

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25610087

研究課題名(和文)パルス強磁場下における高速イメージングシステムの開発

研究課題名(英文)Development of a high speed imaging system combined with pulse magnets

研究代表者

徳永 将史 (TOKUNAGA, Masashi)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：50300885

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：パルスマグネットに挿入可能な高速顕微鏡システムの開発に成功した。この開発によってより広い温度磁場範囲での実験や、透過配置における観察も可能になった。その観察対象として基礎物性を評価していたマルチフェロイック物質では、カイラル反強磁性体における磁場誘起の新規強誘電相の発見や、ビスマスフェライトにおける不揮発性電気磁気メモリー効果の発見などの成果を得た。ビスマスフェライトのメモリー効果の起源を検証すべく、本研究で開発したイメージング装置によるドメイン観察を行った結果、近赤外光の透過で見られるドメイン構造は、不揮発性メモリー効果の起源となる電気磁気ドメインとは別物であることがわかった。

研究成果の概要(英文)：We developed a high speed imaging system, which can be combined with pulse magnets. This new system enables us to observe microscope images of the sample in wide range of magnetic field and temperature and also in the transmission configuration. In evaluation of the basic properties of the target multiferroic materials, we found novel field-induced ferroelectric phase in a chiral antiferromagnet and non-volatile magnetoelectric memory effects in bismuth ferrite. High field imaging of the bismuth ferrite with using the newly developed system revealed that domain structures visible in the near infrared light were irrelevant to the magnetoelectric domains that were expected to play the key role in the memory effect.

研究分野：強磁場物性

キーワード：マルチフェロイクス 磁性 メモリー効果 イメージング

1. 研究開始当初の背景

瞬間的にのみ発生可能な強磁場下で起こる物理現象を精密に測定する手段として、我々はパルスマグネットと結合した高速偏光顕微鏡観察システムを世界で初めて構築した。しかしそのシステムでは到達可能な磁場・温度範囲や光学配置に強い制限があり、物性物理学の分野で興味深い多くの物質群が測定対象から外れてしまうという問題があった。

一方で物理の対象としてマルチフェロイック物質の強磁場物性に我々は注目していた。この物質群は強磁場下で電気と磁気の相関で多彩な物性変化を示してきたが、それまでの研究における物性測定手法は磁化または電気分極の測定に限られていた。それらを超える新たな手段を開発し、マルチフェロイック物質の研究に新たな展開をもたらすことを目指して研究を開始した。

2. 研究の目的

本研究の第一の目的は、申請時のイメージングシステムで問題となっていた点を克服する新システムの構築である。東京大学物性研究所では一般的な物理量を最高磁場 55T、最低温度 1.5K の範囲で測定できるパルスマグネットのシステムを運用している。このシステムと組み合わせ可能な新しいイメージングシステムの構築を目指した。

第二の目的として、その装置を用いてマルチフェロイック物質に対する強磁場物性研究の発展を目指した。具体的にはカイラルな結晶構造を持つ反強磁性体で起こる磁場誘起相転移について、および関連するマルチフェロイック物質の強磁場物性について多角的な研究を行うことで、マルチフェロイック物質の研究分野の新たな発展を目標とした。

3. 研究の方法

装置開発の面では、顕微鏡システムに合わせた小型のマグネットシステムを作製した。以前の方法とは逆に、既存マグネットシステムに合わせた顕微鏡システムの構築を目指した。装置の基本設計は、マグネット内にある試料付近に無限系の対物レンズを置き、観察画像を平行光としてマグネット上部にある顕微鏡系に送るというものである。ただしパルス磁場中に金属部品を使用した対物レンズを置いてしまうと、誘導電流と磁場との相互作用で光学系が大きく振動してしまい綺麗な画像が得られないと予想されるため、非磁性・非金属の特殊な対物レンズを作製する必要があった。またマグネット上部に設置する顕微鏡についても、試料およびレンズ系と精密な調整が可能な形で組み合わせる必要があり、そのようなデザインを考案した。

観察の対象物質としてはカイラルな結晶構造を持つ反強磁性体として知られている CsCuCl₃ における磁気複屈折の観察を目標とした。その基礎物性を調べるためまずは強磁

