研究成果報告書 スピントロニクス素子を用いた 小型プロトン磁力計の創成

令和4年5月

スピンセンシングファクトリー株式会社

本報告書は、防衛装備庁の安全保障技術研 究推進制度による委託業務として、スピンセ ンシングファクトリー株式会社が実施した令 和3年度「スピントロニクス素子を用いた小 型プロトン磁力計の創成」の成果を取りまと めたものです。

0. 研究背景

電子の有する電荷とスピンの2つの性質を積極的に利用して、画期的な電子デバイスを創出 しようとする、スピントロニクス分野に大きな期待が集まっている。すでに、磁気ランダムア クセスメモリ(MRAM)や高密度磁気記録デバイス(HDD)用の情報読み取りヘッドにスピント ロニクス技術が用いられている。次世代の革新的なスピントロニクス応用として注目されてい るデバイスの一つが、超高感度磁気センサである。磁気センサ応用のためには、外部磁場に対 する素子の出力変化(磁気抵抗効果)を大きくする必要がある。その代表的な現象が、本研究 で利用するトンネル磁気抵抗(TMR)効果である。1994年に東北大学宮崎等のグループによっ て、室温で約20%のTMR比が観測されて以降、飛躍的にTMR比が向上し、現在では600%にも至っ ている(図.1)。このような磁気抵抗効果の劇的な向上を背景として、スピントロニクス素 子を磁気記録分野のみならず、集積回路や社会インフラの検査、高精度電流計測によるエネル ギーマネジメント、がんやウイルスの検出、ヒトの脳や心臓などの生体磁場計測等、幅広く応 用するための研究開発が精力的に進められている。スピンセンシングファクトリー株式会社 (SSF)は、超高感度TMR磁気センサを、生体・医療分野、社会インフラ分野、ICT・IoT分野、 自動車・ロボット分野など、様々な領域で応用することを目指して設立された、ベンチャー企 業である(https://www.spintronics.co.jp/about)。



図.1 トンネル磁気抵抗比(TMR ratio)の年次推移 (近年、飛躍的なトンネル磁気抵抗比の向上が進んでいる)

SSFは、上述のTMR素子を、核磁気共鳴(NMR)型磁気センサの一つである、プロトン磁力計に 応用することを考案した。プロトン磁力計は、NMRの共鳴周波数が外部磁場に比例することを 利用した磁気センサである。従来のプロトン磁力計のセンサ部は、プロトン(水素イオン)を 多く含有した液体(水や灯油など)を入れた非磁性の容器と、その外部に巻かれた励磁用のコ イル、検出用のコイルから構成される。励磁用コイルに電流を流して強い磁場を生成すると、 プロトンのスピンの方向が同じ向きに整列する。続いて、励磁用の電流を遮断して印加する磁 場を消失させると、プロトンのスピンの方向は時間をかけてランダムになる(緩和される)。 この緩和過程において、検出コイルに微弱な高周波電圧が誘起される。この信号周波数がNMR 周波数であり、外部磁場の強度に比例する。外部磁場が地磁気の場合、共鳴周波数は約2 kHz である。プロトン磁力計は量子磁力計のため、原理的に、方向や温度等の影響を受けず、装置 の個体差による違いを考慮する必要が無く、高い計測精度が得られる。計測精度がppmオーダ ーであることから、潜水艦の位置特定、海底・地下の探査、機雷・地雷の探知、地球・宇宙物 理学など、広く応用されてきた。一方で、検出可能な磁場はナノテスラオーダーであり、感度 を高めるためには、原理的にセンサのサイズを大きくする必要がある。本研究では、プロトン 磁力計の検出部にTMRセンサを応用することで、高感度を維持しつつ、デバイスサイズを劇的 に小さくできると考えた。1cm³程度の水中のプロトンを、10mT程度のパルス磁場で励磁した場 合、地磁気程度の外部磁場下で生じるNMR磁場は約2kHz、100pTに相当する。図. 2に、その NMR磁場に対する検出コイル、および、TMRセンサの出力電圧の見積もりを示す。従来の検出 コイルでは、出力が素子面積に比例するのに対し、TMRセンサの出力は、素子面積に依存しな い。古典的な電磁誘導の法則に対し、TMRが量子力学的な効果によるためである。従って、 TMRセンサを信号検出部に利用することで、非常に微小なプロトン磁力計が実現できる可能性 がある。本研究の目的は、TMRセンサを用いたプロトン磁力計が実現可能であること、センサ 感度および測定精度が素子サイズによらず、小型化可能であることを実証することである。



図. 2 検出コイルとTMR素子における、プロトンNMR磁場による出力電圧見積もりの比較 (当社のTMRセンサの感度レベルでは、40cm²以下の素子サイズ領域で検出コイルよりも有利である)

1. 委託業務の目的

(1) 研究課題の最終目標

研究期間内(2年間)での具体的な目標として、素子面積が0.1~1cm²のTMRセンサを用いてプロトン核磁気共鳴(NMR)信号を測定し、信号出力が素子サイズに依存しないことを確認する。 また、外部磁場の検出感度および測定精度を明確化する。磁力計モジュールの目標性能として、 1~10 kHzの周波数帯域で、100 pT/√Hz以下の磁場分解能の達成を目指す。これにより、TMR 素子が小型プロトン磁力計に応用可能となり、将来的には、様々な分野に応用展開が可能なポテンシャルを示すことができる。

