

令和 4 年 6 月 20 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02580

研究課題名（和文）高温超伝導発現の新事実：超高感度核スピン計測で実証する鎖構造が誘起する超伝導

研究課題名（英文）Novel fact on the mechanisms of high-temperature superconductivity

研究代表者

佐々木 進（Sasaki, Susumu）

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：80323955

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,000,000円

研究成果の概要（和文）：【背景と目的】高温超伝導においては「銅と酸素からなる平面構造が超伝導を誘起する」との定説がある。一方で、鎖構造を有する高温超伝導には、「平面構造は絶縁状態で、鎖構造こそが超伝導を誘起する」との指摘もあった。本研究では自作改良型の装置を駆使し、超高感度核スピン計測により鎖構造誘起の真偽を明らかにする。

【成果】初年度に必要な条件「平面構造中の銅の核スピンが絶縁状態であること」を、次年度以降に十分条件「鎖構造を形成する銅の核スピンが確かに超伝導下にあること」を示し、鎖構造誘起の超伝導を実証し、完全に当初の目的を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高温超伝導の発現機構について35年にわたる定説、すなわち「銅と酸素から構成される平面構造が超伝導の駆動源である」を超える、まったく新しい機構、すなわち「平面構造は絶縁状態のまま、鎖構造が超伝導の駆動源である」との新事実を実験的に明確に示した。これにより、平面構造にこだわらずに新規の超伝導物質を開発する指針を得たことを意味する。また、擬一次元構造が駆動する超伝導であることから、世界中の著名な理論家の興味の対象となりつつある。

研究成果の概要（英文）：So far, it has been widely believed that the superconductivity in cuprates is driven by CuO₂ planes. On the other hand, there were some reports that, for a Pr-based superconductor Pr247, the superconductivity is not driven by the planes but the double chains. In the first year of this research period, we clarified that, for Pr-based Pr247, the Cu nuclear spins in planes are in an insulating state, indicating clearly that the planes do not contribute to the superconductivity. In the 2nd and 3rd year, we found out that, from the temperature dependence of Cu-T₁, the double chains drive the superconductivity whereas the planes do not show superconductivity.

研究分野：超高感度の核スピン技術に基づく量子物性と医学医療への展開

キーワード：高温超伝導 鎖構造誘起超伝導 Pr247 Cu核スピン

1. 研究開始当初の背景

- (1)本研究を開始当初は、「銅と酸素からなる平面構造（以下、「平面構造」）が、銅酸化物の超伝導（高温超伝導）を誘起する」というのが定説であった。
 (2)ごく一部には、鎖構造が誘起する超伝導の可能性を指摘した文献は存在したが、それらに共通する最大の課題は、物質の超伝導特性、具体的には「超伝導反磁性分率が 10%未満」であったことである。

2. 研究の目的

- (1)本研究では、鎖構造誘起と考えられていた超伝導物質 $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-\delta}$ （以下、「Pr247」）において、ほぼ 100%の超伝導反磁性分率とすること
 (2)完全な超伝導 Pr247 に対して、Cu 核スピンのスペクトルから、平面構造が超伝導に寄与しないことを明らかにすること
 (3)物質全体では確かに完全な超伝導を示すことから、鎖構造中の Cu 核スピンの縦緩和時間とその温度依存性から、確かに鎖構造が超伝導を誘起することを示すこと

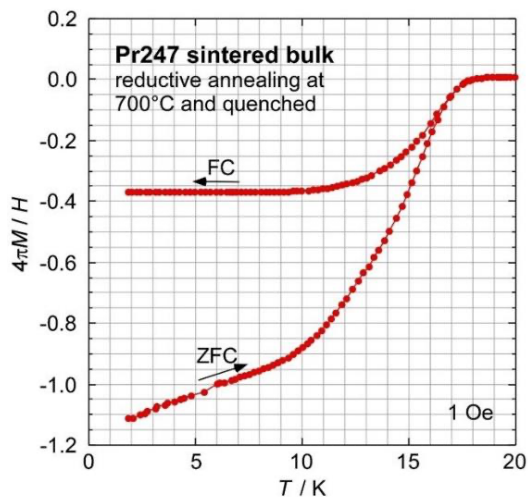
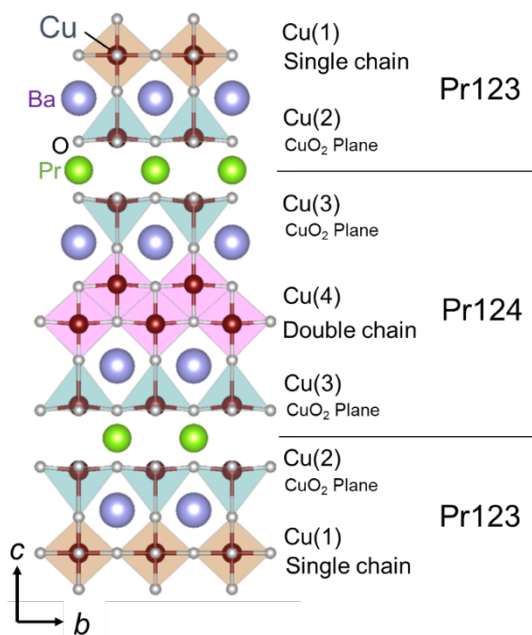
3. 研究の方法