場下における磁化および電気分極測定を先行して予定した。また観察対象の物理としてより興味深い対象を探すため、この物質以外のマルチフェロイック物質についても強磁場下における基礎物性測定を推進した。

4. 研究成果

パルスマグネットに挿入可能な顕微鏡システムの構築に成功した(図1)。このシステムは内径 27 mm 以上のパルスマグネットに挿入可能であり、最高磁場 55 T までのイメージング実験に使用可能と見込まれる。装置テストの際に適切な内径を持つマグネットが壊れていたため、内径 64 mm / 最大磁場 27 T のマグネットで代用して性能評価を行ったところ、後述のように強磁場下で明瞭な画像が得られることを確認した。

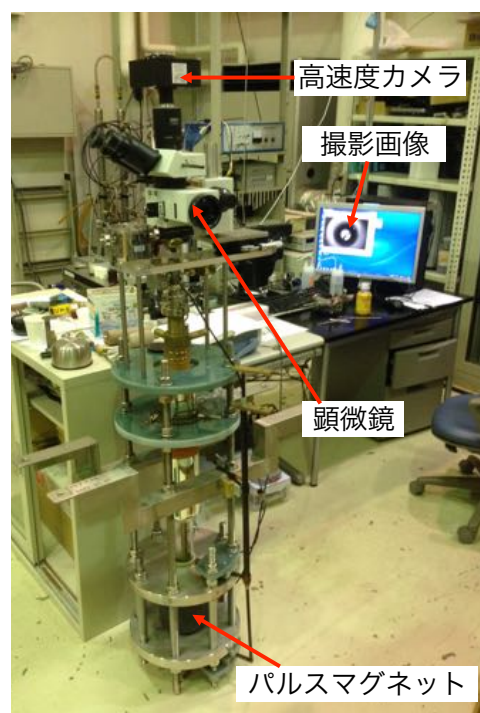


図1 本研究で開発した高速顕微鏡システムとパルスマグネット。

観察対象として予定した CsCuCl₃ に関する基礎物性評価を行った結果、これまで知られていなかった新たな磁場誘起強誘電相を発見した。我々はこの物質を古典スピン系とみなした考察から、この磁場誘起マルチフェロイック物質が電気分極を帯びたカイラルソリトン格子であるという議論を行った。この物質に関するイメージング実験を行う予定であったが試料がもろく、十分な光量の可視光が透過する厚みまで研磨することができなかったため、並行して研究していた別の対象物質である BiFeO₃ に注目した。

BiFeO₃ は室温で磁気秩序と強誘電性が共存する特異なマルチフェロイック物質としてよく知られている。我々はこの物質の良質大型単結晶に対して精密な強磁場物性研究

を行い、これまで知られていなかった新たな方向にも電気分極が存在すること、そしてその成分が磁場で制御する不揮発性メモリー効果を示すことを見出した。さらにその後の実験で、このメモリー効果は電場印加でも制御できることも明らかにした。我々の解釈では、これらのメモリー効果は電気磁気ドメインの再配列が起源になっていると見ており、それを直接確認する実験が重要である。そこで本研究で開発したイメージングシステムを用いたドメイン観察を行った。

近赤外光の透過配置で BiFeO_3 を観察するとドメイン構造が見える [図 2(a)]。この状態で最高磁場 27 T・パルス幅 28 ms のパルス磁場を印加し、秒間 3,000 フレームの速度で撮影した顕微鏡像の一枚を図 2(b)に示している。磁場相転移が起こり、電気磁気ドメインが消失していると思われる磁場領域でもドメイン構造が見えることから、この手法で観察されるドメインは結晶の双晶ドメインであることがわかった。この結果はパルス磁場中でも無磁場下と同等の鮮明な画像が得られることを示しており、今後このイメージングシステムを用いた様々な物質への展開が期待できる。

