

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 5 月 22 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13510

研究課題名(和文) 波形制御型高速繰り返しパルス強磁場開発と量子ビーム電子状態動画実験への応用

研究課題名(英文) Development of Fast Repetitive, Variable Wave Form Pulsed Fields and Application for Magnetic and Electronic States Movies with Quantum Beams

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) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、パルス強磁場下量子ビーム実験における磁場発生技術の革新による高精度化と時間発展観測測定のための新技術として、コイルの冷却の高速化、高速繰り返し・波形制御電源の製作と性能検証を行った。開発した強磁場装置を用いて、強磁場下の微弱超格子回折のシングルショット計測、中性子時分割測定、シングルショットXAS分光、など、これまでパルス磁場下では不可能であった、量子ビーム実験を実現し、パルス強磁場の応用範囲を格段に広げる事に成功した。さらに、ポンププローブ型時分割X線分光において、高速繰り返しパルス磁場を用いた高速初期化技術を開発し、初期状態設定に制約のない実験を可能にした。

研究成果の概要(英文)：We have developed the new pulsed magnetic field generation techniques for high precession data accumulations and for time dependent experiments. The main technical achievements are the developing of the compact fast cooling pulsed coils and of the fast repeating variable wave form pulsed field generators. By using these techniques, we have succeeded in the observation of weak super-lattice peaks in pulsed magnetic fields of 30-34 T. In neutron diffraction, a time dependent diffraction in the system showing the time evolution of the magnetic structure was conducted. We have also succeeded in the single shot XAS measurement which enables the time-dependent X-ray spectroscopy. A new type of initialization of magnetic systems for pump-probe type X-ray spectroscopy has been developed by using the ultra-fast repetitive pulsed fields. These achievements open the new applications of pulsed magnetic fields for quantum beam experiments.

研究分野：磁性、磁気共鳴、強磁場物性

キーワード：量子ビーム 強磁場発生 波形制御 極端条件

### 1. 研究開始当初の背景

我々はこの数年来、超小型の持ち運び型のパルス強磁場発生装置を X 線・中性子等と組み合わせた強磁場量子ビーム実験を世界に先駆けて開拓し、X 線回折、硬及び軟 X 線吸収分光、中性子回折など、世界初の実験を次々と実現して来た。さらに、これらの実験を APS(米・放射光)、LCLS(米・放射光)、SNS(米・パルス中性子)、ISIS(英・パルス中性子)、ILL(仏・原子炉中性子)等の海外の施設で展開し、世界的に独壇場の成果を上げている。今日では、強磁場量子ビーム実験は、各国の施設で重要な目標として掲げられ、更なる展開が計画されており、日本発の新分野として確立している。

しかしながら、さらに飛躍するためには、新たな技術的革新が求められる段階にある。小型パルス磁場は単発で、繰り返し間隔は 5 分程度のため、100 回積算(積算時間 500 分)でも、実測定時間は 1 秒に過ぎない。このため、微弱信号を捉える高精度実験は容易ではない。この問題の抜本的な解決のためには、冷却効率の高いコイルの開発、磁場波形制御間隔によるコイルの発熱の抑制等により、短時間の高速繰り返しが可能パルス磁場を実現し、それを用いて時間分解、高精度、高効率の強磁場量子ビーム実験を実現する事が必用である。

### 2. 研究の目的

本研究では、我々が世界をリードしているパルス強磁場下量子ビーム実験において、磁場発生技術を革新し、高精度化と時間発展観測という新しいブレークスルーを目指す。そのための新技術として、波形制御が可能かつ高速繰り返しの次世代パルス強磁場発生技術の開発を行う。さらに、この技術を応用して、(1) 高精度化による微弱超格子回折の観測、(2) 磁場誘起相転移における時間発展現象に関する時分割中性子回折の実現、(3) パルス磁場下時分割 X 線分光の実証、(4) ポンププローブ型の X 線実験のための高速繰り返しパルス磁場による初期化技術の開発、等を実現し、その有効性を検証することを目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究の開発的手法は以下の通りである。

