

平成 31 年 4 月 1 日

海外特別研究員最終報告書

独立行政法人 日本学術振興会 理事長 殿

採用年度 H29

受付番号 14

氏 名

野村 肇宏

(氏名は必ず自署すること)

海外特別研究員としての派遣期間を終了しましたので、下記のとおり報告いたします。

なお、下記及び別紙記載の内容については相違ありません。

記

1. 用務地（派遣先国名）用務地： ドレスデン （国名： ドイツ ）
2. 研究課題名（和文）※研究課題名は申請時のものと違わないように記載すること。
液体酸素における磁場誘起液－液相転移の探索と凝縮酸素の統一的理解
3. 派遣期間： 平成 29 年 4 月 1 日 ～ 平成 31 年 3 月 31 日
4. 受入機関名及び部局名
Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR), HLD-EMFL
5. 所期の目的の遂行状況及び成果…書式任意 **書式任意 (A4 判相当 3 ページ以上、英語で記入も可)**
(研究・調査実施状況及びその成果の発表・関係学会への参加状況等)
(注)「6. 研究発表」以降については様式 10－別紙 1～4 に記入の上、併せて提出すること。

海外で自由度の高い研究を行うために、現地の言語を話し、同僚の信頼を得ることは極めて重要である。特に研究者以外の現地スタッフ（技術者や事務）はドイツ語ができて初めて親身になって協力してくれることが多い。私は 2 年間の任期中に日常会話レベルのドイツ語（B1～B2 レベル）を習得し、ドイツの文化や価値観に触れながら多くの貴重な経験を得ることができた。さらに、ドイツ語と英語は共通点が多いため、英語のスキルも大きく向上させることができた。また、共同利用施設のユーザーサポートも部分的に担当し、世界中の多くの研究者（ドイツ、フランス、スイス、チェコ、ロシア、スペイン、アメリカ、日本）との共同研究ができた。

HZDR は外部ユーザー受入れを目的とした共同利用施設であり、装置の使用権限が厳しく管理されている。従って、施設内で自由に研究を行うために研究遂行能力に関する信頼を得ることも大変重要である。自らの研究を行う傍らで、施設のユーザーサポートに向けた下記の 3 点に関して測定技術開発を行った。

開発 1) デジタルホモダイン検波による超音波測定の改良

従来、超音波測定はアナログホモダイン方式により、 $\sin \cos$ に対応する参照波をかけ合わせることで超音波エコーの位相および強度情報を得る。ここで問題となるのがアナログ回路における参照波の不完全性である。 $\sin \cos$ 参照波の位相および強度が理想的でない場合、初期位相に依存した歪んだ測定結果が得られてしまう。一方でデジタルホモダイン方式では生信号を全て保存し、数値解析の段階で理想的な参照波を生成できるため、解析に由来する歪みや付加的なノイズを除外できる。

デジタルホモダイン方式における最大の問題は数 GB/秒にもなる膨大なデータサイズと、煩雑な数値解析である。私は最新のデジタイザー（LeCroy, HD08000）を用い、Python プログラムによる数値計算アルゴリズムと組み合わせることでこれらを解決することに成功した。本開発により、パルス磁場中超音波測定の精度および確度は 1 桁程度向上した。

開発 2) パルス磁場下における磁気熱量効果と音速の同時測定

磁気熱量効果は断熱条件下で磁場を変化させた際、試料の温度が変化する現象である。近年、パルス磁場と組み合わせて行うことができる熱測定として盛んに研究が行われている。磁気熱量効果は熱力学物性として興味深い現象ではあるが、パルス磁場ユーザーにとっては等温測定を妨げる要因として致命的な問題である。例えば、磁気熱量効果を無視して初期温度を用いて磁場－温度相図を作成した場合、誤った相図が得られてしまう可能性がある。特に、超音波や磁歪といった格子物性測定には比較的大きな結晶を用いるため、パルス磁場中で等温条件を実現することは不可能である。

