定的だったためだと考えられる。

次の方策として、アンテナ構造自体を改良することにした。実用的に使用する環境は、ラジオや携帯電話などの電波が飛び交うため、ノイズが多い。微弱な NQR 信号を測定するためには、外部からのノイズの影響を減らすことが必須となる。それを実現する 1 つの方法として、同一平面に同等のコイルアンテナを横に 2 つ並べて互いが逆相となるように接続したグラジオメータ型アンテナを用いる方法がある。このアンテナでは、空間で一様分布とみなせる磁場ノイズが 2 つのコイルに鎖交すると、同等の起電力が発生し、互いに打ち消される。しかし、NQR 信号も遠方からだと空間的に一様な分布に近づくので、グラジオメータ型アンテナではアンテナから試料までの距離が離れると、図 12 のように信号自体も減衰しやすい。これまでもグラジオメータ型で、

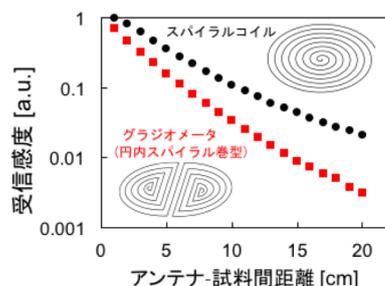


図 12: スパイラルコイル型アンテナとグラジオメータ型アンテナとで比較したアンテナ-試料間距離に対する受信感度の依存性。グラジオメータ型の方が、感度の減衰が激しい。

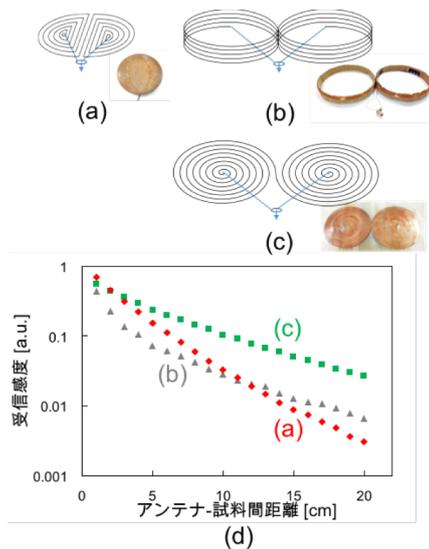


図 13: グラジオメータ型アンテナの改良検討結果。(a)円内スパイラル巻き型(従来のもの), (b)二重ソレノイド巻き型, (c) 二重スパイラル巻き型。(d)各コイルで比較したアンテナ-試料間距離に対する受信感度の依存性。(c)の二重スパイラル巻き型が遠方距離で最も感度が良かった。

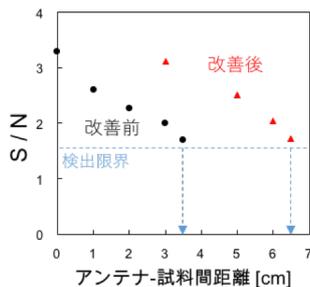


図 14: 通常の NQR 送受信系においてアンテナ等の改善を行った前後で、硝酸系の物質を取得した際の NQR 信号対雑音比(S/N)のアンテナ-試料間距離依存性の比較。

さまざまな検討を行ってきたが、アンテナ構造を見直すことで、検出範囲の拡大を目指すことにした。その結果を図 13(d)に示す。従来タイプのアンテナである図 13(a), (b)の場合よりも、改良した二重スパイラル型の図 13(c)の場合の方が、信号検出感度が向上していることがわかる。これはベースラインが長くなったことで、試料からの NRQ 信号の受信効率を向上できたことに依るものと考えられる。また、パルスシーケンスとして、SORC (Strong Off-Resonance Comb) から SLSE (Spin-Lock Spin-Echo) シーケンスへの変更、および最適化も行った。その結果、励起も含めた感度向上に成功した。図 14 に改善前後の感度を示す。手製地雷に用いられる硝酸系の物質を対象とした場合、検出可能距離がおおよそ 2 倍向上しており、当初の目標を達成することができた。

そこで、可搬型装置を製作して、2015 年 10 月に南米コロンビア共和国に持ち込み、現地コロンビア国立大学の研究協力者

(Prof. Nelson Vanegas, Lorena Cardona) らとともに実地で地雷検知の実験をした(図 15)。実物の地雷で実用的に検出できることを確かめるとともに、現在、現地で継続的に研究・使用してもらっている。また、NQR を利用した地雷探知装置の実用化研究を行っている研究者は世界的にも数少ないが、現在、精力的に研究を行っているロンドン大学・キングスカレッジの研究者の Dr. Jamie Barras 氏を訪問し、双方の NQR 研究成果を議論するとともに、交流を深めた。実用的な見地で研究を継続的に進めている氏等の協力を得て、今後、研究成果を国際貢献に役立てられればと考えている。以上のように、高感度化という目的は達成できたと考えている。



図 15: 開発した地雷探知装置を用いて、コロンビアに多く埋設されているタイプの実物の非金属材料地雷を測定してもらっている様子。

## 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)

[学会発表] (計 3 件)

① 大林 輝一、糸崎 秀夫 他、NQR 用平面アンテナ特性に対する近接導電体の影響、第 52 回 NMR 討論会、2013/11/14、石川県立音楽堂 (石川県・金沢市)

② Hideo Itozaki, et al., Detection of stimulant concealed in the body, 2013/7/11, Magnetic Resonance Detection of Explosives Workshop, London (UK)

③ 佐藤 晋大、糸崎 秀夫 他、核四極共鳴信号計測のためのオートチューニングシステム、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015/3/14、東海大学 (神奈川県・平塚市)

[その他]

ホームページ:

<http://www.sup.ee.es.osaka-u.ac.jp/nmrnqr.html>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

糸崎 秀夫 (ITOZAKI, Hideo)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授  
研究者番号: 70354298

(2) 研究分担者

宮戸 祐治 (MIYATO Yuji)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・助教  
研究者番号: 80512780