

令和 5 年 5 月 25 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（開拓）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K20521

研究課題名（和文）シングルショット超強磁場X線計測によるスピン格子結合の解明

研究課題名（英文）Study of the spin-lattice coupling using a single-shot x-ray measurement in ultrahigh magnetic fields

研究代表者

松田 康弘（Matsuda, Yasuhiro）

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：10292757

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 19,900,000円

研究成果の概要（和文）：可搬型の破壊型超強磁場発生装置として、小型一巻きコイル磁場発生装置を開発した。エネルギーは4.5 kJ、充電電圧は30 kVである。2.5 mmの直径の一巻きコイルと組み合わせることで、77 Tの磁場を達成した。100 TをX線実験可能な条件下で発生するには、10 kJ以上のエネルギーが必要であることも明らかになった。開発した装置をX線自由電子レーザー施設SACLAに導入し、65 Tの磁場において、マンガン酸化物の磁場誘起構造相転移をX線回折によって直接観測することに成功した。さらに、低温環境も構築し、コバルト酸化物のスピン状態転移やフラストレート磁性体の構造相転移の研究に応用した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

X線自由電子レーザーを用いたX線回折などの微視的な測定が破壊型磁場において可能となったことは、100 テスラを超える磁場中での未解明の様々な興味深い現象の解明につながる。50テスラ程度の現在のX線実験における磁場の上限を破壊型によって、77 Tまで引き上げたインパクトは大きく、国内外から大きく注目されている。実際に、ヨーロッパ、アメリカ、それぞれの放射光X線施設の研究者から問合せが寄せられており、同様の可搬型の小型一巻きコイルの導入を検討している様子である。日本のSACLAにおいて強磁場X線実験の最先端技術を切り拓いたことには大きな意義があり、今後のさらなる発展が期待される。

研究成果の概要（英文）：A compact single-turn coil magnetic field generator was developed as a portable destructive ultra-strong magnetic field generator. The energy is 4.5 kJ and the charging voltage is 30 kV. Combined with a single-turn coil with a diameter of 2.5 mm, a magnetic field of 77 T was achieved. It was also clarified that an energy of 10 kJ or more is required to generate 100 T capable to X-ray experimental conditions. We introduced the developed device to the X-ray free electron laser facility SACLA, and observed the magnetic field-induced structural phase transition of manganese oxide in a magnetic field of 65 T with direct observation by X-ray diffraction. Furthermore, a low-temperature environment was constructed and applied to study spin-state transitions in cobalt oxides and structural phase transitions in frustrated magnets.

研究分野：強磁場物性

キーワード：強磁場 自由電子レーザー シングルショット X線 構造相転移 放射光 スピン格子結合

1. 研究開始当初の背景

固体の量子効果の研究において磁場は必須の環境であり、その重要性は普遍的である。しかし一方で、磁場強度拡張は、現存する地球上の金属の機械強度によってコイルの強さが決定されているため、通常的手法での磁場発生は 100 T に限界がある[1]。また、その場合、大型マグネットとなるため微視的計測は大きく制限される。本研究は可搬型の破壊型 100 T 磁場発生装置の開発という技術的ブレークスルーによって 100 T での X 線計測を実現し、さらに、より高い磁場領域への可能性を開く意味で画期的である。これまで、破壊型磁場を用いた微視的計測によって量子現象を観測した研究例は皆無であり、極めて挑戦的といえる。放射光 X 線の出現以来、様々な高度な X 線計測技術が発展しており、X 線回折をはじめ、X 線吸収および発光分光などが破壊型磁場領域で可能になれば、磁場誘起現象の理解が飛躍的に進むと期待できる。

一方で、放射光 X 線は限られた施設でのみ利用可能であることから、大型の強磁場発生マグネットの建設は容易ではない。現在、X 線実験における世界的な磁場の上限は 50 T 程度であり、比較的小型のパルスマグネットを用いる方法が主流である。より強磁場化をめざす際にも、マグネットのサイズは小型である必要があるため、破壊型の磁場発生手法を採用するのが唯一の解であると考えられるが、これまでにその様な研究は皆無である。