(1) コイル冷却方法の改善-パルスコイルの冷却を改良するために、小型でかつ表面積が大きく、冷媒を循環出来る多層チャンネル型コイルを開発する。

(2) コイルの発熱を改善するために、パルス磁場発生時間を制御する波形整形技術を検証する。

(3) 高速繰り返しを実現するための高効率パルス磁場電源を開発する。

これらの技術を利用して以下の方法で実証実験を行った。

(4) フェルミ面等の電子状態の変化による

微弱な超格子反射を捉える高精度実験の実証を、X 線自由電子レーザーを用いて行う。

(5) パルス中性子を用いて、時分割中性子回折を行う。

(6) 時分割 X 線分光のための、シングルショット計測を実証する。

(7) 磁場による磁性体の高速初期化技術を実証する。

### 4. 研究成果

#### (1) 高効率冷却コイルの開発

平成 27 年度は、パルスコイルの冷却効率の改善のために、コイル素材の絶縁-金属 2 層構造の複合化により冷却効率を高める技術を実証し、さらに冷却に用いる液体窒素寒剤の強制循環装置の開発を行った。また、伝導冷却型のコイルの冷却を改善するために、渦電流の抑制と熱伝導を両立する複合型のコイル保持機構を開発した。

これらを受けて平成 28 年度は、パルスコイルの冷却効率と強度の最適化に取り組み、従来型の多層チャンネルコイルに加えて強度と冷却効率を両立出来るサファイヤ補強型チャンネルコイルの開発に成功した。このコイルでは、空間を作る代わりに、熱伝導が良好なサファイヤを層間に挿入し、強度の低下なしに良好な冷却係数を実現出来る。その結果、直接及び間接冷却開発コイルの両者とも従来型の一体コイルに比べて冷却速度を 2-3 倍にすることが可能となった。これに加えて、真空中で用いる事の出来る熱伝達冷却型のコイルにおいては、絶縁体のフランジ部分をガラスエポキシ単体からサファイヤとガラスエポキシの複合構造とすることで、冷却速度を 4 倍にすることに成功した。これらのコイル技術と高速繰り返し電源の併用で、磁場発生時間の 1 桁以上の改善が可能となった。

さらに、コイルの熱伝達のモデル化と解析を行い、コイル含侵用のエポキシ樹脂の熱伝導が冷却速度を律速している事を明らかにした。この改善策として、エポキシに SiC や  $Al_2O_3$  などのセラミックス粉末を混入して複合化し、熱伝導を改善する技術、エポキシを使わずセラミックスと氷の混合物により冷却する技術なども検討し、さらに冷却効率を改善出来る目処をつけた。

#### (2) 高速繰り返しコンデンサ電源装置開発

高速繰り返しが可能なコンデンサ電源装置の開発を進めた。このために、電源のバイポーラ化により、従来の 30%のエネルギーで充電出来るコンデンサ電源を開発し、最高で 3 秒での繰り返し磁場発生を実証するなど、コイルの冷却時間の向上に対応する磁場発生効率の向上を実現した。

このように、磁場発生技術においては、従来から格段の進展が得られ、当初の目的を達成した。

### (3) 微弱超格子反射の測定

実証実験においては、高精度化を利用した微弱な超格子反射に関する研究として、LCLSで進めて来た、Y系高温超伝導体の電荷密度波に起因する超格子反射の磁場依存性の観測を実施した。高温超伝導体においては、強磁場下で共通して電荷密度波が観測され、その原因と超伝導との関連に興味が集まっている。しかしながら、この電荷密度波による格子の変調は極めて小さく、反射強度が基本反射の100万分の1程度の微弱な超格子反射を測定する事が必用で、データ積算に時間的制限のない定常磁場においても困難な実験とされてきた。我々は、本研究において、コイルの冷却効率と発生磁場強度を改良することで、33テスラのパルス強磁場下で電荷密度波の観測に成功した。さらに、高効率のパルス磁場を利用することで、限られた時間で、ホール濃度依存性や磁場依存などの詳細な測定を効率良く実施する事に成功し、Y系の電荷密度波の全体像を明らかにする事に貢献した。この結果は、一部を成果論文(1)として出版済みで、現在続報を準備中である。

