

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 5 月 25 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K14403

研究課題名（和文）100テスラ級超強磁場下における超音波物性測定

研究課題名（英文）Ultrasound measurements under megagauss fields

研究代表者

野村 肇宏（Nomura, Toshihiro）

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：20845987

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：破壊型磁場発生手法である一巻きコイル法と組み合わせ、物質の超音波音速を計測する手法を新たに開発することに成功した。開発した手法を液体酸素、量子スピン系物質、重い電子系物質などに適用することで、超強磁場誘起相転移における物質の弾性定数の変化に関する情報を得ることに成功した。特に、液体酸素については磁場誘起の液体-液体相転移の前駆現象を示唆する結果を得た。また二次元量子スピン系物質SrCu₂(BO₃)₂では1/2プラトー相における巨大な弾性異常を観測した。開発した計測技術は今後も超強磁場物理を探索する上で強力な手法になることが期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで磁場中物性に関する複数の研究がノーベル賞の対象になっていることからわかるように、強磁場下における物質の性質は多彩かつ複雑であり、未だに固体物理のフロンティアにある。超強磁場下における物性測定には多くの制限があり、これまで格子物性に関する情報はほとんど報告例が無かった。本研究では新たに音速（弾性定数）に関する情報を得る計測手法を開発し、物性測定に応用した。本研究で開発した手法は他の物質群にも適用可能であり、超強磁場下での新たな物性を探索する上で強力な手法となる。

研究成果の概要（英文）：A new method for measuring ultrasonic sound velocity of materials has been successfully developed in combination with the single-turn coil method, a destructive magnetic field generation technique. By applying the developed method to liquid oxygen, quantum spin systems, and heavy fermion systems, we succeeded in obtaining information on the change of elastic constants of materials in the ultrahigh magnetic field-induced phase transitions. In particular, for liquid oxygen, we obtained results suggesting a precursor of the liquid-liquid phase transition induced by a magnetic field. In addition, a giant elastic anomaly in the 1/2 plateau phase was observed in the two-dimensional quantum spin system SrCu₂(BO₃)₂. The developed measurement technique is expected to be a powerful tool to explore ultrahigh magnetic field physics in the future.

研究分野：固体物理

キーワード：超強磁場 超音波 酸素 非相反 量子スピン

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

100 テスラ級の磁場領域は未知の物性の宝庫である。この磁場領域ではゼーマンエネルギーは室温に匹敵し、熱ゆらぎで覆い隠されていた秩序が磁場によって出現する可能性がある。しかしながら 100 テスラを超える超強磁場は破壊型のパルス磁場発生手法でのみ実現可能であり、物性測定への応用には多くの制約が付きまとう。主な制約は、数マイクロ秒という磁場発生時間の短さ、パルス磁場由来の誘導電圧、大電流スイッチ由来の電磁波ノイズ、の三点である。これら実験条件の過酷さから、先行研究は光測定、磁化測定、電気抵抗測定といった基礎的な物性測定に制限されてきた。したがって、超強磁場下における“格子物性”は未だ謎に包まれており、格子の自由度がどのように電気・磁気物性に影響するのか？という問いに答える手法はない。超強磁場下で現れる物性を多角的に議論する上で、新たな計測技術開発が求められている。

超音波は強力な物性測定手法であるが、これまで破壊型磁場発生手法との組み合わせは不可能とされてきた。最大の難点は“数マイクロ秒という磁場発生時間の短さ”である。従来のパルスエコー法では測定の繰り返し周波数が遅く、磁場発生中にデータが 1 点しか得られない。また音波が伝搬する間に磁場が変化してしまい、磁場のエラーバーが大きくなってしまう。

2. 研究の目的

本研究は超音波測定を超強磁場下における新たな物性測定手法として確立し、種々の磁性体研究へと応用することを目的とする。超音波測定からは“音速”と“音波減衰係数”が同時に得られ、それぞれ自由エネルギーの二階微分量と格子ダイナミクスを反映する。音波物性は構造相転移のみならず、磁気相転移やフェルミ面付近の状態密度変化も敏感に検出することが知られている。また音波の持つ歪み場の対称性から、秩序パラメタの対称性を議論することができる。測定対象は金属・絶縁体を問わない。以上から、超音波は種々の相転移を研究する強力な測定手法と言え、超強磁場と組み合わせるプローブとして魅力的である。