(2) 最終目標を実現するために克服又は解明すべき要素課題

最終目標を実現するために克服又は解明すべき要素課題は以下の通りである。

NMR用低ノイズTMR磁気センサの開発

超高感度な生体磁場用のTMRセンサ素子に関して高い実績を有している。しかし、生体磁場 は100 Hz以下の低周波の信号であり、生体磁場用に最適化された素子を、そのまま核磁気共鳴 用のセンサに適用することは難しい。本研究では、地磁気程度の外部磁場下におけるNMR周波数 にターゲットを絞っていることから、数 kHz帯で低ノイズを実現するセンサが必要である。そ のため、TMR多層膜の膜構造及びセンサに磁束を効率的に収束させるための集磁構造・材料の最 適化を進める必要がある。

②TMR型プロトン磁力計モジュールの製作

生体磁場信号検出用の低周波領域における、低ノイズ電圧検出回路はすでに当社で開発済みである。本提案研究では、数kHz帯で動作する周波数検出タイプの回路を新規に設計し、製作する必要がある。また、①で開発したTMR磁気センサと組み合わせたTMR型プロトン磁力計モジュールを制作する必要がある。

③NMR信号の測定・磁力計性能の評価

②で製作したTMR型プロトン磁力計モジュールを用いて、プロトンのNMR信号を測定し、目 論見通り、信号出力が素子サイズに依存しないことを確認する必要がある。また、磁力計モジュ ールとしての性能・ポテンシャルを見極めるために、外部磁場の検出限界、出力のリニアリティ 測定等を行う必要がある。

(3) 要素課題に対する実施項目及び体制

これらの要素課題に取り組む為に、各実施項目の具体的な内容を以下のように設定した。体制 については、SSF社内にて基本的に毎週月曜の週次会議で全体的な状況を把握し、各要素課題に ついて担当者を明確にして取り組んだ。

- NMR用低ノイズTMR磁気センサの開発
- ① -a 低ノイズTMR多層膜構造の開発

TMRセンサの主要なノイズは、低周波領域において周波数に逆比例する1/fノイズ、高周波 領域における周波数に依存しないホワイトノイズである。地磁気下のプロトン核磁気共鳴周波数 である数kHz帯域では、ホワイトノイズがより支配的である。ホワイトノイズの起源は、素子の 電気抵抗に比例する熱ノイズ、および、トンネル電流の揺らぎに起因するショットノイズ、スピ ンの熱揺らぎに起因する磁気ノイズ、と考えられている。特に室温下では、熱ノイズ、磁気ノイ ズが支配的であるため、これらのノイズ低減により、NMR用の高感度磁気センサが実現可能と考 えられる。本研究開発では、熱ノイズ低減のための素子の低抵抗化(面積抵抗 RA < 10⁵ $\Omega \mu$ m²)、磁気ノイズ低減のための磁性材料の磁気摩擦の低減(磁気摩擦係数 < 0.01)を行うこ とで、高周波領域で低ノイズ(< 100 pT/ \int Hz)を示すTMR磁気センサを実現する。ここで面積 抵抗RAは、薄膜に対して面直方向に電流が流れる場合に面積で規格化した電気抵抗で、面積によ らず膜面直方向の電気抵抗を比較する場合の指標である。又、磁気摩擦係数αは、磁性体中でス ピンが歳差運動する場合の摩擦係数であり、磁気緩和係数とも言われる。デバイスのノイズのう ち、磁気的なノイズの大きさの指標となる。

①-b 低ノイズ集磁構造・材料の最適化

TMRセンサの高感度化のために、センサ素子に外部磁束を収束して印加する構造(集磁構造) が用いられている。低ノイズ化のためには、素子のみならず、集磁構造についても低ノイズ化を 図る必要がある。そのため、高周波領域で磁気ノイズが小さい材料を選定し、構造内部に存在す る磁区が安定化する構造に最適化する必要がある。本研究では、研究期間内にNMR用の集磁材料 を探索し、また、得られた材料を種々の形状に加工してノイズ評価することで、低ノイズ集磁構 造を実現する。最終的に、集磁による信号増幅率が10倍以上の性能を示す集磁構造を素子に装着 した状態で、100 pT/√Hz以下のノイズを実現する。

② TMR型プロトン磁力計モジュールの製作

従来のNMR用の周波数検出回路、これまでに当社で開発したTMR磁気センサ用電圧増幅回路の 知見をもとに、新たにTMR型プロトン磁力計に適した回路の設計および製作を行う。製作した回 路と(1)で開発した素子を組み合わせたTMRプロトン磁力計モジュールを製作する。磁力計モ ジュールの性能として、1~10 kHzの周波数帯域で、100 pT/√Hz以下の磁場分解能の達成を目 指す。また、NMR信号を励起するための回路も合わせて制作する。1 cm³程度の水に約10 mT以上 のパルス磁場を印加可能で(約100 pTのNMR信号強度に対応)、かつパルス磁場が1~2 ms(プ ロトンの緩和時間よりも十分に短い時間)で消磁可能なコイルおよび、スイッチング回路の設計、 製作を行う。

③NMR信号の測定・磁力計性能の評価

②で製作した磁力計モジュールを用いて、1cm³程度の水から発生するプロトンのNMR信号を 測定する。0.1~1cm²の面積で作製したセンサ素子に対して評価を行い、信号出力が素子サイズ に依存しないことを確認する。同時に、従来のピックアップコイルによる検出方法との比較を行 い、TMRセンサの優位性を確認する。また、外部磁場の検出限界を見極めつつ、出力のリニアリ ティ測定等を行うことで、磁力計としての性能評価を行う。これらの評価により、TMR型プロトン磁力計の有用性と、将来的に実現可能なポテンシャルを明確化できると考えられる。