パルス磁場中で信頼の足る格子物性測定を行うためには、パルス磁場印加中の試料温度を常に測定しておく必要がある。私は日本での経験 (TN *et al.*, JPSJ 85, 094601 (2016), TN *et al.*, PRB 95, 104420 (2017)) を活かして、パルス磁場中超音波測定と組み合わせて磁場中の試料温度を測定することに成功した。また、断熱条件下における磁気熱量効果測定の測定にも成功し、こちらも外部ユーザーの募集を開始することが決まった。ドレスデン強磁場施設ユーザーの裾野を広げたという点で、ディレクターの J. Wosnitza から高く評価された。2018 年のヨーロッパ強磁場ユーザーミーティングでは招待講演として本内容を発表した。また 2019 年 2 月にプラハのカレル大学でも依頼セミナーを行った。

開発 3) 石英振動子を用いた、パルス磁場中における粘性測定の開発

粘性は液体－ガラス相転移のダイナミクスを反映する物理量として重要である。また、超音波の減衰係数は粘性とほぼ線形な関係があるため、両者を測定し比較することは実験結果を物理的に解釈する上で非常に有意義である。私は液体酸素の異常な音波減衰（次節で述べる）を解釈する新たな糸口として、粘性のパルス強磁場下測定を開発し、液体酸素の測定に応用した。

測定には市販の石英振動子チップを用いる。チップのハーメチックシールを取り除くと石英の薄片が得られる。石英振動子の共鳴周波数は石英の音速と厚みに依存する。ここで、石英振動子を液体中に置くと、液体が薄片を覆い実効的に膜厚が大きくなるため、共鳴周波数は低周波側にシフトする。周波数の変化量は粘性に依存するため、共鳴周波数をパルス磁場中で測定すれば、粘性の情報へと焼き直すことができる。

ミリ秒のパルス磁場下で共鳴周波数を高速測定するために、リングダウンの手法を用いた。石英振動子を共鳴周波数の RF 電場で振動励起すると、RF 信号を切った後も減衰しながら共鳴振動が持続する。この共鳴振動はオシロスコープでモニタリングできるため、直接共鳴周波数の情報が得られる。パルス強磁場下で組み合わせ可能な新たな測定手法として、論文は現在投稿中である。

次に自ら主導した研究プロジェクトに関して述べる。

1) 液体酸素の磁場誘起液液相転移の探索

初年度ではパルス磁場下で液体酸素の超音波測定技術を開発し、60 T までの磁場－温度依存性を測定することに成功した。加えて 2 年目に 90 T までの液体酸素の超音波測定を行うことに成功した。通常、80 T 以上の測定は厳しく管理されているが、研究所のディレクター (J. Wosnitza) 及び技術者達と議論して、パルスマグネットのテストと同時に測定してもらえるよう説得した。

液体酸素の超音波音速の磁場－温度依存性を図 1 に示す。液体酸素の音速は磁場印加によって単調減少した。相対変化量の温度依存性および周波数依存性は測定誤差範囲内で観測されなかった。90 T までの磁場依存性を図 2 に示す。この磁場領域においても液体酸素の音速は単調減少を示した。ここで観測された音速の減少は磁場による体積変化だけでは説明できず、液体酸素の局所構造が不安定化していることを示唆している。

最も興味深いのは、液体酸素の超音波減衰係数が磁場によって漸近的に増大している点である。普通、単純液体において規格化された音波減衰係数 ($10^{17} \alpha / \rho$) は 10 程度になることが知られており、観測値の 200 は異常と言える。音速の減少および音波減衰係数の増大は相転移の前駆減少を示唆しており、より高磁場下において目的の液体－液体相転移が存在する可能性が高い。現在、金沢大学の小田教授らと協力して、理論計算の観点から相転移磁場の推測、および相転移の微視的機構について考察を進めている。

