

令和 5 年 6 月 11 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H00647

研究課題名(和文)パルス超強磁場XFEL散乱による磁場誘起電子相転移の研究

研究課題名(英文) Study of Magnetic Field Induced Electronic Phase Transitions by X-ray scattering with Pulsed Fields and XFELs

研究代表者

野尻 浩之 (NOJIRI, HIROYUKI)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：80189399

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,600,000円

研究成果の概要(和文)：超強磁場で誘起される電子系の相転移と結晶の対称性の関係を、超強磁場X線回折で研究した。成果として、これまで難しかった極低温、超強磁場下での高精度・高感度のX線回折手法を確立した。これによって、熱によるぼやけを排除して磁場誘起相転移における構造変化を決定する事が可能になった。これを用いて、イットリウム系の高温超伝導体およびランタン系の高温超伝導体の磁場誘起電荷密度波の共通性を明らかにし、普遍的な電子状態の存在を強く示唆する結果を得た。さらに、半金属グラファイトにおいて、超強磁場下での電子系の1次元化に伴う密度波転移が、格子の非単調な変調を伴うことを見出し、変調波数がロックされる可能性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

強磁場は電子の運動とスピンに大きな影響を与え、新しい状態が強磁場下で誘起されることは、多くの物質で見出されてきた。そのような新しい電子相の理解には、電子構造、とりわけ、結晶格子と結合したバンド構造の周期性や対称性の変化をX線で直接決定することが欠かせない。そのような実験はこれまで困難であったが、本研究によって、小型パルス磁場発生装置とX線自由電子レーザーを組み合わせた手法が確立した。これにより、強磁場中の電子状態の理解が格段に進展することが期待される。このような学術的な進展は、磁場による物質制御法の開拓とそれを用いた機能性材料の開発などに役立てられることが期待される。

研究成果の概要(英文)：We have established an X-ray diffraction method with high accuracy and high sensitivity under ultra-low temperature and ultra-strong magnetic field. This made it possible to determine structural changes in magnetic field-induced phase transitions without thermal broadening. Using this, we clarified the commonalities between magnetic field-induced charge density waves in yttrium-based high-temperature superconductors and lanthanum-based high-temperature superconductors, and obtained results that strongly suggest the existence of a underlying universal electronic state. Furthermore, in semimetal graphite, we found that the density-wave transition associated with the one-dimensionalization of the electron system under an ultra-strong magnetic field is accompanied by non-monotonic modulation of the lattice, indicating the possibility of locking the modulation wavenumber with the lattice.

研究分野：強磁場物性

キーワード：強磁場 X線自由電子レーザー 電子相転移 X線散乱 極端条件

1. 研究開始当初の背景

熱揺らぎを抑制した超低温における強磁場誘起相転移では、本質的に量子ゆらぎが相転移を支配し、量子極限における強電子相関により電子状態が激変する電子相転移が引き起こされる。そこでは、磁気・電荷・格子等、物質のもつ多自由度相関により対称性の破れが支配され、しばしば非自明な秩序状態が現れる。例えば、半導体や半金属において、強磁場下で全ての電子が最低ランダウ準位に押し込められ、身動き出来ずせめぎ合う時に、“多体電子系がどのように対称性を破り、秩序化するのか?”は、長年にわたる物性研究の核心である。物質中の電子は結晶の中に存在するため、電子系の秩序は、入れ物であるフェルミ面やその基盤となる格子の対称性と不可分であり、異なる自由度の相関により、多様な相転移がもたらされる。これらの電子相転移の普遍性と多様性の理解は物質科学の最重要な課題の1つである。しかしながら、磁場誘起電子相転移の研究は、まだその入口にあると言っても過言ではない。その最大の理由の1つは、超強磁場下における実験手法の制約である。

従来の研究では、もっぱら磁化や電気抵抗などのマクロ測定により、様々な強磁場相の秩序変数を間接的に推測するのみであったが、我々は10年以上にわたり、パルス強磁場下におけるX線回折、X線分光(吸収・磁気円二色性)、中性子回折手法を継続的に開拓し、新分野として強磁場量子ビーム科学分野を立ち上げた。その結果、超強磁場下において、磁気構造、結晶構造、価数、元素・軌道別磁化などを捉えることで、秩序変数を直接的に決定することが可能になり、磁場誘起相転移の研究に革新をもたらした。さらに、数年前から強磁場中の結晶構造の変調と対称性の変化を決定するを旨として、X線自由電子レーザーと超強磁場の組み合わせに先駆的に取り組んできた。X線自由電子レーザーは、放射光に比べて格段に高い瞬時強度を有するため、シングルショットで微弱な超格子反射の測定や発光分光の測定が可能であり、パルス磁場の特徴である短時間しか磁場を発生出来ないという短所がもはや短所でなくなる。このパラダイムシフトの最も大きな効果として、パルス磁場発生システムの設計において、積算時間確保に必要な長いパルス幅と高繰り返し対応の耐久性の考慮が不要になり、強度重視の設計により50T以上の超強磁場領域へのアクセスが可能になり、磁場誘起相転移研究手法として、新しい発展をもたらした。