④プロジェクトの総合的推進

研究代表者は、定期的に全体の進捗を管理し、計画に影響を及ぼさないように必要に応じて リソースや進め方の修正を指示しながらプロジェクトを進捗させる。個々の実施項目毎に発生す る課題に対しても、担当者と密接に連携し、大局的な見地から適宜技術的なアドバイスを与え、 課題解決に向けて指導を行う。以上により、最終目標を計画通りに達成する。

2. 研究開始時に設定した研究目標の達成度

(1) 面積の異なる小型TMRセンサによるNMR信号の測定

(研究開始時の設定目標)

素子面積が0.1~1cm²のTMRセンサを用いてNMR信号を測定し、信号出力が素子サイズに依存しないことを確認する。

(研究開発の達成度)

TMR型プロトン磁力計モジュールと従来のプロトン磁力計に用いられているピックアップコイルからの出力を同時計測した結果、TMR型プロトン磁力計モジュールに用いたTMRセンサの面積は0.60cm²で2.25nVの信号出力を得た。これに対してピックアップコイルの面積をMRセンサと同等の面積にした場合に予測される出力は0.12nVと検出が難しいレベルである。以上から、素子面積が1cm²以下と非常に小さい面積領域において、原理的に出力の面積依存性が少ないTMR素子を用いる事で、従来のプロトン磁力計では難しい小型プロトン磁力計を実現できる可能性を、磁場強度に対するリニアリティや1ppm以下の繰り返し精度について、実測値を以て示すことができた。当初1cm²に近い面積のTMRセンサでの達成を目論んでいたが、FCの形状による効果により1cm²の約半分の0.60cm²の面積のTMRセンサで測定できた事から、達成度は140%と判断する。

(2) 小型TMRセンサによるプロトン磁力計による磁場の検出感度と精度

(研究開始時の設定目標)

外部磁場の検出感度および測定精度を明確化する。

(研究開発の達成度)

面積0.60cm²のTMR素子を用い、1cm³の水量のNMR信号を測定できる事を確認した。測定精度は 磁力計モジュールの性能として、約2100Hzに対して200μHz以下の精度を確認した。これは磁力 計として十分な精度である1ppmを上回っていると考える。達成度は120%と判断する。

(3)小型TMRセンサをプロトン磁力計に用いた場合の高磁場分解能の実現

(研究開始時の設定目標)

1~10 kHzの周波数帯域で、100 pT/√Hz以下の磁場分解能の達成を目指す。

(研究開発の達成度)

1cm²以下の面積のTMR素子に集磁を行う為の集磁板(以下、フラックスコンセントレータ=FC) を付加した、面積が0.096、0.60、0.68cm²のそれぞれのTMRセンサで100pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ 以下の磁場分解 能を実現した。特に0.60cm²のTMRセンサは低域を含めて10pT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ 以下を実現しており、達成度 は120%と判断する。

3. 委託業務における研究の方法及び成果

以下、業務計画書の「3.3 要素課題に対する実施項目及び体制」に記載の実施項目毎に 説明する。

(1) NMR用低ノイズTMR磁気センサの開発

(1a)低ノイズTMR多層膜構造の開発

TMRセンサの主要なノイズは、低周波領域において周波数に逆比例する1/fノイズ、高周波領

域における周波数に依存しないホワイトノイズである。地磁気下のプロトンNMRの周波数である 数kHz帯域では、ホワイトノイズがより支配的である。ホワイトノイズの起源は、素子の電気抵 抗に比例する熱ノイズ、および、トンネル電流の揺らぎに起因するショットノイズ、スピンの熱 揺らぎに起因する磁気ノイズ、と考えられている。特に室温下では、熱ノイズ、磁気ノイズが支 配的であるため、これらのノイズ低減により、NMR用の高感度磁気センサが実現可能と考えられ る。本研究開発では、熱ノイズ低減のための素子の低抵抗化、磁気ノイズ低減のための磁性材料 の磁気摩擦 α の低減を行う。熱ノイズ低減の為の低抵抗化には面積抵抗(RA)の低減が有効であ る。その為にMg0トンネル絶縁層を形成するための酸化条件の最適化による低面積抵抗(RA)化を 検討した。尚、RAは素子抵抗×素子面積で定義され、障壁層の膜厚、障壁高さで決まる、トンネ ル電流に対する単位面積当たりの抵抗値である。図.3にTMR多層膜の構造を示す。低RA化の為 の具体的な方法は、Mg0トンネル絶縁層形成工程において、Mgを酸化する際の圧力を微調整し、 時間を短くし、繰り返し回数を多くする方向で最適化を行った。最適化後のTMR比とRAの関係を 図.4に示す。最適化後は、低RA領域においても従来の条件と比較しTMR比を改善できた。具体 的にはMg0障壁層の製作条件を最適化することで10⁵ Ω μ ㎡以下の低RA領域での高いTMR比(最 大250%)を実現した。



図. 3 TMR 多層膜の構造。



図. 4 面積抵抗 RA に対する TMR 比の依存性。MgO 障壁層の製作条件を最適化により 10⁵ Ω μ m³以下の低 RA 領域で TMR 比が 200%未満から最大 250%(全域で 200%以上)に改善。

前述の高感度、低ノイズが期待できる低RAなTMR多層膜を用い、NMR測定に用いるための素子の製作を行った。図. 5に設計を行ったフォトマスクパターンの概略図を示す。1 cm²以下の目標値に合致する0.71x0.71=0.50 cm² (7.1x7.1 mm²)の素子と、0.1 cm²以下の目標値に合わせた0.31×0.31=0.096cm² (3.1x3.1 mm²)の2種類のフォトマスクを設計・製作した。製作したフ