2. 研究の目的

磁場は電子のスピンや軌道運動に直接作用し、その効果を量子力学的に明確に記述できる。低温における磁場誘起相転移は基底状態の変化に起因した量子相転移であり、温度変化で観測される古典的な相転移とは本質的に異なるため、磁場誘起相転移近傍での非自明な量子現象の理解は重要である。実際に、近年のパルス磁場技術の発展によって 100 T 領域の強磁場において強いスピン格子結合を持つ物質中で興味深い相転移が観測されている。例えば、(a)固体酸素の新規磁場誘起新結晶、(b)近藤絶縁体の絶縁体金属転移、(c)フラストレート磁性体の逐次相転移、などがある。これらの現象の解明には、結晶構造や電子状態を微視的に調べる手法が必要であるが、100 T の強磁場中での微視的計測手法は確立していない。

本研究では、X 線自由電子レーザー (XFEL) の 10 fs の短時間 X 線パルスが 10^{11} 以上の十分な光子数を持つ高強度光源であることに着目した。100 T の磁場発生をコンパクトな装置で実現するには、磁場発生時間は数マイクロ秒となるが、XFEL のパルス X 線によるシングルショット計測を行うには十分長い磁場持続時間である。本研究の目的は、コンパクトな可搬型 100 T 強磁場発生装置を XFEL と組み合わせ、100 T 磁場中での微視的計測技術を確立させること、及び、その技術によってスピン-格子強結合系の磁場誘起相転移の解明を行うことである。具体的には、シングルショット X 線回折測定 / X 線発光分光測定を実現し、対象物質の結晶構造及び電子状態を微視的に明らかにする。光電子分光や STM、NMR のような他のスタンダードな微視的計測は 100 T 磁場中では不可能であり、本研究によって、磁場誘起相転移とその周辺で起こる量子現象の理解が飛躍的に進展すると期待できる。

3. 研究の方法

(1) 100 T 超強磁場発生装置の開発

強磁場発生における技術的問題点は、ジュール発熱による熱破壊、電磁力による機械的破壊、の 2 点である。現状ではミリ秒パルス磁場で を解決し、X 線実験は 40 T 程度まで可能であるが、50 T を超えるためには の問題の解決が必須である。強磁場発生専用施設ではマグネット補強により 50 T 以上の磁場発生が可能であるが、X 線実験用マグネットは計測窓が必要であり、機械的に脆弱な部分ができるため 50 T を超えるのは極めて困難である。

強磁場発生専用施設では の問題をマグネットの機械的強化で解決するが、X 線計測用マグネットでは 100 T 領域の磁場発生は不可能である。100 T 領域の磁場中で X 線計測を可能にするには、破壊型マグネットを用いることが唯一の解である。破壊型磁場発生は、 の問題を敢えて解決せず、一度の磁場発生でコイルを破壊する。重要な点は、(a) マイクロ秒の高速放電によってコイルの機械的破壊が起こる前に磁場発生を行うこと、及び、(b) 機械・電氣的工夫によってコイル以外を破壊させず、コイル交換によって同一試料について繰り返し測定が可能なることの 2 点がある。これらは、一巻きコイル法と呼ばれる破壊型磁場発生手法において実現可能であり、東京大学物性研究所をはじめとして、世界の数カ所の磁場発生専用施設で多くの実績がある。本研究においても、一巻きコイル法をベースとした技術開発によって 100 T の磁場環境を実現する。

一巻きコイル法では、先端に一巻きのコイルをもつ平板金属対板にコンデンサーからの放電電流を流して磁場を発生させる。原理が単純であり、破壊型磁場発生法の中では比較的コンパクトな装置であるが、100 T 磁場発生には 2~3 百万アンペアの大電流が必要であるため、高速大電流回路を実現しなければならない。実際、世界に 4 台稼働している物性計測用の一巻きコイル法超強磁場発生装置は、標準的な実験室を全て占有する程度の大きさのコンデンサー電源を必

要とし、コイル破壊を伴う磁場発生チャンパーも数 m 四方の中規模の装置である。本研究では、磁場発生体積を従来装置の 1/100 程度にし、装置全体を可搬型に設計した新型小型コイル装置を製作する。具体的には、物性研究所の一巻きコイルの 200 kJ のエネルギーに対して、3~5 kJ 程度のエネルギーとする。これによって、装置重量が 300 kg 程度で、高さ、幅、奥行きが $1 \times 0.3 \times 0.5 \text{ m}^3$ 程度の可搬型装置とすることが十分可能と期待できる。

装置のエネルギーは $(1/2)CV^2$ で与えられ、静電容量 $C = 10 \mu\text{F}$ 、充電電圧 $V = 30 \text{ kV}$ 程度を想定する。磁場発生コイルのインダクタンスは $L = 10 \text{ nH}$ 程度である。現実的な回路の残留インダクタンスや残留電気抵抗を考慮して、パルス幅が 2-3 μs 、最大電流値は 200 -300 kA 程度が少なくとも必要と予想できる。