3. 研究の方法

本研究で採用する超音波測定手法、CW 法（連続励起法）について、パルスエコー法と比較しながら紹介する。パルスエコー法ではパルス状の高周波電圧でトランスデューサーを励起し、音波パルスを発生する。音波パルスは検出側のトランスデューサーに到達するたびにエコー信号として検出される。0 次エコーの位相を参照波の位相と比較することで、音速の相対変化が得られる。測定点はおよそ 100 マイクロ秒毎に得られる。これに対し、CW 法では連続的に高周波電圧で音波を励起するため、連続的に測定点を得られる。CW 法の課題点は、エコー信号に多くのノイズを含む点である。パルスエコー法では時間軸で分離できていた“クロストークノイズ (CT-noise)”と“高次エコー信号”が“0 次エコー信号”と混じってしまい、解析が煩雑になる。

本研究では CW 法を実際の物質に適用しながら、上述の問題を回避する方法を探るという研究方針を取った。超音波音速や音波減衰係数は物質に大きく依存しており、すべての物質における測定を最適化できるようなパラメタは存在しない。そのため、物性測定と計測技術の最適化は同時に進行するべき課題であった。

4. 研究成果

主な研究成果は以下の 3 点である。

・ 100 テスラ以上の超強磁場領域における超音波計測技術の確立

申請時点に掲げた計測技術の開発に成功し投稿論文で発表した[T. Nomura et al., Rev. Sci. Instrum. 96, 063902 (2021)]。この論文では具体的な物性測定の結果としてフラストレート磁性体 MnCr_2S_4 、量子スピン物質 Greed diopside、液体酸素における超強磁場中の音波物性を報告した。また強磁場中の計測技術に関するレビュー論文でも開発した手法を紹介した[Y. Kohama, T. Nomura, S. Zherlitsyn, Y. Ihara, J. Appl. Phys 113, 070903 (2022)]。

・ 液体酸素における 150 テスラまでの超音波測定の成功

本研究の重要な研究対象である液体酸素の磁場誘起液体 液体相転移の探索を行うために、150 テスラ級の超強磁場領域で超音波測定を行った。残念ながら、目的の相転移を観測することはできなかったが、液体 液体相転移の前駆現象と考えられる -20% にも及ぶ音速の低下を観測した。実験結果は他の物性とまとめて論文で報告した[T. Nomura et al., Phys. Rev. B 104, 224423 (2021)]。また酸素に関するレビュー論文でも本研究について取り上げた[T. Nomura, Y. H. Matsuda, T. C. Kobayashi, Oxygen 2, 152 (2022)]。

・ 二次元量子スピン系物質 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の飽和磁場までの超音波測定の成功

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は超強磁場磁化過程で悪魔の階段と呼ばれる複雑な多段プラトー構造を示す物質であり、強磁場研究コミュニティにとって特別な物質である。これまで 118 テスラまでの研究

が行われていたものの、飽和磁場までの物性は理論的にも実験的にも報告されてこなかった。本研究では開発した手法を用いて 150 テスラまでの音波物性測定に成功し、磁化の飽和に対応する信号を検出することに成功した。また 1/2 プラトー相における巨大な弾性異常を観測した。得られた実験結果はスイスとオランダの理論研究チームと共同で考察し、原稿を執筆した[T. Nomura et al., arXiv:2209.07652]。論文は現在査読中である。

開発した手法と直接の関連はないものの、強磁場中の超音波測定により以下の研究成果も挙げることができた。

Nonreciprocal Phonon Propagation in a Metallic Chiral Magnet, T. Nomura, X.-X. Zhang, R. Takagi, K. Karube, A. Kikkawa, Y. Taguchi, Y. Tokura, S. Zherlitsyn, Y. Kohama, and S. Seki, *Phys. Rev. Lett.* 130, 176301 (2023).

Emergent anisotropy in the Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov state, S. Imajo, T. Nomura, Y. Kohama, K. Kindo, *Nat. Commun.* 13, 5590 (2022).

Magnetically Hidden State on the Ground Floor of the Magnetic Devil's Staircase, S. Imajo, N. Matsuyama, T. Nomura, T. Kihara, S. Nakamura, C. Marcenat, T. Klein, G. Seyfarth, C. Zhong, H. Kageyama, K. Kindo, T. Momoi, and Y. Kohama, *Phys. Rev. Lett.* 129, 147201 (2022).