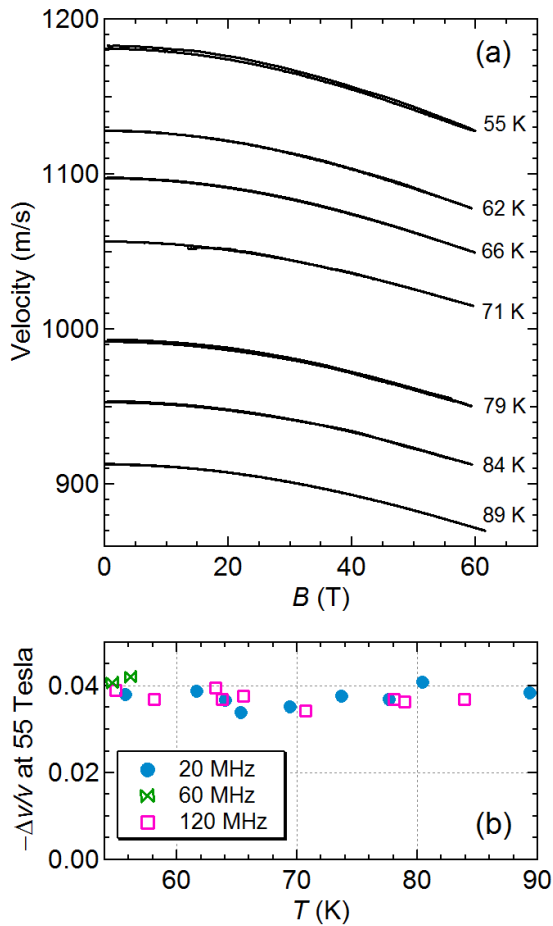


図 1 : (a) 各温度における液体酸素の音速の磁場依存性。(b) 55 T における音速の相対変化の温度依存性および周波数依存性。

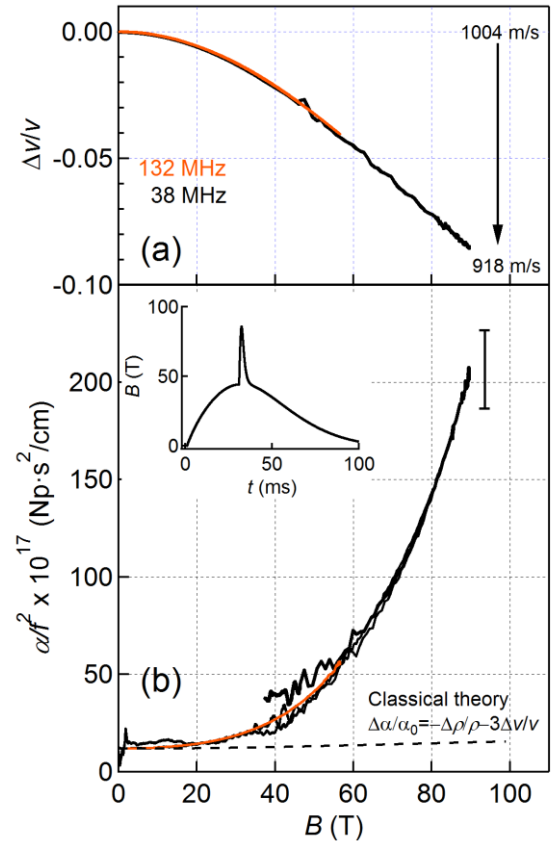


図 2 : 77 K における 90 T までの液体酸素超音波測定の結果。(a) 音速の磁場依存性。(b) 規格化された音波減衰係数の磁場依存性。点線は体積膨張を考慮した古典理論から得られる値。インセットは磁場波形。

2) フォノン磁気カイラル効果の探索

超音波を用いた磁性体研究の一環として、ドレスデンでフォノン磁気カイラル効果の観測に取り組んだ。磁気カイラル効果はカイラル物質において磁場が印加された際に (mirror and time-reversal symmetry breakings) 期待される非相反物性である。光物性の場合、屈折率および吸収/発光スペクトルが磁場に対して平行と反平行で異なることが期待される。先行研究でフォトン、電子、マグノンの輸送現象では既に磁気カイラル効果の報告があったのに対し、フォノン物性に関して報告はなかった。フォノンは音波のみならず熱キャリアとしても重要な準粒子であることから、フォニクス等の応用的観点からも、その非相反物性には大きな関心がある。本研究では超音波音速測定からこの問題に取り組んだ。