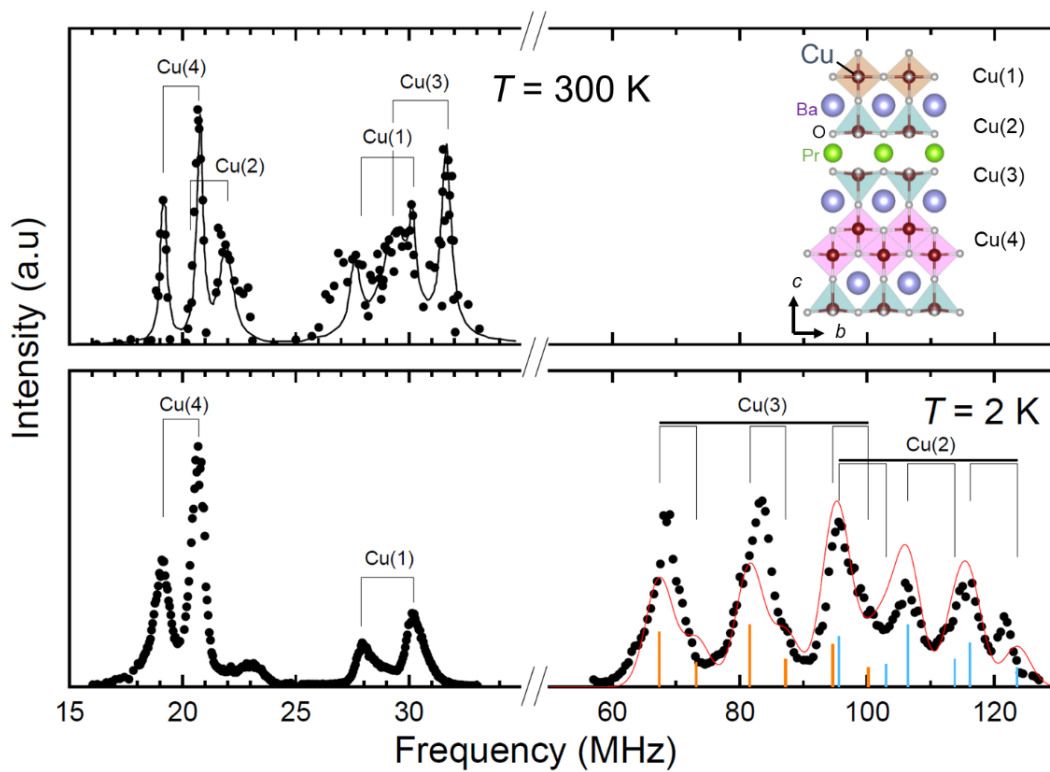
- 上記の目的を達成するため、以下の方法で研究を遂行した。
 (1)酸素高压炉を用いると、物質を合成する高温高压状態が理想的であったとしても、室温に戻し常圧にする過程において、当該の超伝導物質にとって不適切な条件を経過することになる。そこで、酸素高压炉を用いず、ガラス管内で合成し、常温まで急冷する方法で合成を試みた。
 (2)300K と 2K において、Cu-NQR スペクトルを取得する。そして、関連の銅酸化物の報告を下に、それぞれのピーク周波数が、当該の Pr247 のどのサイトであるかを一時的に同定した。
 (3)鎖構造中の Cu 核スピンの縦緩和時間を、Tc の前後において取得した。