2. 研究の目的

このような背景の下で、本研究では、パルス超強磁場X線自由電子レーザー散乱手法の革新と発展によって量子極限における物質の振る舞いの研究に飛躍をもたらすことを目指した。磁場中の電子状態を理解する手法としては、輸送現象における量子振動の観測によるフェルミ面決定手法-“フェルミオロジー”-がこれまでの標準的手法であったが、これに代わって、超強磁場下における精密な構造解析と各種X線分光を駆使した電子状態の直接決定に基礎付けられた“強磁場X線散乱フェルミオロジー”が有力な手法となることが期待される。これを通して、物質科学の根本的な課題である、強く相関した多体電子系は相関の変化によりどのような電子の秩序を示すのか?、それらの秩序は、電子が置かれた物質の対称性や電子以外の自由度との相関によりどのような多様性を示すのか?、という本質的な問いの歴史に、これまででない新地平をもたらすことを目指した。

3. 研究の方法

研究の手法としては、従来のパルス超強磁場X線自由電子レーザーの組み合わせに加えて、電子相転移を熱によるぼやけのない状態で観測するために、超低温との組み合わせ手法を新たに開拓した。そのために、4K冷凍機の先端に、4Heを凝縮するポットを設けて、液体ヘリウムを凝縮した上で、減圧することで最低2Kまでの低温を安定して発生する事に成功した。X線回折においては、4K以下の実験は：極めて限られており、実際の研究

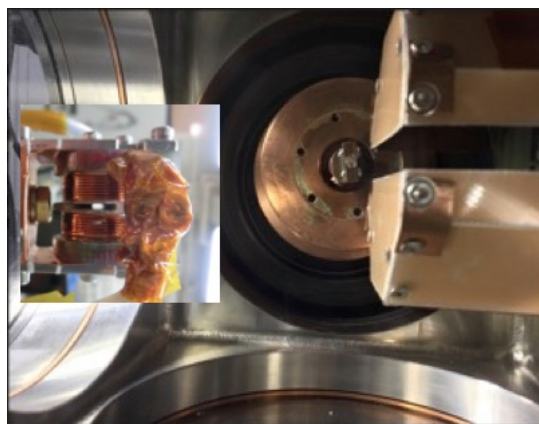


図1 超強磁場X線回折装置。超小型コイルと2K冷凍機を組み合わせて、2Kの超低温で50テスラ以上の超強磁場を発生可能である。

の対象が限定される原因となっていたため、今回の開発はおおきな意義がある。

磁場発生には、小型コンデンサ電源を用いた。X線としては、主にSALCAを光源とし、エネルギーは7から15 keVの間を用いた。超格子反射の探索実験では、高強度のピンクビームを、格子定数の精密測定ではモノクロビームを用いた。海外の実験はコロナによる出入国管理によって、困難があったが、スタンフォードのLCLSにおいても実験を実施した。しかしながら、他の施設での実験はキャンセルとなり、マシンタイムが限定されることになった。