カイラルフェリ磁性体 Cu_2OSeO_3 における、超音波音速の磁場、音波伝搬方向 ($\pm k$)、結晶カイラリティ依存性を図 3(a-b) にまとめる。コニカルからコリニアへの磁気相転移に伴って、音速の極小が観測されている。注意深く見ると $+k$ と $-k$ で極小値が異なることが分かる。この大小関係は磁場を反転させると入れ替わる。また結晶カイラリティを変えるとすべての大小関係は反転する。これらの選択則は磁気カイラル効果から期待されるものと合致する。これはフォノン磁気カイラル効果の初の実験的観測である。

興味深いことに磁気カイラル効果は相転移磁場で最大を取り、また超音波周波数が高くなるほど顕著になる (図 3(c-e))。これらを説明する理論として、カイラルなスピン-格子結合に由来するマグノン-フォノン混成機構を提案した (図 4)。カイラル磁性体におけるマグノンバンドはジャロシンスキー-守谷 (DM) 相互作用のため、 $+k$ と $-k$ で非対称になっている。磁気相転移の際、マグノンのソフトモードが Γ 点付近でフォノンと混成するために、フォノンの分散関係も非相対的性質を得る。

論文は Phys. Re. Lett. に採択され、Editor's Suggestion にも選ばれた。

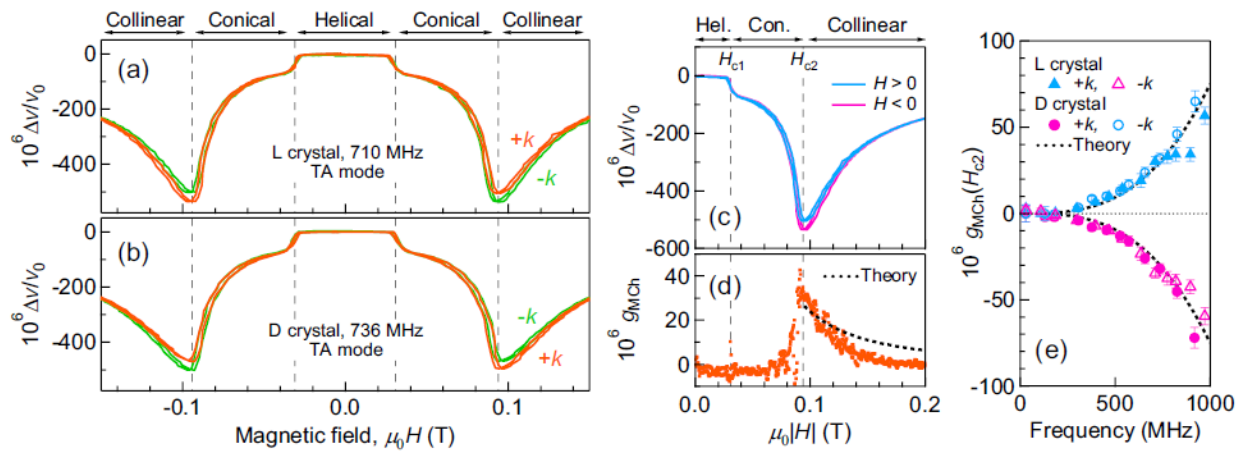


図 3: Cu_2OSeO_3 の超音波音速の磁場依存性と磁気カイラル効果の検証。(a-b) 横波 (transverse acoustic, TA) の測定結果。相転移磁場 (0.1 T) で顕著な非相反物性 ($+k \neq -k$) が観測されている。非相反の関係は磁場方向、音波伝搬方向、結晶カイラリティすべての反転に対して奇である。(c-d) L 結晶 710 MHz の測定結果と、 $H > 0$ と $H < 0$ の測定結果の差 (g_{MCh})。 (e) 非相反強度の超音波周波数依存性。

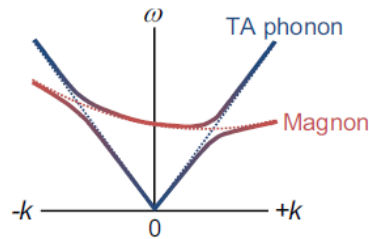


図 4: 非対称なマグノンバンドとの混成で歪んだ TA フォノンバンド。