

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 4 日現在

機関番号：24506

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654109

研究課題名(和文)低温量子凝縮相研究のためのマイクロSQUID-NMRの開発

研究課題名(英文)Development of micro-SQUID-NMR for low temperature condensed matter physics

研究代表者

山口 明(Yamaguchi, Akira)

兵庫県立大学・物質理学研究科・准教授

研究者番号：10302639

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円、(間接経費) 900,000円

研究成果の概要(和文)：我々のグループで現在開発しているマイクロSQUID素子(μm サイズの超伝導量子干渉素子)とNMR法を組み合わせた、新たな $\mu\text{SQUID-NMR}$ 法の開発を試みた。予備測定として市販のSQUID素子による連続波縦磁化検出によるアルミニウム核のNMR(磁場中NQR)測定を行い、マイクロSQUIDによる検出可能性を検討した。マイクロSQUID-NMRのためのサンプルプローブを作製し、実際に測定を試みたがNMR信号は検出されなかった。より適正なSQUIDプローブのサイズの選定が重要であることを結論した。

研究成果の概要(英文)：Development of micro-SQUID-NMR technique has been carried out for the quantum condensed matter research. A preliminary cw-NMR experiment using commercial SQUID has been performed in order to judge feasibility of the micro-SQUID-NMR in 27-Al signal. New sample probe was constructed, but in the first experiment the NMR signal has been not detected. It may be important to employ micro-SQUIDs with an adequate size of the superconducting loop.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：低温物理 磁気共鳴

1. 研究開始当初の背景

NMR は物性研究の幅広い分野で用いられている。申請者もこれまで、He-3 核の NMR で、2 次元フラストレート三角格子磁性体の超低温量子相を研究してきた。フラストレート磁性体ではギャップレススピン液体相などの特異な低温量子凝縮相の存在が予測され興味を持たれる。このような低温量子相では NMR 測定に用いる磁場が量子相を壊してしまうという議論があり、測定磁場が重要なパラメータとなる。似た状況が他の研究でも見られ、例えば Sr₂RuO₄ の p 波超伝導のオーダーパラメータが磁場によって方向を変えるということが NMR 実験の際に議論になった。NMR 感度は測定磁場に比例するので、量子相に影響を与えない小さな磁場で測定を行うことは難しい。これを補う方法として、NMR の信号の検出器に SQUID を用いた超低温磁場 SQUID - NMR 法が認知されている。一方、申請者らは μ SQUID とよばれる μ m スケールに微細加工された特殊な SQUID 素子の開発を進めてきた。微細に加工されているため、局所磁場をピンポイントに計測可能で、空間的に一様な外来磁場の影響を受けにくいという優れた特徴がある。このため通常の SQUID が高感度で働く低磁場領域はもちろん、外来ノイズの影響で測りにくいとされる数テスラ領域までの高感度計測ができる。広い領域で測定ができれば、低磁場中の量子相から、それが磁場によって破壊されていく過程を連続的に追うことができる。本研究では μ SQUID 素子を取り入れることで、新しい NMR 装置の開発をできないかということをご提案した。

2. 研究の目的

核磁気共鳴分光 (NMR) 法は、物性研究においてマイクロなプローブとして広範に用いられている強力な研究ツールである。この NMR 法と、申請者らのグループが現在開発しているマイクロ SQUID 素子 (μ m サイズの超伝導量子干渉素子) を組み合わせた、新たな μ SQUID - NMR 法を開発することが目的である。低磁場領域から数テスラの中磁場領域まで試料を測定することができる高感度 NMR 磁束計を開発し、凝縮系物質の研究に新たな手法を提供することを目指す。フラストレート三角格子磁性体、分子磁性結晶、重い電子系物質などに見られる低温量子凝縮相を探る新たな研究手法への発展を目指す。

3. 研究の方法

研究 1 年目はマイクロ SQUID-NMR 法に向けて予備実験を行った。SQUID-NMR の基本的な測定技術の習得を兼ねて、標準試料の選定を行った。はじめに連続波、縦磁化検出時にお