4. 研究成果

- (1)得られた超伝導性 Pr247 の X 線回折は、単相であった。これから、結晶構造は、当初期待したとおりとなった（下図左）。また、SQUID 測定から、反磁性分率が 100%であった（下図右）。
 (2)300K において観測された平面構造からの Cu-NQR 信号は、2K では須く高周波に移動していた。このことは、平面構造は反強磁性・絶縁状態であることが明らかとなった（次ページ図）。すなわち、平面構造は、この物質の超伝導の駆動源ではないことが、明らかとなった。
 (3)Tc 前後において、鎖構造中の Cu 核スピンの縦緩和時間を測定したところ、Tc 以下で緩和率が 2 桁程度、減少していることが明らかとなった。このことは、鎖構造が Tc 以下において確かに超伝導転移していることを示す。他方、平面構造中の銅核スピンの縦緩和時間は、鎖構造中のそれらよりも 3 桁あまり短く、超伝導状態でないことの傍証も得られた。

さらに、Tc 以上における鎖構造中の銅核スピンの縦緩和率は、温度に対して $1/2$ 乗であった。通常の 3 次元金属では温度に対してリニアであることから、この超伝導物質における





常伝導状態は、鎖構造という低次元性もしくはそれに起因する強い電子間相互作用を反映したものであると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Nishioka Sotaro, Sasaki Susumu, Nakagawa Shunsaku, Yashima Mitsuharu, Mukuda Hidekazu, Yogi Mamoru, Shimoyama Jun-ichi	4. 巻 15
2. 論文標題 Nuclear-spin evidence of insulating and antiferromagnetic state of CuO planes in superconducting $\text{PrBaCu}_2\text{O}_{15}$	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 023001 ~ 023001
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ac4533	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ikeda S, Motoki T, Gondo S, Nakamura S, Honda G, Nagaishi T, Doi T, Shimoyama J	4. 巻 32
2. 論文標題 Synthesis of thick YBCO films up to 3.0 μm on metallic substrates by a fluorine-free metal organic decomposition method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 115003 ~ 115003
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6668/ab3d92	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Shimada Yusuke, Yamamoto Akiyasu, Hayashi Yujiro, Kishio Kohji, Shimoyama Jun-ichi, Hata Satoshi, Konno Toyohiko J	4. 巻 32
2. 論文標題 The formation of defects and their influence on inter- and intra-granular current in sintered polycrystalline 122 phase Fe-based superconductors	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Superconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 084003 ~ 084003
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6668/ab0eb6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Maeda Hideaki, Shimoyama Jun-ichi, Yanagisawa Yoshinori, Ishii Yoshitaka, Tomita Masaru	4. 巻 29
2. 論文標題 The MIRAI Program and the New Super-High Field NMR Initiative and Its Relevance to the Development of Superconducting Joints in Japan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Applied Superconductivity	6. 最初と最後の頁 1 ~ 9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TASC.2019.2905360	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ishida Shigeyuki, Iyo Akira, Ogino Hiraku, Eisaki Hiroshi, Takeshita Nao, Kawashima Kenji, Yanagisawa Keiichi, Kobayashi Yuuga, Kimoto Koji, Abe Hideki, Imai Motoharu, Shimoyama Jun-ichi, Eisterer Michael	4. 巻 4
2. 論文標題 Unique defect structure and advantageous vortex pinning properties in superconducting CaKFe4As4	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 npj Quantum Materials	6. 最初と最後の頁 27-29
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41535-019-0165-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takeda Yasuaki, Motoki Takanori, Kitaguchi Hitoshi, Nakashima Takayoshi, Kobayashi Shin-ichi, Kato Takeshi, Shimoyama Jun-ichi	4. 巻 12
2. 論文標題 High I c superconducting joint between Bi2223 tapes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 023003 ~ 023003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1882-0786/aaf8b4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Motoki Takanori, Ikeda Shuhei, Gondo Shinkichi, Nakamura Shin-ichi, Honda Genki, Nagaishi Tatsuoki, Doi Toshiya, Shimoyama Jun-ichi	4. 巻 29
2. 論文標題 Promotion of Epitaxial Growth and Enhanced <i>J_c</i> by Coaddition of Br and Metals (Zr, Sn, Hf) to the Fluorine-Free MOD Processed YBCO Films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Applied Superconductivity	6. 最初と最後の頁 1~4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TASC.2019.2898552	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計22件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 Susumu SASAKI
2. 発表標題 NQR Evidence of Superconductivity in Pr2Ba4Cu7O15- No Contribution of CuO2 Planes but Driven by Double Chains
3. 学会等名 Max-Planck-Institute NMR Group Seminar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西岡 颯太郎, 中川 俊作、八島 光晴、棕田 秀和、與儀 護、池田 宏輔, Prananto Dwi、佐々木 進、下山 淳一
2. 発表標題 Pr2Ba4Cu7O15- の超伝導III: 二重鎖が超伝導である実験的証拠
3. 学会等名 第69回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西岡 颯太郎, 中川 俊作, 八島 光晴, 棕田 秀和, 與儀 護, 池田 宏輔, プラナント ドウイ, 佐々木 進, 下山 淳一
2. 発表標題 Pr2Ba4Cu7O15- の超伝導II: CuO2面が超伝導に寄与しない実験的証拠
3. 学会等名 第82回 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Susumu Sasaki, Takuya Sekikawa, Dwi Prananto, Yusuke Mori, Maki Kushimoto, Hiroshi Amano and Kenji Shiraishi
2. 発表標題 Direct Observation of Spontaneous Polarization in Freestanding GaN Substrate
3. 学会等名 International Conference of Materials and System for Sustainability (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Susumu Sasaki, Takuya Sekikawa, Tatsuro Yuge, Yoshiro Hirayama
2. 発表標題 CPMG Does Not Give T2 But Generalized Coherence Time
3. 学会等名 International Symposium of Magnetic Resonance (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名	Sotaro Nishioka, Shunsaku Nakagawa, Mitsuharu Yashima, Hidekazu Mukuda, Mamoru Yogi, Susumu Sasaki, Jun-ichi Shimoyama
2. 発表標題	Nuclear-Spin Evidence of Superconductivity in Pr ₂ Ba ₄ Cu ₇ O ₁₅ - : No Contribution of CuO ₂ Planes
3. 学会等名	Materials Research Meeting (国際学会)
4. 発表年	2021年