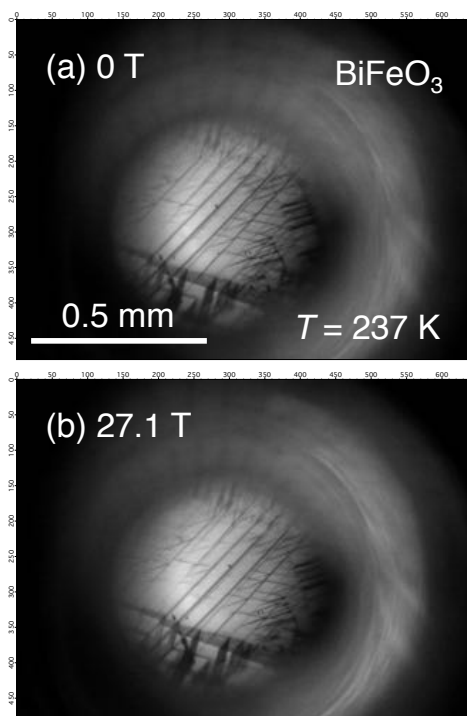


図 2 本研究で開発した光学系を用いて撮影した BiFeO_3 の(a) 0 T および(b) 27 T における近赤外光透過像。

またイメージングシステムを用いた研究対象を拡張すべく、鉄系超伝導体関連物質における軌道秩序ドメインの観察や、ホイスラー合金におけるマルテンサイト変態のその

場観察なども行い、マルチフェロイック物質以外の研究の発展にも貢献した。

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 7 件)

- ① "Resistive memory effects in BiFeO_3 single crystals controlled by transverse electric fields", S. Kawachi, H. Kuroe, T. Ito, A. Miyake, and M. Tokunaga, Appl. Phys. Lett. **108**, 162903 (2016). 査読あり
- ② "Magnetic field induced polar phase in the chiral magnet CsCuCl_3 ", A. Miyake, J. Shibuya, M. Akaki, H. Tanaka, and M. Tokunaga, Phys. Rev. B **92**, 100406(R)1-5 (2015). 査読あり
- ③ 「ハイスピードカメラで調べる強磁場物性」、徳永将史、固体物理 **50**, 163 (2015). 査読なし
- ④ "Magnetic control of transverse electric polarization in BiFeO_3 ", M. Tokunaga, M. Akaki, T. Ito, S. Miyahara, A. Miyake, H. Kuwahara, and N. Furukawa, Nat. Commun. **6**, 5878 (2015). 査読あり
- ⑤ "High field studies on BiFeO_3 single crystals grown by the laser-diode heating floating zone method", M. Tokunaga, M. Akaki, A. Miyake, T. Ito, and H. Kuwahara, J. Magn. Magn. Mat. **383**, 259 (2015). 査読あり
- ⑥ "Direct measurements of inverse magnetocaloric effects in metamagnetic shape-memory alloy NiCoMnIn ", T. Kihara, X. Xu, W. Ito, R. Kainuma, and M. Tokunaga, Phys. Rev. B **90**, 214409 (2014). 査読あり
- ⑦ "Magnetic field-induced reverse martensitic transformation and thermal transformation arrest phenomenon of $\text{Ni}_{41}\text{Co}_9\text{Mn}_{39}\text{Sb}_{11}$ alloy", R. Y. Umetsu, X. Xu, W. Ito, T. Kihara, K. Takahashi, M. Tokunaga, and R. Kainuma, Metals **4**, 609 (2014). 査読あり

[学会発表] (計 17 件)

- ① キョッキョウ他、「 $\text{Co}_2\text{Cr}(\text{Ga},\text{Si})$ 合金におけるリエントラントマルテンサイト変態のエントロピー変化」、日本物理学会第 71 回年次大会、2016 年 3 月 21 日、東北学院大学 (宮城県・仙台市)。
- ② 伊藤利充他、「室温マルチフェロイクス BiFeO_3 単結晶の磁気ドメインの特性」、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、2016 年 3 月 21 日、東京工業大学 (東京都・目黒区)。
- ③ 三宅厚志他、「カイラル磁性体 CsCuCl_3 の磁場誘起強誘電相」、物性研究所短期研究会「スピン系物理の深化と最前線」、2015 年 11 月 17 日、東京大学 (千葉県・柏市)。