ける実際の NMR 信号を観測するため、市販の SQUID 素子に磁束輸送コイルを組み合わせた SQUID - NMR 実験を行った。SQUID-NMR を行うための専用プローブを作製した。製作した部品は、静磁場印加用ソレノイドコイル、静磁場トラップ用鉛管、トラップ解除用ヒーター、RF-印加用サドルコイル、磁束輸送コイルなどである。SQUID-NMR 実験は 4.2K において、約 30G までの静磁場印加状態で最大 800 kHz の RF 印加で幾つかの試料に対して行った。

1 年目の知見を元に研究 2 年目では、マイクロ SQUID-NMR 法のための試料プローブを作成し、試験を行った。試料は、前年度に調べたサファイア試料である。マイクロ SQUID をマウントするための試料台の設置、静電気保護のための回路を付け加えるなどの、試料プローブの改良を行った。実験結果を検討し、検出感度の見直しを行った。また並行して、低温凝縮相研究のために必要となる、マイクロ SQUID 素子自体の測定環境範囲の拡大を目的として圧力下での挙動を調べることを行った。希釈冷凍器の測定回路用配線 (磁場印加用、RF 測定用の配線) を行い、予備測定を兼ねて磁気測定を行った。その他に磁場中で、磁場中で超伝導素子を駆動させる場合、ノイズの影響がどの程度あるかなどの知見を得るため、約 3T 中の磁場で簡単な超伝導回路を製作し、ノイズの見積もりを行った。

3. 研究成果

SQUID-NMR 法の予備測定として、Tristan Technologies 社の製品である dc-SQUID を用いた SQUID-NMR 用のプローブで実験を行った。初めに、磁気回転比が最も大きいプロトン測定するために純水や有機溶媒の測定を行い、純水について最も大きなシグナルが得られるということがわかった。さらに、四重極分裂を起こす 27-Al について検討を行うためサファイアロッド (Al₂O₃ 結晶) の測定を行った。

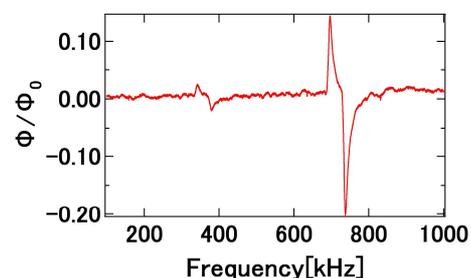


図 1 SQUID-NMR で測定した Al 核の NQR シグナル

図 1 はその時の 20G 中のシグナルである。

ピックアップコイルの巻き数はそれぞれ 10 ~ 20 ターン程度であり、測定方法として cw 法(連続波法)の縦磁化測定である。大きなシグナルが得られたことから、試作段階の解析に基づき、測定に使用する試料はサファイアロッドの破片に決定した。また、マイクロ SQUID で Al の NQR シグナルを測る場合にどのくらいの S/N が必要であるかの概算を行えるようになった。マイクロ SQUID を用いた NMR 用のプローブの作製では、マイクロ SQUID を保持するサンプル台や、静電気保護のためのスイッチボックスを備えたプローブを新たに作製することができた。図 2 に装置の概略を示す。RF 磁場が SQUID 面に垂直になるように微調整することを考え、RF コイルが回転可能であるようにしているのが特徴である。



図 2 μSQUID - NMR 用に作製されたサンプル台 (右:概略、左:写真)

試料のマウントは、光学顕微鏡で観察しながら、アルミナの薄片を μSQUID ループから約 2 μm の位置に配置した(図 3)。低温に冷やしての実験を行ったが、NMR 信号は観測されなかった。この原因は明らかではないが、信号の状況から、おそらく SQUID の接合部分の断線などが生じたと考えている。SQUID の断線は今後解決しなければいけない課題であることが明らかになった。また、シグナルが見えない原因の検討を行っている際に、検出感度の見直しを行ったところ、当初用いていた 1 μm × 1 μm の大きさの SQUID ループでは、S/N を考慮した見積もりにより、測定がかなり困難であるということも判明した。この問題は、SQUID ループをより大きなものにするだけで解決できるのではないかと考えている。