1. 発表者名	西岡 颯太郎, 中川 俊作, 八島 光晴, 棕田 秀和, 與儀 護, 池田 宏輔, Dwi Prananto, 佐々木 進, 下山 淳一
2. 発表標題	Pr ₂ Ba ₄ Cu ₇ O ₁₅ - 純良結晶における二重鎖超伝導相のNQR/NMRによる検証
3. 学会等名	日本物理学会2021年次大会
4. 発表年	2021年

1. 発表者名	西岡颯太郎, 中川俊作, 八島光晴, 棕田秀和, 與儀 護, 池田 宏輔, Dwi Prananto, 佐々木 進, 下山 淳一
2. 発表標題	高温超伝導発現の新事実: CuO ₂ 面が超伝導に寄与しない実験的証拠
3. 学会等名	超伝導・トポロジカル物質研究会
4. 発表年	2021年

1. 発表者名	西岡颯太郎, 中川俊作, 八島光晴, 棕田秀和, 與儀 護, 池田 宏輔, Dwi Prananto, 佐々木 進, 下山 淳一
2. 発表標題	高温超伝導発現の新事実: CuO ₂ 面が絶縁状態である実験的証拠
3. 学会等名	京都大学基礎物理学研究所研究会
4. 発表年	2021年

1. 発表者名 中川 俊作, 西岡 颯太郎, 八島 光晴, 椋田 秀和, 與儀 護, 池田 宏輔, Dwi Prananto, 佐々木 進, 下山 淳一
2. 発表標題 Pr2Ba4Cu7015- 超伝導における 63/65Cu-NQR によるスピン-格子緩和率測定
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Susumu Sasaki
2. 発表標題 Intrinsic Noise Spectrum Is Given by both the Hahn-Echo T2 and the Spectral Intensities Properly Derived from Multiple Spin-Echo Decays
3. 学会等名 Condensed Matter Physics Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Susumu Sasaki
2. 発表標題 NQR Evidence of Superconductivity in Pr2Ba4Cu7015- : No Contribution of CuO2 Planes but Driven by Double Chains
3. 学会等名 Max-Planck Institute Workshop (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西岡颯太郎; 中川俊作; 八島光晴; 椋田秀和; 與儀護; 池田 宏輔; Dwi Prananto; 佐々木進; 下山 淳一
2. 発表標題 Pr2Ba4Cu7015- の超伝導: CuO2面が超伝導に寄与しない実験的証拠
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西岡 颯太郎;中川 俊作;八島 光晴;椋田 秀和;與儀 護;池田 宏輔;Dwi Prananto;佐々木 進;下山 淳一
2. 発表標題 Pr2Ba4Cu7O15- 純良結晶における 二重鎖超伝導相のNQR/NMRによる検証
3. 学会等名 日本物理学会2021年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tomoyuki Haishi, Ryohei Kaseda, Ichiei Narita, Susumu Sasaki
2. 発表標題 In-vivo ²³ Na-MRI of mice toward renal clinical applications
3. 学会等名 NMR**2 Spring meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Susumu Sasaki, Ryo Kusanagi, Kohei Suzuki, Yusuke Mori, Maki Kushimoto, Hiroshi Amano, Kenji Shiraishi
2. 発表標題 Direct Observation of Spontaneous Polarization in Freestanding GaN Substrate Through Nuclear Magnetic Resonance
3. 学会等名 SSDM2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Susumu Sasaki
2. 発表標題 How should we define the spectral intensity from multiple spin-echo decays?
3. 学会等名 9th Spin Camp (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 拝師智之, 俣田亮平, 成田一衛, 佐々木進