4. 研究成果

本研究の成果は以下の通りに纏められる。

- (1) 実験手法の面では、これまで難しかった極低温、超強磁場下での高精度・高感度のX線回折手法を確立したことである。これによって、熱によるぼやけを排除して磁場誘起相転移における構造変化を決定する事が可能になった。
- (2) Y系高温超伝導体の磁場誘起電子相転移について、低温強磁場でのみ出現すると期待される、Pair density wave状態を探索するために、従来の実験より大幅に温度を下げて3.5 Kまでの低温実験実施し、バックグラウンドを従来の1/20以下に下げることによって、低温、強磁場の極限において、はじめて極めて弱い電荷秩序が出現する系にあっては、零磁場では電荷秩序は観測出来ない事を明らかにした。これは、電荷秩序がない状態から電荷秩序が出現するのかどうか、乱れない系でも磁場誘起電荷秩序が存在するのかという2つの問題に対して回答が得られたことを意味する。
- (3) 次に、光励起下でおきるCDWと強磁場下のCDWの両者を、X線自由電子レーザーで観測して比較することにより、非平衡の光励起状態が、強磁場下でおこる平衡状態のCDWと、類似していることを実験的に見出した。具体的には、光ポンプによって、超伝導CuO₂平面に壊れたペアリング状態が生じると、これが3次元CDWの前駆体の核形成につながることを観察した。この結果は、光励起の下では非平衡状態から平衡状態へのクロスオーバーが生じること、磁場の増加による渦液体状態の拡大は、光による壊れたクーパー対生成と対応しており、同一の物理過程に帰着することを示す[1]。
- (4) YBCO系と比較するために、CDWとスピン密度波が相関するとされるLSCO系について研究を行った。La_{1.885}Sr_{0.115}CuO₄に対して、最大24テスラ磁場を印可し、その結果以下の点が明らかになった。1)低温では、観察されたCDWピークにより、材料内に2つの異なる領域が存在し、1つは超伝導と共存する短距離CDWを含むマジョリティ相、もう1つは静的スピン密度波(SDW)と共存する長距離CDWを含むマイノリティ相である。2)磁場が増加すると、CDWは最初SDWと同様に連続的に緩やかに成長するが、さらに高磁場で渦液体状態に入るとCDWの強度が突然増加する。この結果は、CDWと動ける超伝導渦との強い結合を意味し、CDW振幅の増大と局所超伝導ペアリングの結合が、温度磁場相図に従って変化することを示す。この結果を、YBCOの結果と合わせると、CDWやSDWの出現の背景に共通の基盤としてPair density wave状態の存在が示唆される[2]。
- (5) グラファイトの密度波転移について、モノクロビームを用いて、高分解能の格子定数の磁場依存性の測定を行った。低磁場では、c軸方向の格子長は一旦縮んだ後で、強磁場で増大する振る舞いが見られ、過去の定常磁場における磁歪の符合反転を確認した。強磁場相の磁歪は過去のパルス磁場下のマクロ測定に比べて絶対値が小さいが、単調増加ではなく、磁場中で不連続な変化を示し、異常のある磁場は、電気抵抗による相境界と概ね一致した。これらの結果から、超音波測定によって示されたように、グラファイトの密度波転移では、格子異常が誘起されることが明らかになった。その一方、格子定数の変化が緩やかになる領域で超格子反射が見られないことから、格子系との結合は弱く、相転移は、理論的に提案されているように電子的な起源であると考えられる。
- (6) その他、開発した小型パルス磁場発生装置を中性子回折、X線分光、テラヘルツ分光などに応用し、幅広い波及効果を有することを示すなど、広範な関連研究を実施した。

以上のように、本研究では、パルス超強磁場と新世代のX線光源であるX線自由電子レーザーを組み合わせ、高感度・時分割X線回折とX線発光分光を結合したパルス超強磁場散乱手法を開拓し、これを用いて磁場誘起電子相転移を構造と微視的な電子状態の視点から研究する“強磁場X線構造・電子科学”の概念を確立した。今後、今回の成果を利用して多様な物質の強磁場相の解明に繋がる研究が展開されると期待出来る。

[1] Characterization of photoinduced normal state through charge density wave in superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$
Hoyoung Jang *et al.* SCIENCE ADVANCES abk0832(2022).

[2] Enhanced charge density wave with mobile superconducting vortices in $\text{La}_{1.885}\text{Sr}_{0.115}\text{CuO}_4$
J.-J. Wen *et al.* Nature Communications, 733 (2023).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Yamamoto, S: Suwa, H: Kihara, T: Nomura, T: Kotani, Y: Nakamura: Skourski, Y: Zherlitsyn, S: Prodan, L: Tsurkan, V: Nojiri, H: Loidl, A: Wosnitza, J	4. 巻 103
2. 論文標題 Element-specific field-induced spin reorientation and tetracritical point in MnCr2S4	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW B	6. 最初と最後の頁 L020408
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.103.L020408	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 該当する
1. 著者名 Li Xinwei, Yoshioka Katsumasa, Xie Ming, Noe G. Timothy, Lee Woojoo, Marquez Peraca Nicolas, Gao Weilu, Hagiwara Toshio, Handegrd Orjan S., Nien Li-Wei, Nagao Tadaaki, Kitajima Masahiro, Nojiri Hiroyuki, Shih Chih-Kang, MacDonald Allan H., Katayama Ikufumi, Takeda Jun, Fiete Gregory A., Kono Junichiro	4. 巻 100
2. 論文標題 Terahertz Faraday and Kerr rotation spectroscopy of Bi1-xSbx films in high magnetic fields up to 30 tesla	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 115145-1-15
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.115145	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 該当する
1. 著者名 Seiya Nakazato, Kazuaki Iwasa, Daisuke Hashimoto, Mami Shiozawa, Keitaro Kuwahara, Hironori Nakao, Hajime Sagayama, Motoyuki Ishikado, Takashi Ohhara, Akiko Nakao, Koji Munakata, and Ryoji Kiyonagi	4. 巻 30
2. 論文標題 Successive Phase Transitions in R3Ir4Sn13 (R: La and Ce) Investigated Using Neutron and X-ray Diffraction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 011128-1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSCP.30.011128	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 Wen J.-J., He W., Jang H., Nojiri H., Matsuzawa S., Song S., Chollet M., Zhu D., Liu Y.-J., Fujita M., Jiang J. M., Rotundu C. R., Kao C.-C., Jiang H.-C., Lee J.-S., Lee Y. S.	4. 巻 14
2. 論文標題 Enhanced charge density wave with mobile superconducting vortices in La1.885Sr0.115CuO4	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 733-733
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-023-36203-x	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 該当する

