

送受信回路系極低温組込み核磁気共鳴法による微小物質の
高感度測定の開発と新奇物性探索

研究者 大阪大学大学院基礎工学研究科 准教授 椋田秀和

〔研究の概要〕

核磁気共鳴(NMR)実験を用いたマイクロな視点から、未解明の超伝導物質の機構の解明、従来型とは異なる超伝導機構の探索、新たな超伝導転移温度上昇機構の探索などを目標に研究を推進した。特に近年報告されてきた超高压下や薄膜など超微小物質での新奇な高温超伝導現象へと対象を広げることが必要となってきた。本成果報告では微小物質測定の技術開発の経過と、未解明の超伝導物質の機構の解明を目指した物性探索の成果について紹介する。低温部組込みのアンプと平面コイルにより信号のより高感度での検出を行った。大きな核(電気)四重極モーメントを持つ元素で一部置換した物質系において、その置換核をプローブとし同位体 NMR 比較法を用いるアイデアで、過去の NMR では観測が難しかった軌道揺らぎ成分が抽出できることを示し、超伝導との関連を調べる新しい手法となった。

〔研究経過および成果〕

格子振動(フォノン)を媒介としたクーパ対形成による超伝導機構(BCS 機構)で長らく理解されてきた超伝導現象であるが、近年その機構では説明が困難な超伝導体が次々と発見されている。これら未解明の超伝導物質の機構を実験的に解明すること、フォノン以外の根本的に全く新しい超伝導機構を見出すこと、その中で新たな超伝導転移温度上昇の機構を見出すこと、などを目標に、我々は核磁気共鳴(NMR)実験を用いてマイクロな視点から研究を推進している。特に近年、超高压下や薄膜などで新奇な高温超伝導現象が報告されてきたが、超微小試料の実験の困難さが機構解明の実験研究を阻んでいる。超伝導発現機構に関わるスピン、電荷、軌道などの動的な揺らぎを検出できる核磁気共鳴 (NMR) 測定は、極めて重要な実験手法であるが、未だほとんど行われていない。

我々は NMR 測定法をより微小物質にも適用できるように送受信回路系の極低温設置により高感度化を計る測定法を開発を行いながら、新奇物性探索の実験を行ってきた。本成果報告では、この研究期間に行ってきた微小物質測定の技術開発の成果と、それと並行して行ってきた未解明の超伝導物質の機構の解明を目指した物性探索研究について報告する。

前者に関しては、現在標準的に使われている固体 NMR 測定装置では、試料と NMR 共鳴回路は低温クライオスタット内に設置することで外来ノイズから遮蔽されているが、室温部に置かれた受信側の高周波伝送路とプリアンプ周辺で、熱雑音や外来ノイズがのり感度が低下する。この問題を解決するために、我々は、試料と共に送受信回路系をすべて直接低温クライオスタット内へ設置を試みている。この方式により熱雑音や外来ノイズ

を大きく抑制できると期待される。我々は低温でも動作する電子部品を選別し電子回路を独自に設計した。この助成期間試行錯誤を繰り返しながらプローブに組み込める超小型化に取り組み、いくつかの試作を繰り返した中で低温設置可能な超小型プリアンプを試作できた。低温組み込み型プリアンプと平面型コイルで NMR 信号を高感度で検出できることを確かめた。その手法や開発の詳細などの途中経過を日本物理学会などで報告した(2023 年日本物理学会秋季大会 17aB103-2, 「微量試料 NMR を目指した極低温小型低ノイズアンプの開発」、西岡颯太郎, 椋田秀和ら)。

後者に関しては、多軌道強相関系物質の典型である鉄系高温超伝導においては、スピン揺らぎと軌道揺らぎのどちらがどのように超伝導出現と関わっているか長年の議論に決着がついていない。特に我々が着目した LaFeAsO 系高温超伝導物質

では、元素置換や圧力印加により、軌道成分、軌道縮重度、電子ドーパ量、電子相関を制御できることを巧みに利用し、高温超伝導相が複数現れ、スピンと軌道の揺らぎの臨界性との関係を明らかにできる数少ない物質系である。我々はこの系において、大きな核(電気)四重極モーメント Q を持つ元素で一部置換した物質系を合成し、その置換核を核磁気共鳴(NMR)プローブとして同位体 NMR 比較法を用いるアイデアで、過去の NMR では観測が難しかった軌道揺らぎ成分が抽出できた(図 1)。大きな単結晶を必要としない NMR で、多結晶試料でもスピンと軌道の両者を同時に見ることができ、広範な電子ドーパ域でスピン/軌道揺らぎがどのように超伝導と相関を本研究で議論できるようになった。本研究成果は学術誌(Phys. Rev. B 誌)の Editor's Suggestion に選出された。

[発表論文]

1. Dynamics of orbital degrees of freedom probed via isotope $^{121,123}\text{Sb}$ nuclear quadrupole moments in Sb-substituted iron-pnictide superconductors, T Kouchi, H Mukuda, et al. Physical Review B 108, 014507 (2023). [Phys.Rev B 誌の Editor's Suggestion に選出]
2. Isotope $^{121,123}\text{Sb}$ -NMR study in iron-based superconductor $\text{LaFe}(\text{As}_{1-x}\text{Sb}_x)\text{O}_{1-y}\text{F}_y$, T. Kouchi, H Mukuda et al., New Physics: Sae Mulli, in press.
3. 微量試料 NMR を目指した極低温小型低ノイズアンプの開発、西岡颯太郎, 椋田秀和ら、日本物理学会秋季大会, 17aB103-2, 東北大、仙台、 Sep/17 (2023)

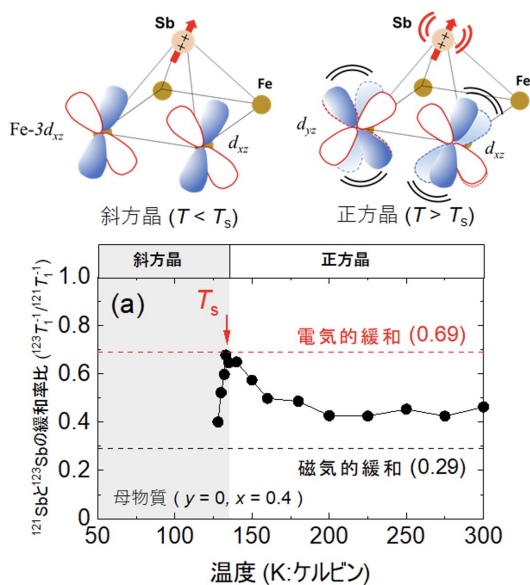


図 1 同位体 Sb-NMR 実験により超伝導体での軌道揺らぎの観測に成功