Ferroelectric Transition of a Chiral Molecular Crystal BINOL·2DMSO, T. Nomura, T. Yajima, Z. Yang, R. Kurihara, Y. Ishii, M. Tokunaga, Y. H. Matsuda, Y. Kohama, K. Kimura, T. Kimura, *J. Phys. Soc. Jpn.* 91, 064702 (2022).

Field-induced valence fluctuations in YbB12, R. Kurihara, A. Miyake, M. Tokunaga, A. Ikeda, Y. H. Matsuda, A. Miyata, D. I. Gorbunov, T. Nomura, S. Zherlitsyn, J. Wosnitza, F. Iga, *Phys. Rev. B* 103, 115103 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Nomura T., Ikeda A., Gen M., Matsuo A., Kindo K., Kohama Y., Matsuda Y. H., Zherlitsyn S., Wosnitza J., Tsuda H., Kobayashi T. C.	4. 巻 104
2. 論文標題 Physical properties of liquid oxygen under ultrahigh magnetic fields	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 224423
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.224423	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 Nomura T., Hauspurg A., Gorbunov D. I., Miyata A., Schulze E., Zvyagin S. A., Tsurkan V., Matsuda Y. H., Kohama Y., Zherlitsyn S.	4. 巻 92
2. 論文標題 Ultrasound measurement technique for the single-turn-coil magnets	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 063902 ~ 063902
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0045209	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 Nomura Toshihiro, Matsuda Yasuhiro H., Kobayashi Tatsuo C.	4. 巻 2
2. 論文標題 Solid and Liquid Oxygen under Ultrahigh Magnetic Fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Oxygen	6. 最初と最後の頁 152 ~ 163
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/oxygen2020013	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 Nomura Toshihiro, Yajima Takeshi, Yang Zhuo, Kurihara Ryosuke, Ishii Yuto, Tokunaga Masashi, Matsuda Yasuhiro H., Kohama Yoshimitsu, Kimura Kenta, Kimura Tsuyoshi	4. 巻 91
2. 論文標題 Ferroelectric Transition of a Chiral Molecular Crystal BINOL.2DMSO	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 64702
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.91.064702	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 Kohama Yoshimitsu, Nomura Toshihiro, Zherlitsyn Sergei, Ihara Yoshihiko	4. 巻 132
2. 論文標題 Time-resolved measurements in pulsed magnetic fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 070903 ~ 070903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0093985	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 Imajo S., Matsuyama N., Nomura T., Kihara T., Nakamura S., Marcenat C., Klein T., Seyfarth G., Zhong C., Kageyama H., Kindo K., Momoi T., Kohama Y.	4. 巻 129
2. 論文標題 Magnetically Hidden State on the Ground Floor of the Magnetic Devil's Staircase	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 147201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.129.147201	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 Imajo Shusaku, Nomura Toshihiro, Kohama Yoshimitsu, Kindo Koichi	4. 巻 13
2. 論文標題 Emergent anisotropy in the Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov state	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 5590
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-022-33354-1	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 Matsuyama N., Nomura T., Imajo S., Nomoto T., Arita R., Sudo K., Kimata M., Khanh N. D., Takagi R., Tokura Y., Seki S., Kindo K., Kohama Y.	4. 巻 107
2. 論文標題 Quantum oscillations in the centrosymmetric skyrmion-hosting magnet GdRu2Si2	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104421
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.104421	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 T. Nomura, X.-X. Zhang, R. Takagi, K. Karube, A. Kikkawa, Y. Taguchi, Y. Tokura, S. Zherlitsyn, Y. Kohama, S. Seki	4. 巻 130
2. 論文標題 Nonreciprocal Phonon Propagation in a Metallic Chiral Magnet	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 176301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.130.176301	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1件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 Toshihiro Nomura
2. 発表標題 Quest for a Magnetic-field-induced Liquid-liquid Transition of Oxygen by Ultrasound Measurements in Megagauss Region
3. 学会等名 1st Asia-Pacific Conference on Condensed Matter Physics 2021 (AC2MP2021) (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〕

-

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

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			
ドイツ	HZDR			
スイス	EPFL			
オランダ	University of Amsterdam			