オトマスクを用い、微細加工を行った。製作した3インチφウェハの外観写真を図.6に示す。 微細加工ではフォトリソグラフィー、Arイオンミリング等を用いてTMRアレイ素子を形成してい るが、膜剥がれ等のトラブルなくTMRアレイを形成することに成功した。また、光学顕微鏡によ る外観確認を行った結果設計通りの形状でTMR多層膜を加工できていることが確認できた。製作 したTMRアレイ素子の抵抗値マップ、トンネル磁気抵抗(TMR)比の測定結果を図.7に示す。 0.096cm²センサに関してウェハの左右方向に抵抗値の若干の分布が見られているものの、ほぼ設 計値通りの比較的均一な抵抗値が得られた。また、抵抗変化率であるTMR比に関しても100%以 上の比較的高い値を得ることに成功した。



図. 5 設計を行ったフォトマスクパターンの概略図。チップ中央の黄色の一列が TMR アレイ を形成している部分であり、紫色の部分には後述するフラックスコンセントレータが配置される。



図. 6 製作した素子ウェハの外観写真。



図. 7 製作した素子基板の抵抗値の分布と典型的な磁気抵抗曲線。 抵抗値の若干の分布が 3.1x3.1 mm²センサで見られるものの、比較的 均一な抵抗分布が得られ、100%を超える高い TMR 比が観測された。

図. 3におけるフリー層中のソフト材料として NiFe 70 nm と CoFeSiB 70 nm を用いた素子 を製作し、ノイズスペクトルを測定することでαとノイズ密度の対応の確認を行った。図.8に 製作した素子のノイズスペクトルを示す。NiFe を用いた素子は CoFeSiB の素子と比較して全周 波数でノイズが小さいことが確認され、αの測定結果と対応していることがわかる。表.1に NiFe と CoFeSiB を用いた素子の信号出力、ノイズ密度、磁場分解能を示す。NiFe を用いた素子 はスペクトルからも分かるようにノイズ密度が小さいが、一方で信号出力も小さい。これは NiFe と CoFeSiB のソフト性及び TMR アレイの抵抗変化率の差によるものと考えられる。結果と して、信号電圧がノイズ電圧と一致する最小の磁場の大きさとして定義される磁場分解能は、 CoFeSiBを用いた素子の方が高くなっている。図8(b)に強磁性共鳴法で測定したNiFeおよび CoFeSiB の共鳴磁場および共鳴線幅の角度依存性を示す。プロット点が実験結果であり、実線が LLG 方程式によるフィッティング結果である。いずれの試料についても、実験結果は非常によく フィッティングできていることが分かる。解析により得られた NiFe および CoFeSiB のαの値は 0.006 および 0.009 であり、いずれの試料も目標とした 0.01 を下回り、NMR の測定周波数領域 でのノイズは十分小さくなると考えられる。CoFeSiBのαの値は 0.009 であり、NMRの測定周波 数領域でノイズは十分小さいと考えられることから、これ以降は信号出力が大きく磁場分解能の 小さい CoFeSiB を用いたセンサを中心に性能向上を目指した。尚、LLG 方程式は Landau Lifshitz Gilbert 方程式で、磁場中での磁化ベクトルの歳差運動を記述する微分方程式である。



 図.8 (a) ソフト層に NiFe と CoFeSiB を用いた 素子のノイズスペクトル。

(b)磁気摩擦係数αの測定結果。

表. 1 NiFe、CoFeSiBを用いた素子の信号出力、ノイズ密度、磁場分解能。

ソフト層材料	信号 (µV/µT)	ノイズ密度 (nV/Hz ^{1/2})@1 Hz	磁場分解能 (pT/Hz ^{1/2})@1 Hz
NiFe	140	18.1	129
CoFeSiB	776	56.6	73

(1b) 低ノイズ集磁構造・材料の最適化

集磁を行う為の集磁板(以下、フラックスコンセントレータ=FC)の材料選定と形状の最適化 を行った。センサ素子の性能を向上させる手段の一つとして、FC がある。FC は軟磁性体からな る板状の構造物であり(図.9)、空間に存在する磁束を収束する効果がある。FC を TMR アレ イの近傍に配置した場合、TMR アレイには収束された磁束が印加されることとなるため、センサ 素子の実効的な信号出力が増加し、結果として S/N が改善される。本研究では過去の生体磁場 計測において実績のある NiFe を FC の材料として選択し、1 cm²以下、及び 0.1 cm²以下という 条件の元、FC の製作と評価を行った。

FCを製作するにあたり、NiFe板の膜厚に対する収束率(ゲイン)の評価を行った。 0.71x0.71=0.50 cm² (7.1x7.1 mm²)の素子に対して、0.2~2.0 mmの種々の板厚のFCを製作 しTMRアレイ近傍に配置して、均一な外部磁場に対するシグナルのゲインを測定した。図. 1 0にゲインのNiFe板厚依存性を示す。NiFeの板厚が0.5 mmの際にシグナルゲインがピークを 取っていることがわかる。FCの特性上、板厚が厚いほどより多くの外部の磁束を収束するはず である。しかし、TMRアレイにおいて磁束を検知する部分は一定の膜厚のソフト磁性層(この実 験の場合70 nmのCoFeSiB層)であるため、TMRアレイ近傍ではNiFe厚は薄いほど効率的に磁 束がソフト層に入っていくこととなり、ゲインが大きくなると考えられる。この外部の磁束を収 束する際の板厚の効果と、TMRアレイへの磁束の印加の関係の兼ね合いから、今回の実験では 0.5 mmの板厚で最もゲインが大きくなったと考えられる。又、板厚を一定ではなく、例えば TMRアレイ遠方では板厚を厚く、近傍に近づくにつれて薄くする等、3 次元的な構造をFCに持 たせることで、より高いゲインを実現できる可能性がある。