### (4) X線分光実験

高速繰り返しパルス磁場電源のプロトタイプをスタンフォードのX線自由電子レーザー施設LCLSに持ち込み、ポンプ-プローブ型のホログラムイメージング実験のための磁場発生試験に成功した。また、冷却効率を高めた磁場発生系と組み合わせでシングルショットX線吸収分光の実験を行えることも実証した。これらの実証実験により、時分割X線分光実験がパルス強磁場下で実施出来ることを示した。しかしながら、現状の自由電子レーザーでは、スペクトルのバンド幅が狭いため、例えば希土類のM吸収端等においては、スペクトルの全貌を捉えるにはエネルギー方向の走査が必用である。この問題の対応策として、スイスX線自由電子レーザー施設等のワイドバンドのX線源の利用が今後必要になることが予想される。これに対応するため、装置の基本設計などを行い、実現性を検証した。また、ワイドバンドを必用としない分光手法として、X線発光分光法の検討を行い、実用性を確認した。発光分光の実証実験は、マシンスケジュールの都合で2017年に実施予定であるが、これにより、スピントロニクスオーバー現象の時分割測定などが可能になると期待されている。

### (5) 中性子時分割測定

高速繰り返しパルス磁場を用いた時分割に測定においては、パルス中性子の時間バンチ構造を用いて、磁気構造の時間発展計測の検証実験を実施した。研究対象として、磁気構造と相関が時間に依存する三角格子反強磁性体  $\text{Ca}_3\text{Co}_2\text{O}_6$  の磁気構造に関する中性子回折実験を、Oakridge研究所のSNS施設で行った。SNSでは、中性子の繰り返しは66 Hzで

あり、約15 msecの時間分解能が得られる。実験には、特別に作製した縦磁場コイルを用いて、水平散乱面の測定を行ったが、分光器の分解能の制約で、長周期の衛星反射については、完全な空間分離が行えない条件となる。測定回数としては、20回程度で強度の時間変化を測定する事が出来た。この結果により、強磁場印可の度合いによって異なる磁気準安定状態が誘起されることを中性子回折で確認し、磁化過程等の時間依存性との対応や、より長時間領域の磁気回折強度の時間発展との対応関係を明らかにした。

### (6) ポンププローブ X線分光および他の実験への応用

近年発展しているポンププローブ型のX線散乱実験については、磁性体を対象とする場合、その状態の初期化が問題になる。これに対して、今回開発した装置を用いると、高速に強磁場を印可することで初期化することが可能であり、磁化の高速反転実験等の研究への応用が可能である事を実証した。

さらに、高速繰り返しパルス磁場の応用について、Axion等の未知粒子探索や真空の複屈折等の基礎物理実験への応用についても、東京大学のグループと共同研究を行った。これらを通して他分野の展開についても、大きな進捗があり、その結果はPhys. Rev. Lett. **118**(2017) 071803の学術論文として出版されている。

以上のように、本研究においては、高速繰り返しのパルス磁場発生技術の開発により、これまで実施が困難であった微弱信号を検出する量子ビーム実験や、時分割型の実験の実現が可能になり、その幾つかについては、実際に実証実験が行われ、学術的な成果としても論文発表される段階に達した。これらは、新しい分野を切り拓く端緒となる重要な成果であり、今後のこの分野の発展の重要な契機となる事が期待される。これらの成果については、日本物理学会等で多数の発表を行った他、2つの招待講演を含む国際会議の発表が行われ、2017年度にも国際結晶学会での招待講演を依頼されるなど、内外で注目される結果となった。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](査読有り、計1件)