- ④ 河智史朗他、「 BiFeO_3 の磁気ドメインに関する研究」、日本物理学会2015年秋季大会、2015年9月19日、関西大学(大阪府・吹田市)。
- ⑤ 三宅厚志他、「パルス強磁場下におけるカイラル磁性体 CsCuCl_3 の電気磁気効果」、日本物理学会2015年秋季大会、2015年9月19日、関西大学(大阪府・吹田市)。
- ⑥ 細井優他、「鉄系超伝導体 $\text{Fe}(\text{Se}, \text{S})$ におけるネマティック感受率測定」、日本物理学会2015年秋季大会、2015年9月17日、関西大学(大阪府・吹田市)。
- ⑦ M. Tokunaga *et al.*, "Non-volatile magnetoelectric memory effect in multiferroic BiFeO_3 ", 20th International Conference on Magnetism, 2015年7月5-10日, Barcelona, Spain.
- ⑧ J. Shibuya *et al.*, "Field-induced multiferroic phase in a chiral triangular-lattice antiferromagnet CsCuCl_3 ", 11th International Conference on Research in High Magnetic Fields, 2015年7月1-4日, Grenoble, France.
- ⑨ 徳永将史他、「室温マルチフェロイック物質 BiFeO_3 の電気磁気効果」、強磁場科学研究会、2014年12月4-5日、大阪大学(大阪府豊中市)。
- ⑩ 徳永将史他、「LD-FZ法で作製した BiFeO_3 単結晶の強磁場電気磁気効果」、日本物理学会2014年秋季大会、2014年9月7-10日、中部大学(愛知県・春日井市)。
- ⑪ 渋谷純平他、「パルス強磁場下における CsCuCl_3 の電気磁気効果 III」、日本物理学会2014年秋季大会、2014年9月7-10日、中部大学(愛知県・春日井市)。
- ⑫ J. Shibuya *et al.*, "Novel multiferroic phase of CsCuCl_3 in high magnetic fields", 27th International Conference on Low Temperature Physics, 2014年8月6-13日, Buenos Aires, Argentina.
- ⑬ M. Tokunaga *et al.*, "High field studies on BiFeO_3 single crystals grown by the laser-diode heating floating zone method", Moscow International Symposium on Magnetism (invited), 2014年6月30日-7月3日, Moscow, Russia.
- ⑭ 渋谷純平他、「パルス強磁場下における CsCuCl_3 の電気磁気効果 II」、日本物理学会第63回年次大会、2014年3月27-30日、東海大学(神奈川県・伊勢原市)。
- ⑮ 徳永将史、渋谷純平、三宅厚志、「パルス強磁場下イメージングシステムの改良」、東京大学物性研究所短期研究会、2013年10月30-11月1日、東京大学(千葉県・柏市)。
- ⑯ 渋谷純平他、「三角格子反強磁性体 CsCuCl_3 の電気磁気効果」、東京大学物性

- 研究所短期研究会、2013年10月30-11月1日、東京大学(千葉県・柏市)。
- ⑰ 渋谷純平他、「パルス強磁場下における CsCuCl_3 の電気磁気効果」、日本物理学会2013年秋季大会、2013年9月25-28日、徳島大学(徳島県・徳島市)。

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

名称：不揮発性メモリ素子、不揮発性メモリおよび不揮発性メモリの制御方法
 発明者：徳永将史、河智史朗、伊藤利充、黒江晴彦
 権利者：国立大学法人東京大学、国立研究開発法人産業技術総合研究所、学校法人上智学院
 種類：特許出願
 番号：特願2015-226685
 出願年月日：2015年11月19日
 国内外の別：国内

○取得状況 (計0件)

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://tokunaga.issp.u-tokyo.ac.jp/Tokunaga_Lab/lun_wen.html

6. 研究組織

(1)研究代表者

徳永 将史 (TOKUNAGA, Masashi)
 東京大学・物性研究所・准教授
 研究者番号：50300885

(2)研究分担者

()

研究者番号：

(3)連携研究者

()

研究者番号：

(4)研究協力者

渋谷 純平 (SHIBUYA, Jumpei)
 河智 史朗 (KAWACHI, Shiro)