0.5 mmの板厚を用い、1 cm² 用及び 0.1 cm² 用の FC の製作を行った。製作した FC の模式図を図. 11に示す。又、それぞれの FC を TMR 素子に実装した写真を図. 12に示す。今回、1 cm² 用の FC を 2種、0.1 cm² 用の FC を 1種製作し、ゲインの向上効果を測定した。なお、1 cm² 用の(2)の FC は、素子は 0.1 cm² 用の 0.31×0.31=0.096 cm² (3.1 x3.1 mm²)を用い、FC を付加

することで最終的なセンササイズが約0.60 cm²となる設計とした。表. 2にそれぞれのFCを付加する前後の信号出力と、FCを付加したことによる信号のゲインを示す。製作したすべてのFCにおいて5倍(14dB)以上のゲインが得られていることがわかる。今回、0.096cm²素子を用いてセンササイズが1cm²以下の約0.60 cm²となる(2)のFCとの組み合わせにおいて、目標である10倍に対して、それ以上の約14倍の高いゲインが得られた。これは(1)、(3)のFCが長方形をしているのに対し、(2)のFCは凸型をしており、TMR アレイ近傍で磁束が絞られるというNiFe板面内での磁束の収束効果が得られているためと考えられる。又、TMR素子とFCを組み立てる際にFCの位置のずれによってTMRセンサの性能は大きく劣化する事から、この工程の装置化は必須である。今回、フラックスコンセントレータ実装装置を導入する事で、作業時間は15分/組から4分/組と約1/4と短縮され、手作業で±500 μ mであった組立精度が±50 μ mまで向上し、研究実施にあたり、効率化に大きく貢献した(図.13)。



図. 9 フラックスコンセントレータ (FC)の概略図。



図. 10 FC に用いた NiFe 板厚に対する、シグナルの収束率(ゲイン)。



図. 11 製作したフラックスコンセントレータ (FC)の模式図。





0.71×0.71cm²素子+FC(1)

0.31×0.31cm²素子+FC(2) 0.31×0.31cm²素子+FC(3)

図. 12 製作した FC を TMR 素子に実装した写真。



図. 13 フラックスコンセントレータ実装装置

表. 2 各種の FC を付加した場合の信号の値と収束率(ゲイン)。

FC	センサ素子	信号(FC無し) (µV/µT)	信号(FC有り) (µV/µT)	ゲイン(倍)
(1)1 cm ² 用FC	0.71x0.71 cm ²	992	5680	5.7
(2)1 cm ² 用FC (センサ0.1 cm ²)	0.31x0.31 cm ²	696	9920	14.3
(3)0.1 cm ² 用FC	0.31x0.31 cm ²	696	3200	5.0

(2) TMR 型プロトン磁力計モジュールの製作

ppm レベルで周波数変動を測定する周波数カウンタの導入を行い、開発したセンサに組み合わせる周辺回路と NMR 信号を励起するための回路を製作した。又、磁場印加・検出兼用コイルによる従来の小型磁力計モジュールの測定にも対応できるように、必要となるコイルや周辺回路(切換機、増幅回路(オペアンプ、LPF を含む))の製作を行った。

ppm レベルでの地磁気の変動を検知するためには、NMR の自由誘導減衰(FID) 信号の周波数 変動を ppm レベルで測定する必要がある。周波数計測のため「Keysight 製ユニバーサル周波数 カウンタ 53230A」を用いた(図.14(a))。53230A が、ppm オーダーの周波数分解能を得る ための条件を明らかにするため、理想的な信号が入力された場合の周波数分解能の測定を行った。 53230A とシグナルジェネレータを直結し、サイン波信号を入力し周波数を読み取った。サイン 波の周波数は地磁気の FID 信号に近い 2 kHz とし、振幅は 100mV_{p-p} とした。測定条件としてゲ ート時間(測定時間)を変化させ 100 回の計測を行い、測定された周波数の値の peak-to-peak 値を周波数ノイズとして定義した。図.14(b)に周波数ノイズのゲート時間(周波数測定の 際の1回の測定時間)依存性を示す。ゲート時間を長くとることで、周波数ノイズが急峻に低 減することがわかる。信号として 2 kHz のサイン波を用いているため、1 ppm は 2x10⁻³ Hz に対 応するが、おおよそ 600 ms 以上の計測時間を取ることで周波数ノイズがこれを下回っているこ とがわかる。実際の FID 信号の長さは 100 ms 程度と考えられるため積算が必要であるが、入力 信号の S/N が高ければ数回~数十回の積算で ppm オーダーの計測が可能であることが示された。



図. 14 (a) ユニバーサル周波数カウンタ

(b) 周波数ノイズのゲート時間(測定時間) 依存性。

TMR 型プロトン磁力計モジュールに必要となるセンサからの信号を増幅、フィルター処理等 を行う回路を製作した。図.15にTMR 型プロトン磁力計モジュールに用いた回路のブロック 図を示す。TMR センサと 60dB のプリアンプは近接して配置され、プリアンプ以後の信号は差動 信号となる。その後計装アンプとローパスフィルタ(LPF)を経て 40dB のメインアンプから出 力される。図.16に製作した TMR 型プロトン磁力計モジュール示す。