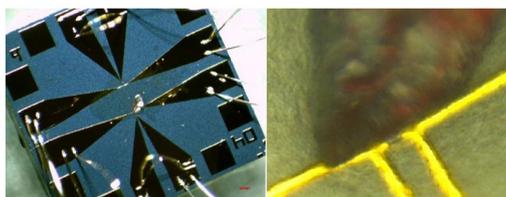


図 3 μSQUID 基板(左)と、アルミナ試料のサンプリングの様子(右)

一方、低温凝縮相研究での応用範囲を広げるとい意味で重要な、圧力印加での実験では、ピストンシリンダー内で SQUID 素子が働くことを確かめることができた。In の超伝導転移を印加圧力 0.69GPa で測定し、臨界磁場の温度依存性を正しく測定することができた。その他に、3T 中の磁場での超伝導ループに対するノイズの評価は、希釈冷凍機温度で、逆接合を有する超伝導ループを作製し、ノイズを見積もった。NMR 法で用いられる LC 回路を超伝導接続で作製し、共鳴を測定した。その際、弱接合部分は、低磁場空間に配置してある。相互インダクタンスを使い、超伝導ループで発生するノイズの影響を観測したが、磁場印加で大きく異なることはないという結果が得られた。実際の μSQUID-NMR 法と条件は違うが、これらの知見をもとに、強磁場印加時の NMR 測定法を開発していきたいと考えている。

本研究年度内で得られた成果は以上である。今後も開発を続け、さらに実用的なレベルの装置の製作を続ける予定である。

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 1 件)

M. Ledezma-Gairaud, L. Grangel, G. Aromí, T. Fujisawa, A. Yamaguchi, A. Sumiyama, and E. C. Sañudo, Inorg. Chem., 査読有, published online, (2014), DOI: 10.1021/ic500418e

〔学会発表〕(計 2 件)

谷口貴紀, 杉元伸弥, 山口明(発表), 本山岳, 住山昭彦, 柏谷裕美, 柏谷聡, マイクロ SQUID-NMR 計の試作 I, 日本物理学会 2013 春季大会, 2013 年 03 月 26 日, 広島大学(広島県東広島市)

山口明(発表), 杉元伸弥, 藤沢拓実, 住山昭彦, 本山岳, 柏谷裕美, 柏谷聡, マイクロ SQUID による圧力下磁化測定装置の開発, 日本物理学会 2014 春季大会, 2014 年 03 月 27 日, 東海大学(神奈川県平塚市)

〔図書〕(計 0 件)

該当なし

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

該当なし

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○ 取得状況（計 0 件）

該当なし

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

http://www.sci.u-hyogo.ac.jp/material/low_temp/yamaguchi/yamaguchi.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山口 明 (YAMAGUCHI AKIRA)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・
准教授
研究者番号：10302639

(2) 研究分担者

該当者なし

(3) 連携研究者

柏谷 聡 (KASHIWAYA SATOSHI)
独立行政法人産業技術総合研究所・電子光
技術研究部門・主任研究員
研究者番号：40356770

柏谷裕美 (KASHIWAYA HIROMI)
独立行政法人産業技術総合研究所・計測フ
ロンティア研究部門・研究員
研究者番号：60443181

(4) 研究協力者

住山昭彦 (AKIHIKO SUMIYAMA)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・
教授
研究者番号：30226609

本山 岳 (MOTOYAMA GAKU)
島根大学・理工学部・准教授
研究者番号：20360050

谷口貴紀 (TANIGUCHI TAKANORI)
兵庫県立大学・理学部・4 年生

藤沢拓実 (FUJISAWA TAKUMI)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・大
学院生

杉元伸弥 (SUGIMOTO NOBUYA)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・大
学院生

鎌田尚史 (KAMADA NAOFUMI)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・大
学院生