(2) 100 T 超強磁場下中での X 線計測技術の開発

磁場発生装置が完成すれば、10~30 T 程度の磁場範囲で非破壊的にマイクロ秒のパルス磁場を発生させることは容易であり、SACLA に既存の高感度 2 次元 X 線検出器を用いることで十分計測可能である[2]。30 T を超える磁場の発生はコイルの変形を伴うが、爆発的な破壊が起こるのは 70 T 以上であると予測できる。現在の X 線実験の磁場上限が約 50 T であることから、少なくとも世界最高磁場記録を更新可能である。60 T から 100 T の磁場はコイルの破壊による衝撃を防御する技術的工夫が必要である。

(3) スピン格子結合系の磁場誘起相転移の解明

100 T 級の磁場中では、多彩な物質群で磁場誘起相転移が期待される。本研究ではスピン—格子結合の強い系に注目し、相転移での結晶構造および電子状態の変化を明らかにする。

4 . 研究成果

(1) 100 T 超強磁場発生装置の開発

エネルギー 4.5 kJ、充電電圧 30 kV の可搬型小型一巻きコイル装置を開発した。空気ギャップスイッチ 1 台で最大電流約 300 kA をパルス幅 3 μs で高速放電できることを確認した。磁場発生用のコイルについては、制御性などを考慮し、板状の一巻きコイルの形状を保持する方針とした。内径を小さくすることでより強磁場が得られるが、2.5 mm 程度の直径で磁場値が 70 T 程度で飽和することがわかった[3]。コイルの体積が小さくなることで、熱破壊の影響がより強くなることが原因の一つとして考えられる。図 1 に発生磁場のコイル内径（直径）依存性を示した。一巻きコイルの板の厚みは 3 mm、コイルの長さ（幅）は直径と同じである。

複数の巻線のコイルを用いると、磁場発生効率が上がるが、破壊がコイル内部にも及び、X 線実験への応用の観点から課題が大きいことも分かり、100 T 達成には 2-3 倍のエネルギーの電源が最適であるとの結論に至った。可搬型での 100 T 達成には至らないが、小型コイルにおいては 70 T はすでに破壊領域にあること、及び、X 線実験の世界最高値であることから、(ii)の X 線技術の応用に移行して研究を遂行した。

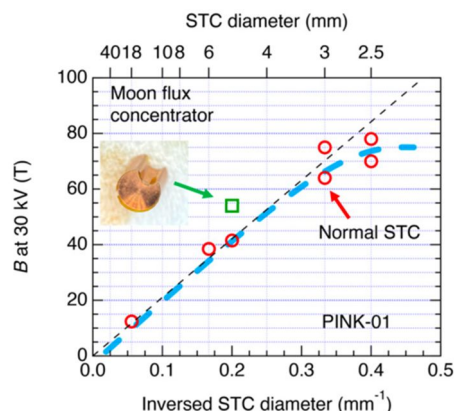


図 1 .コイル直径と発生磁場の最高値の関係[3]

(2) 100 T 超強磁場下中での X 線計測技術の開発

X 線自由電子レーザー（XFEL）施設 SACLA の BL3 に、開発した可搬型小型一巻きコイル磁場発生装置を導入し、X 線検出器 MPCCD、および Flat Panel Detector を用いた X 線回折測定手法を確立した。XFEL の X 線パルスのタイミングに合わせて、パルス磁場を発生させ、シングルショットで X 線回折を計測する技術を確立した[3]。XFEL の X 線パルスは十分短い（ps 程度）であるため、X 線回折時の磁場は一定とみなせる。図 2 はそれぞれ、パルス磁場波形と X 線パルスの波形を示した。

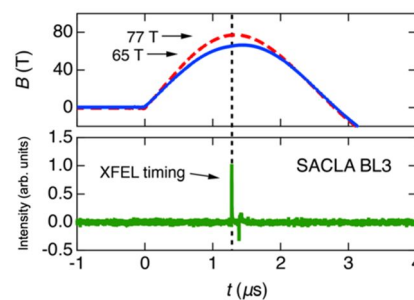


図 2 . 発生磁場波形と SACLA の X 線パルスのタイミング[3]