1. 著者名 Watanabe Masao, Kihara Takumi, Nojiri Hiroyuki	4. 巻 7
2. 論文標題 Automated Pulsed Magnet System for Neutron Diffraction Experiments at the Materials and Life Science Experimental Facility in J-PARC	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Quantum Beam Science	6. 最初と最後の頁 1~1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/qubs7010001	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 Jang Hoyoung, Song Sanghoon, Kihara Takumi, Liu Yijin, Lee Sang-Jun, Park Sang-Youn, Kim Minseok, Kim Hyeong-Do, Coslovich Giacomo, Nakata Suguru, Kubota Yuya, Inoue Ichiro, Tamasaku Kenji, Yabashi Makina, Lee Heemin, Song Changyong, Nojiri Hiroyuki, Keimer Bernhard, Kao Chi-Chang, Lee Jun-Sik	4. 巻 8
2. 論文標題 Characterization of photoinduced normal state through charge density wave in superconducting YBaCuO	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 abk0832
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.abk0832	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 該当する

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 野尻浩之
2. 発表標題 超強磁場X線回折装置の開発と酸化物超伝導体への応用
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野尻浩之
2. 発表標題 XFELを利用した超強磁場X線回折による磁場誘起相転移の探索
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Nojiri
2. 発表標題 Progress in High Magnetic Field XFEL Experiments
3. 学会等名 14Th ASIA-PACIFIC PHYSICS CONFERENCE (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中里晟也, 岩佐和晃, 橋本大輔, 塩澤真未, 桑原慶太郎, 中尾裕則, 佐賀山基, 石角元志, 大原高志, 中尾朗子, 宗像孝司C, 鬼柳亮嗣, F. Damay, J.-M. Mignot
2. 発表標題 近藤半金属物質Ce3Ir4Sn13における逐次相転移
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Seiya Nakazato, Kazuaki Iwasa, Daisuke Hashimoto, Mami Shiozawa, Keitaro Kuwahara, Hironori Nakao, Hajime Sagayama, Motoyuki Ishikado, Takashi Ohhara, Akiko Nakao, Koji Munakata, and Ryoji Kiyonagi
2. 発表標題 Successive phase transitions in R3Ir4Sn13 (R: La and Ce) investigated using neutron and X-ray diffraction
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroyuki Nojiri
2. 発表標題 High Magnetic Field X-ray Experiments with XFEL and Synchrotron Radiation
3. 学会等名 15th Asia-Pacific Physics Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hiroyuki Nojiri
2. 発表標題 X-ray diffractions and spectroscopies in low reduced temperatures
3. 学会等名 Sciences in Cornell High Magnetic Field Beam Line (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hiroyuki Nojiri
2. 発表標題 X-ray and high magnetic fields Probing extreme states of correlated electrons systems
3. 学会等名 Symposium on the Helmholtz International Beamline for Extreme Fields at the European XFEL (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

本研究で開発した装置をモデルとした実験装置が、2022年9月公開の映画「沈黙のパレード」で撮影に利用され、本研究の成果発表のポスターなども映画中で見られるなど反響を呼んだ。

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	桑原 慶太郎 (KUWAHARA KEITARO)	茨城大学・理工学研究科(理学野)・教授	
	(90315747)	(12101)	

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			
米国	Stanford国立研究所	Stanford大学	Rice大学	
韓国	Postec-PAL			
スイス	PSI	チューリッヒ大学		
ドイツ	ヘルムホルツ研究機構ベルリン	マックスプランク固体物理研究所	ヘルムホルツ研究機構ドレスデン	