

(続紙 1)

京都大学	博士 (理 学)	氏名	富永 雄介
論文題目	Studies on Electro-Mechano-Optical Transducer for Signal Detection of Nuclear Magnetic Resonance (核磁気共鳴の信号検出のための電気-機械-光変換装置の研究)		

(論文内容の要旨)

Electro-Mechano-Optical (EMO) NMR は、窒化ケイ素薄膜を介してラジオ波信号を光学領域へアップコンバージョンする新しい NMR (Nuclear Magnetic Resonance) 信号検出技術であり、NMR の低ノイズ検出技術として期待されている。しかし、EMO NMR は原理実証には成功していたものの、実用化には程遠かった。EMO NMR を化学分析にも利用するためには、EMO NMR の高感度化、動作の安定化、装置の小型化の 3 点において改良が必要であることがわかった。申請者は本論文で、以下のようなアプローチでこれらの問題の解決を図った。

- ・電気信号を薄膜の信号に変換するためには、それらの周波数差を埋めるようなドライブ信号を入力する必要がある。EMO NMR の先行研究では、ドライブ信号の周波数が観測したい信号の周波数と近いことによって、ドライブ信号の位相雑音が混入し、EMO NMR の感度を著しく下げていた。そこで、ドライブ信号の周波数を観測周波数から離すために、薄膜振動子を軽量化し、薄膜の周波数を 180 kHz から 430 kHz に上昇させた。これにより、ドライブ信号の混入を防ぐことができ、EMO NMR の感度が約 20 倍向上した。また現行の EMO NMR は、薄膜の固有振動の減衰が 10 ミリ秒程度の時定数を持つために、帯域幅が減衰時間の逆数の 100 Hz 程度に限られることも新たに明らかにした。

- ・薄膜に蒸着した金属を光学的な鏡として用いていたため、金属が吸収したレーザーが熱に変換され、装置を不安定にしていた。そこで、薄膜上で光を反射する鏡部分を、金属蒸着した電極部分から空間的に分離し、メタサーフェスと呼ばれる構造に置き換えた。そして、作成した薄膜の (2, 2) モードの振動を用いてラジオ波を光変換した。メタサーフェスは薄膜上に周期的に穴パターンを開けた構造であり、特定の波長の光を高い反射率で反射する。メタサーフェスを用いることにより薄膜の光の吸収を抑えられ、振動測定を長時間、安定的に行えるようになったことを実験的に示した。

- ・安定な光学装置を組むためには、通常大型の光学定盤上で精密なアライメントを要する。しかし、化学分析用の NMR で用いられる磁場均一度の高い超伝導マグネット中で EMO NMR 測定を行うためには、限られたスペースの中で光学装置の精密なアライメントを行い光検出する必要がある。その実現のために、超伝導磁場と互換性のある小型な EMO NMR プローブを作成した。そして化学分析で広く用いられる NMR 手法である INEPT (Insensitive Nuclei Enhanced by Polarization Transfer) 法を適用したベンゼンの炭素 13 核の NMR 信号を光変換して取得した。

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

核磁気共鳴 (NMR) は化学分析に欠かせない強力な分析ツールであるが、感度が低いのが最大の問題であり、感度向上は長年にわたる重要なテーマであり続けている。感度を上げるには、NMR 信号強度そのものを増大化するか、検出時の雑音を低減する必要がある。これまで前者については動的核偏極、光ポンピング、後者についてはクライオプローブの研究開発が盛んに行われてきた。申請者が取り組んだ、電気-機械-光変換装置によるラジオ周波数 NMR 信号の光変換の研究は、後者の低雑音高感度検出に関する前例の無いアプローチであり、理論的には従来の電氣的な NMR 信号検出法を上回ることが期待されている。しかし現時点では電気-機械-光変換装置の性能はそこまで達していない。申請者は問題点を見出してこれら解決をすることと、電気-機械-光変換を用いた高感度な NMR 化学分析を実現するための研究を行った。未来の化学者が高感度 NMR 分析を享受するための基礎を築くのに貢献したと言える。

軽量薄膜を用いた変換装置では、薄膜への蒸着金属の材質を金からアルミニウムに変更したことによって薄膜振動子の軽量化を実現し、光変換のプロセスに混入する駆動信号のスペクトル成分の裾野に広がる位相雑音を帯域のそとに追いやることに成功した。逆説的に、金からアルミニウムへの変更により光の反射率を犠牲にすることとなった。しかし軽量化によるメリットが前者のデメリットを上回ることを示した点が興味深い研究成果となった。

申請者は、わずかな光の吸収による薄膜の加熱が新たな問題であると認識するに至った。薄膜蒸着金属は熱容量が小さく熱の逃げ場がないため、薄膜の変位を正確に読み出すためのレーザー光の強度を理想よりも桁違いに小さく絞らざるを得なかった。この研究でミラーを薄膜上に実装するために、金属を「足す」代わりに、薄膜にナノサイズの周期的な穴を開けて「減らす」ことで鏡の機能を持たせた点が非常に興味深い。またキャパシタの電極のために金属層が必要であることに変わりはなく、そのために薄膜上でミラーと電極を空間的に分離した点も独創的である。

これまで電気-機械-光変換は物理学的側面が強かったが、申請者は電気-機械-光変換 NMR を化学の領域に持ち込むべく装置の開発を行った。電気-機械-光変換システムはこれまで光学定盤上で構築されてきたが、申請者は化学で用いる超電導磁石を備えた NMR 装置に適合させるために、小型で光軸が鉛直方向の電気-機械-光変換装置を開発した。さらに電気-機械-光変換 NMR 実験についても、より化学で実践的なプロトン-炭素 13 核の二重共鳴が実行できるように装置を開発し、実際にプロトン-炭素 13 核間で磁化移動させる INEPT パルスシーケンスを実行した後に炭素 13 核の NMR 信号を光に変換して検出することに成功した。この成果により将来、電気-機械-光変換 NMR が真に化学の分野で活用されるための基礎が築かれたと言える。

よって本論文は、博士 (理学) の学位論文として価値あるものと認める。また、令和 4 年 1 月 19 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 2022 年 4 月 1 日以降