(3) スピン格子結合系の磁場誘起相転移の解明

仮数揺動物質やスピנקロスオーバー化合物、スピンプラストレート磁性体など、強いスピン格子結合を有する系の磁場誘起相転移を解明することが研究の目的である。最初の物質として電荷軌道秩序により絶縁体化が生じていると考えられている $\text{Bi}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ (BCMO) を選んだ。BCMO は室温で約 60 T の強磁場で、電荷軌道秩序相から電荷軌道融解金属相への相転移が起こると予想され、実際に約 60 T で磁化が急激に増大する。電荷軌道秩序が融解すれば、結晶構造も変わり、直方晶から、より立法晶に近い直方晶への転移が期待されるが、これまでに結晶構造の変化を観測した例はない。

$\text{Bi}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ を粉末にし、直径 2 mm 程度のペレット状に固め、透過配置で X 線回折実験を

行った。その結果、図 3 に示すように 65 T の磁場では回折パターンが 0 T のパターンとは大きく変化し、構造相転移が磁場で起こったことが確認できた[3]。さらに、スピנקロスオーバー物質、 LaCoO_3 及び $(\text{Pr,Y})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{CoO}_3$ や、フラストレート磁性体について、引き続き同様の測定を進め、いずれの場合も、磁場誘起構造相転移の観測に成功した。これらの物質では、初期温度を 10 K 以下程度にする必要があったが、小型のヘリウムフロークライオスタットを開発することで、実験を行うことが可能となった。これらの結果については測定結果の解析中であり、順次まとめ次第、成果発表を行っていく予定である。

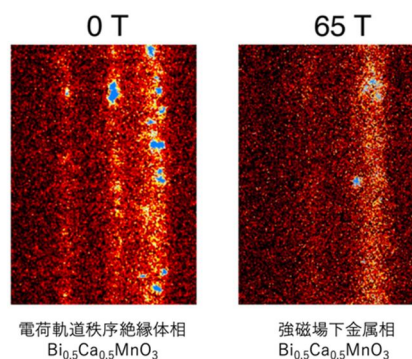


図 3 .MPCCD で検出された X 線回折パターン(横軸が回折角度に相当する)。 [3]

- [1] N. Miura et al, J. Low Temp. Phys. **133**, 139, (2003).
- [2] A. Ikeda et al, Phys. Rev. Research **2**, 043175 (2020).
- [3] A. Ikeda et al., Appl. Phys. Lett. **120**, 142403 (2022).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Akihiko Ikeda, Yasuhiro H. Matsuda, Xuguang Zhou, Shiyue Peng, Yuto Ishii, Takeshi Yajima, Yuya Kubota, Ichiro Inoue, Yuichi Inubushi, Kensuke Tono, and Makina Yabashi	4. 巻 120
2. 論文標題 Generating 77 T using a portable pulse magnet for single-shot quantum beam experiments	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physcs Letters	6. 最初と最後の頁 142403 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0088134	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 Ikeda Akihiko, Matsuda Yasuhiro H., Zhou Xuguang, Yajima Takeshi, Kubota Yuya, Tono Kensuke, Yabashi Makina	4. 巻 2
2. 論文標題 Single shot x-ray diffractometry in SACLA with pulsed magnetic fields up to 16 T	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 043175 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.2.043175	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 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 池田暁彦, 松田康弘
2. 発表標題 Generation of 70 T using a portable single turn coil system PINK-01 for novel quantum beam experiments
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田暁彦, 石井裕人, 周旭光, 彭詩悦, 松田康弘, 矢島健, 久保田雄也, 井上伊知郎, 犬伏雄一, 登野健介, 矢橋牧名
2. 発表標題 Field-induced melting of charge ordered phase in $Bi_{1-x}Ca_xMnO_3$ ($x = 0.4, 0.5$): A single shot XRD study at high magnetic fields up to 70 T
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田暁彦, 石井裕人, 矢島健, 周旭光, 彭詩悦, 松田康弘, 久保田雄也, 井上伊知郎, 犬伏雄一, 登野健介, 矢橋牧名, 内藤智之
2. 発表標題 励起子絶縁体候補物質Pr0.7Ca0.3CoO3の65テスラ磁場誘起相転移におけるX線格子変形観察
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022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
研究分担者	池田 暁彦 (Ikeda Akihiko) (90707663)	電気通信大学・大学院情報理工学研究所・助教 (12612)	
研究分担者	久保田 雄也 (Kubota Yuya) (30805510)	国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学研究センター・基礎科学特別研究員 (82401)	

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
---------	---------