2. 発表標題 マウス腎疾患モデルの生体内ナトリウムを可視化する ^{23}Na -MRIの開発
3. 学会等名 第47回日本磁気共鳴医学会大会(熊本)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Susumu Sasaki, Yusuke Mori, Maki Kushimoto, Hiroshi Amano, Kenji Shiraishi
2. 発表標題 Direct Observation of Spontaneous Polarization in Freestanding GaN Substrate
3. 学会等名 第58回NMR討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 拝師智之, 俣田亮平, 成田一衛, 佐々木進
2. 発表標題 9.4Tesla-MRIを用いて生体マウス腎臓のナトリウム分布を可視化する
3. 学会等名 第58回NMR討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Susumu Sasaki, Takanori Miura, Kohsuke Ikeda, Masahiro Sakai, Takuya Sekikawa, Masaki Saito, Tatsuro Yuge, Yoshiro Hirayama
2. 発表標題 How should we derive the noise spectrum from multiple spin-echo decays?
3. 学会等名 HQS2019(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐々木進, 三浦敬典, 池田宏輔, 坂井祐大, 関川卓也, 齋藤雅樹, 弓削達郎, 平山祥郎
2. 発表標題 いかにして多重スピネコーから雑音スペクトルを抽出するか?
3. 学会等名 第67回 応用物理学会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 核磁気共鳴装置、磁気共鳴イメージング装置、核磁気共鳴方法、磁気共鳴イメージング方法、測定条件を決定する方法、及びプログラム	発明者 佐々木 進	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2019/008240	出願年 2019年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 核磁気共鳴イメージング装置、核磁気共鳴イメージング方法、及びプログラム	発明者 佐々木 進	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2019-093569	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

<p>プレスリリース「定説を超える超伝導」新潟大学ウェブサイト2022年1月20日、「電気抵抗ゼロで絶縁体、未知の原理の「銅酸化物超伝導体」が生まれた！」 Yahoo! ニュース2022年1月24日 https://www.niigata-u.ac.jp/news/2022/99526 https://news.yahoo.co.jp/articles/37180524f2ae899a232dd1cf0a4951cbf0d80cad</p> <p>日本医療研究開発機構 先端計測技術 https://www.amed.go.jp/koubo/02/01/0201C_00008.html 新潟大学での大型資金プロジェクト https://www.niigata-u.ac.jp/contribution/research/ability/bigproject/ 新潟大学工学部材料科学プログラム 佐々木研究室 http://fusion.eng.niigata-u.ac.jp/index.html</p>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	下山 淳一 (Shimoyama Jun-ichi) (20251366)	青山学院大学・理工学部・教授 (32601)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	大野 義章 (Oono Yoshiaki) (40221832)	新潟大学・自然科学系・教授 (13101)	
研究分担者	椋田 秀和 (Mukuda Hidekazu) (90323633)	大阪大学・基礎工学研究科・准教授 (14401)	
研究分担者	渡邊 信嗣 (Watanabe Shinji) (70455864)	金沢大学・ナノ生命科学研究所・准教授 (13301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関