図. 15 TMR 型プロトン磁力計モジュールの回路ブロック図。



図. 16 製作した TMR 型プロトン磁力計モジュール。

本研究では、磁場印加・検出兼用コイルによる従来の小型磁力計モジュールの測定にも、 TMR型プロトン磁力計の測定にも対応できるように、図. 17内に示すコイル、切換機、増幅回 路(オペアンプ、LPFを含む)の製作を行った。従来型に用いる場合には、磁場印加にも検出にも 使用し、TMR型プロトン磁力計モジュールの場合には、磁場印加にのみ使用する事になる。図. 18に今回製作した測定対象磁場印可用ヘルムホルツコイルと検出用ピックアップコイル(励起 磁場印可兼用)と計測機器の写真を示す。



本研究の磁力計モジュールシステム

図. 17 従来(磁場印加・検出兼用コイル)の磁力計モジュールの測定系と製作したコイルと 回路。



図.18 測定対象磁場印可用ヘルムホルツコイルと検出用ピックアップコイル(励起磁場印可 兼用)と計測機器。

図.16に示した信号検出に用いる回路の動作確認とシステムノイズが目標値の100pT以下を達成しているかを確認する為に、図.18に示したコイルと従来のTMRセンサ(10mm×36mm)を用いて測定を行った。使用した水の容量は400ccである。ヘルムホルツコイルで 50μ T(地磁気を想定)の磁場を発生させた場合と、磁場 0μ Tの場合のそれぞれの出力を確認した。尚、この測定は地磁気の影響を1/100まで低減できるシールドルーム内部で行った。 50μ Tの磁場を発生させた場合に得られた信号を図.19(a)に示す。励磁磁場遮断によって、時間と共にNMRが時間と共に減衰するFID信号が観測された。又、その共鳴周波数の周波数成分を解析したところ、2.1kHとなり、ヘルムホルツコイルに印加した磁場の強度である 50μ Tに良く一致している事が確認できた(図.19(b))。



Time (μs)



図.19 (a) ヘルムホルツコイルで 50 µ T の磁場 に得られた FID 信号。



ヘルムホルツコイルからの磁場を 0 µ T にした場合のシステムノイズについては±23pT であった(図. 20)。これは磁気分解能の目標値である 100pT より低い事から目標をクリアしていた。



図. 20 測定対象磁場が 0 µ T の場合の測定計のシステムノイズ。

又、励磁コイルによる 10 mT 以上のパルス磁場を印加した場合(約 100 pT の NMR 信号強度に 対応)に、パルス磁場が 1~2 ms(プロトンの緩和時間よりも十分に短い時間)で消磁する必要 があるが、現時点でφ70mmのコイル(巻数 600、直流抵抗値 1.53 Ω)を用いて測定すると、10mT のパルス磁場を印加した場合の消磁時間の結果は 8ms であり、目標の 2ms 以下に対して未達で あった(図. 21)。但し、後述するように、消磁時間 8msのままで最終的な目標である 1cm³の 水から発生するプロトンの NMR 信号を 1cm²以下の TMR センサの計測する事ができた。これは、 ピックアップコイルを NMR 測定に使用した経験から 2ms を目標として設定したが、TMR センサの 感度が高い事で、パルス磁場の消磁時間に余裕ができた為と考えている。



図. 21 NMR 信号を励起するための磁場発生装置の印加電流と磁場強度と消磁時間の関係

(3) NMR 信号の測定・磁力計の性能評価

(3) - 1 センサの個別評価

最初に、我々が生体磁場計測に使用していた装置を使用し、1cm²以下のTMR センサ単独で1 kHz~10 kHz の周波数帯域で 100 pT/ \sqrt{Hz} 以下の磁場分解能を実現できることを確認した。表. 3 にそれぞれのFC を付加したセンサの信号出力、ノイズ密度を示す。表. 4 に各種センサのFC の有無による磁場分解能の違いを示す。FC を付与する効果について、FC(2)と0.31×0.31cm²の 素子を組み合わせる事によって一番顕著に性能が向上し、磁気センサの性能表記で一般的な 1Hz における磁気分解能は 1/10 以下の 8.2 pT/ \sqrt{Hz} @ 1 Hz を達成した。図. 2 2 にはプロトン磁力 計の動作周波数範囲である 1~10kHz における磁場分解能のスペクトルを示す。すべてのセンサ において目標値である 100pT/ \sqrt{Hz} 以下を満たしていることを確認することができた。

表. 3 各種 FC を付加したセンサの信号、ノイズ密度。

FC	センサ素子	信号(FC有り) (μV/μT)	ノイズ密度 (nV/Hz ^{1/2})@1 Hz
(1)	0.71x0.71 cm ²	5680	123
(2)	0.31x0.31 cm ²	9920	81
(3)	0.31x0.31 cm ²	3200	193

表. 4 各種センサの FC の有無による磁場分解能の違い。

FC	センサ素子	磁場分解能(FC無) (pT/Hz ^{1/2})@1 Hz	磁場分解能(FC有) (pT/Hz ^{1/2})@1 Hz
(1)	0.71x0.71 cm ²	136.2	21.7
(2)	0.31x0.31 cm ²	345.3	8.2
(3)	0.31x0.31 cm ²	279.3	60.3