(1) H. Jang, W.-S. Lee, H. Nojiri, S. Matsuzawa, H. Yasumura, L. Nie, 他 17名, Ideal Charge-Density-Wave Order in the High-Field State of Superconducting YBCO, Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. **113**(2016)14645-14650.  
DOI: 10.1073/pnas.1612849113

[学会発表](計14件)

(1) 国際会議(3件、うち招待講演2件)

H. Nojiri, X-Ray and Neutron Scattering in

High Magnetic Fields, Korean Physical Society Meeting (KPS2016-Spring), 2016.4.21, Daejeon (Korea). (招待)

H. Nojiri, S. Matsuzawa, H. Yasumura, 他5名, Pulsed High Magnetic Field Experiments with X-Ray FEL, Physiscal Phenomena at High Magnetic Fields-8, 2016.1.6, Tallahassee (USA). (招待)

H. Nojiri, S. Matsuzawa, H. Yasumura, 他4名, High Magnetic Field X-ray Experiments with Synchrotron Radiation and Free Electron Laser Sources, The 11th International Conference "Research in High Magnetic Fields" (RHMF2015), 2015.7.2, Grenoble (France).

## (2) 国内会議 (11 件)

松澤智, 野尻浩之, 安村光正, 他6名, 低ドープ領域の銅酸化物超伝導体における磁場誘起 CDW の探索, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017.3.20, 大阪大学 (大阪府・豊中市).

松田雄輔, 野尻浩之, 木原工, 他5名, ダブルパルス磁場法による三角格子反強磁性体  $\text{Ca}_3\text{Co}_2\text{O}_6$  の緩和と磁場温度相図, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017.3.17, 大阪大学 (大阪府・豊中市).

安村光正, 佐原拓郎, 野尻浩之, 小型パルス磁場の冷却効率の改良, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017.3.17, 大阪大学 (大阪府・豊中市).

樊星, 上岡修星, 稲田聡明, 他8名, 野尻浩之, パルス磁石と高フィネス共振器を用いた真空複屈折の探索 I, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017.3.17, 大阪大学 (大阪府・豊中市).

上岡修星, 樊星, 稲田聡明, 他8名, 野尻浩之, パルス磁石と高フィネス共振器を用いた真空複屈折の探索 II, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017.3.17, 大阪大学 (大阪府・豊中市).

松澤智, 野尻浩之, 安村光正, 他5名, 強磁場 X-FEL 回折実験用パルスマグネットの開発と応用, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016.9.14, 金沢大学 (石川県・金沢市).

松田雄輔, 野尻浩之, 木原工, 他5名, 磁場初期化型時分割中性子回折装置の開発と三角格子反強磁性体  $\text{Ca}_3\text{Co}_2\text{O}_6$  への応用, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016.9.13, 金沢大学 (石川県・金沢市).

松田雄輔, 野尻浩之, 稲村泰弘, 磁場初期化型時分割中性子回折装置の開発, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016.3.21, 東北学院大学 (宮城県・仙台市).

安村光正, 野尻浩之, 松澤智, 他4名, XFEL による強磁場 X 線吸収分光装置の開発と  $\text{Eu}(\text{Rh}_{0.7}\text{Ir}_{0.3})_2\text{Si}_2$  の磁場誘起価数転移への応用, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016.3.21, 東北学院大学 (宮城県・仙台市).

松澤智, 野尻浩之, 安村光正, 他3名, X 線自由電子レーザーを用いたパルス超強磁場

中回折実験の装置開発, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015.9.17, 関西大学(大阪府・吹田市).

野尻浩之, 松澤智, 高速繰り返し型パルス磁場の開発, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015.9.16, 関西大学(大阪府・吹田市).

〔その他〕

ホームページ等

磁気物理学研究室 HP

<http://www.hfpm.imr.tohoku.ac.jp/>

## 6 . 研究組織

### (1) 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

### (2) 研究分担者

なし ( )