図. 22 (a) 生体磁場計測用測定装置。

(b) FC 付 TMR センサの磁場分解能。

又、TMR素子の信号出力が、コイル検出と比較して、素子サイズ(面積)に依存しない事を 1cm²以下の実センサで確認した。素子面積が0.50cm²と0.096cm²のTMRセンサを用いて1µTの磁場 を印可した場合の出力を測定したところ、それぞれ992µVと696µVの信号出力を得、0.096cm² に対する0.50cm²の出力の割合は70.2%であった。図.23に青丸で示す。ピックアップコイル について、同様に0.50cm²から0.096cm²へ面積が変化した場合の信号の変化を計算により求めた ところ、19.1%であり、信号の素子面積依存性は、ピックアップコイルを用いた場合に対して、 TMRセンサを用いる事で大きく改善する事を確認した。更に0.50cm²のセンサにFCを付与し面積 が0.68cm²となったFC(1)付きTMRセンサ、0.096cm²のセンサにFC(2)、FC(3)をそれぞれ付与し面 積が0.60cm²と0.096cm²となったFC付きTMRセンサのデータを図.23に赤丸で示す。FCを付与 する事で出力は向上するが、面積依存性は大きくなる事が判明した。但し、何れのセンサも面積 は1cm²以下である。



図. 23 信号出力の素子サイズ(面積)に依存性。

次に、本研究の測定における最終目的である素子面積が1cm²以下のTMRセンサを用いて1cm³の 水から発生するプロトンのNMR信号を測定する為に、FC(2)と0.31×0.31=0.096cm²のTMR素子を 組み合わせた面積0.60cm²のTMRセンサを用いたTMR型プロトン磁力計モジュールと図. 18の NMR評価システムを用いて測定を行った。まず、1 kHz~10 kHzの周波数帯域で100 pT/ \int Hz以下 の磁場分解能を実現できることを確認した。図.24 (a) にTMR型プロトン磁力計モジュールの構成図、図.24 (b) にTMR型プロトン磁力計モジュールの磁気分解能を示す。センサ単独の場合より分解能は低めではあるが、測定帯域全てで10pT/ \sqrt{Hz} 以下であり、目標値の100pT/ \sqrt{Hz} 以下を達成した。



図. 24 (a) モジュールの構成図。 (b) TMR 型プロトン磁力計モジュールの磁場分解能。

(3) - 2 NMR 評価

次に1cm³の水から発生するプロトンのNMR信号の測定を行った。測定周期は50秒とし、内8秒を 核磁気化時間とした。核磁気化に使う励磁コイルの駆動電流は10Aで75.4mTに相当する。外部磁 界は地磁気50 μ Tを想定し0.848Aをヘルムホルツコイルに印加した。アベレージング回数は512 回である。TMR型プロトン磁力計モジュールとピックアップコイルからの出力を同時計測してい る。得られたNMR信号を図. 25に示す。黄色がピックアップコイル、紫がTMR型プロトン磁力 計モジュールそれぞれのNMR信号である。励磁が終了し、タイムラグの後に減衰が始まる様子が 観測されている。右上の拡大図を見ると、一定の周期を持った信号である事が見て取れるが、こ のままでは判りづらいので、外部磁界を42、46、50µTと変化させた場合のユニバーサル周波数 カウンタで周波数変換した結果を図.26に示す。縦軸はTMR型プロトン磁力計モジュールで測 定したNMR周波数を、横軸はピックアップコイルで測定したNMR周波数を示している。両者は良 い相関を示しており、TMRセンサをプロトン磁力計として応用する上で、十分な可能性を持つ事 を示すことができた。最終的には磁場強度へ変換する必要がある。磁場の大きさをB(T)、NMR 周波数をf、とした場合、磁場と周波数の関係はB=(23.486595nT/Hz)fの形で表現される。こ れを用いてNMR周波数を磁場に変換した結果を図. 27に示す。TMR型プロトン磁力計は従来の プロトン磁力計(ピックアップコイルの値)に対して、十分なリニアリティを持つ事を示してい る。



図. 25 1cm³の水から発生するプロトンのNMR信号。



図. 26 外部磁界を変化させた場合のTMR型プロトン磁力計と 従来のプロトン磁力計のNMR周波数。



図. 27 外部磁界を変化させた場合のTMR型プロトン磁力計の 従来のプロトン磁力計に対するリニアリティ。

測定の繰り返し精度を確認する為に、水量を1cm³(1cc)、5cm³(5cc)、500cm³(500cc)と変 化させて10回の測定を行った。全ての水量で標準誤差は20μHz以下であり、1ppm以下の繰り返 し精度を確認した(図. 28)。



図. 28 TMR型プロトン磁力計によるNMR測定の繰り返し精度。

今回、TMR型プロトン磁力計モジュールとピックアップコイルからの出力を同時計測しており、 改めて両者のセンサ面積を比較した結果を図.29に示す。TMR型プロトン磁力計モジュールに 用いたTMRセンサの面積は0.60cm²で、2.25nVの信号を得た。これに対してピックアップコイル の面積は29.20cm²で5.96nVであった。もし、ピックアップコイルをTMRセンサと同等の面積にし た場合に予測される出力は0.12nVと検出が難しいレベルである。以上から、本研究の目的であ った素子面積が1cm²以下と非常に小さい面積領域において、原理的に出力の面積依存性が小さい TMR素子を用いる事で、ピックアップコイルでは難しい小型プロトン磁力計を実現できる可能性 を、磁場強度に対するリニアリティ、1ppm以下の繰り返し精度の実測値を示すことができた。



図. 29 TMRセンサとピックアップコイルそれぞれの面積とFID出力の比較

上記のように、素子面積が1cm²以下のTMRセンサを用いて1cm³の水から発生するプロトンのNMR 信号を測定した結果、リニアリティや繰り返し精度についてはプロトン磁力計としての可能性を 示す事ができた。但し、一回の計測に7時間7分(測定周期:50秒、アベレージング回数:512回) 要している。測定周期50秒の内訳として8秒を核磁気化時間、FID測定時間は約0.1秒以下、約42 秒は励磁コイル冷却の為の保持時間である。つまり実測時間は1時間9分ほどである。一回の計測 に要する時間は用途に応じて変化すると考えられるが、7時間余り掛かるのは現実的では無いと 思える。今後、コイルを励磁専用として最適化を行う事や、冷却効率を高める事で冷却の為の保 持時間は短縮できると考えるが、実測時間の1時間余りは現時点で最低限必要な時間である。以 上を考えると、測定対象を地磁気程度の50μTの場合、必要となる水量1cm³と、それを検出する TMRセンサの面積として0.60cm²程度が現時点での実用的な限界と考える。

今回の結果から見込めるTMR型プロトン磁力計モジュールのセンサ部の大きさは、直径38mm、 長さ60mmで体積約79,400mm³である。現在市販されているプロトン磁力計モジュールの中で、セ ンサ部の小さいものは直径78mm、長さ188mmで体積約900,000mm³であった*。これと比較すると、 体積で1/10以下を実現できる事を示している。センサ部の大きさは、信号を得るのに必要な水 の量に依存しており、体積約900,000mm³のセンサ部の内、水の量は約半分程度(450,000mm³) である。本研究では、この水の量を1/450の1cc(1000mm³)まで減らしても、TMRセンサを用いる 事でNMR信号の検出を成功させた。よって、励磁機構を水の量1ccに対して最適化する事で、更 なる小型化を実現できると考える。原理的には水や油ではなく、固体で核磁気共鳴を発現する材 料を基板とし、その上にTMR素子や励磁用薄膜コイルをフォトリソグラフィーによって形成する 事で、ICチップの様なTMR型プロトン磁力計モジュールの開発が期待される。

(* http://www.tierra.co.jp/products/PM218SD.pdf)

4. 委託業務全体の成果

4. 1 計画時に想定していなかった成果(副次的成果)や、目標を超える成果

4.1 計画時に想定していなかった成果(副次的成果)や、目標を超える成果

当初、一番磁場分解能が高いTMRセンサは面積0.68cm²と予想していた。しかし、FCの形状効 果により、これより小さい0.60cm²の方が高い磁場分解能を示し、このセンサで1cm³の水量で のNMRの計測ができた。今後、FCを含めたTMRセンサの設計を最適にする事で、更なる小型化 が期待される事から、想定を上回る結果であると同時にTMR型プロトン磁力計の将来性が高ま ったと考える。

4.2 研究課題の発展性(間接的成果を含む)

本研究では、超小型のプロトン磁力計の可能性を示したが、この技術は小型の核磁気共鳴像 (MRI)実現にも直接結びつく重要な技術と考えている。TMRセンサは生体用磁気センサとし て、心磁計や脳磁計への応用も進められている。例えば脳磁計へ応用した場合、脳波などの電 気的に測定した信号に比べて約10倍の空間分解能で測定が可能である。現在、脳磁計として使 用されている超伝導量子干渉素子(SQUID)と比較した場合、磁気シールドルームなどの特殊 設備を必要としないので、将来は日常環境において、同一デバイスで脳磁測定とMRIを取得可 能になる。このことで、脳の構造情報と磁場信号が同一装置で計測でき、どのような信号がど こで発生しているかを精度良く測定できる。よって、従来の脳波などのデバイスでみられる分 析ミスや、ヒトによる有効性のバラツキを劇的に低減できる。そのため、波及効果は、医療・ 福祉・教育・エンターテイメント・マーケティングなど、極めて広範な分野で応用され、超巨 大な市場へと成長する可能性がある。

よって、今後一つのTMRセンサで、MRIと生体磁場信号の両方を同時に計測できる医療機器 を実現する基礎となる成果と考える。

4.3 研究成果の発表・発信に関する活動

第46回 日本磁気学会学術講演会の招待講演にて本研究の成果の一部を報告する予定。 会期:2022年9月6日~8日

題名:Development of compact proton magnetometer using TMR sensor

5. プロジェクトの総合的推進

5.1 研究実施体制とマネジメント

組織内の意思決定については研究代表者と実施者は毎週月曜日の午前中に定例会議を行い、 進捗状況の把握と必要な意思決定を行い、必要に応じてフェイスツーフェイスのコミュニケー ションを行った。現場レベルでは、テーマ毎のメンバーは、ほぼ毎日必要な情報の確認を行っ た。全体会議としては、原則毎月一回、研究代表者の会議を行い、全体的な進捗の確認を行っ た。以上により研究開発体制を有効に機能させる取り組みを行った。

5.2 経費の効率的執行

無駄な経費を発生させないように、常に研究実施者レベルで毎週の定例会議で確認しながら 実行した。

6. まとめ、今後の予定

今後、TMR型プロトン磁力計の実現に向けて、TMRセンサの更なる感度向上や励磁機構の小型 化と熱対策等、今回課題として明確になった項目について取り組み、超小型プロトン磁力計の商 品化を具体的なものにする活動を計画、実施する予定である。又、その発展形である小型NMRに ついては、周辺技術も含めて、研究課題も広範囲であると考える。本件については、既存のNMR メーカー等を含めて、社外の協力会社や研究所等との連携も含めて計画していく。

7. 研究発表、知的財産権等の状況

(1)研究発表等の状況

種別	件数
学術論文	該当なし
学会発表	該当なし
展示・講演	該当なし
雑誌・図書	該当なし
プレス	該当なし
その他	該当なし

(2)知的財産権等の状況

該当無し

(3) その他特記事項 該当無し

以上