

I RFe₂As₂ 化合物の試料育成と物性研究

Single Crystalline Preparation and Study of Magnetism in RFe₂As₂ Compounds

池田修悟・小林寿夫
Ikeda, S. and Kobayashi, H.

近年 FeAs を含む遷移金属化合物群が、加圧や元素置換により超伝導転移を示すことが発見された。我々は、フลักス法による化合物育成環境を整えることで、FeAs 系化合物の中で AFe₂As₂ (A : Ca, Sr, Eu) の単結晶を育成し、圧力・磁場・低温の多重極限環境下において AFe₂As₂ の磁性・格子振動と超伝導の関係を研究を行っている。

AFe₂As₂ (A : Ca, Sr) 単結晶を用いた詳細な高圧力下磁化、⁵⁷Fe メスバウアー分光測定の結果から、新たな圧力誘起相転移の可能性を指摘した。この相転移は構造変態を伴わず、Fe の電子状態の変化が関係していることを実験的に示した。さらに SrFe₂As₂ に関しては、圧力下 ⁵⁷Fe 核共鳴前方散乱実験から内部磁場の圧力依存性を調べた。その結果、超伝導が発現する圧力領域において、内部磁場が観測された。超伝導と共存する内部磁場の大きさは、常圧の約半分程度であり、その方向は常圧とは異なっている。これは、SrFe₂As₂ が示す超伝導の発現機構に、常圧とは異なる磁性が寄与していることを示している。一方、EuFe₂As₂ の圧力下 ⁵⁷Fe 核共鳴非弾性散乱の結果から、AFe₂As₂ (A : Ca, Sr) での圧力誘起相転移にともない光学フォノンモードの圧力依存性に異常があることを発見した。この異常が、Fe の電子状態変化に強く関わっていることが示唆された。

II 価数揺動希土類化合物の物性研究

Study of Valence Fluctuating Phenomena in Rare-Earth Compounds

池田修悟・小林寿夫
Ikeda, S. and Kobayashi, H.

他研究機関と協力して、重い電子系 Yb 化合物において初めて超伝導状態が観測された β-YbAlB₄ ($T_c = 80$ mK) とその類似の化合物である α-YbAlB₄ の ¹⁷⁴Yb 放射光メスバウアー分光、X 線吸収・発光分光及び ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定の研究を展開した。⁵⁷Fe メスバウアー分光測定温度依存性から α-Yb(Al,Fe)B₄ での磁気秩序にともなう Fe サイトでの内部磁場を観測した。その結果、Yb イオンの磁気モーメントによる磁気構造が単

純でないことが分かった。 ^{174}Yb 放射光メスバウアー分光測定から、Yb イオンの価数揺動時間を実験的に求めることに初めて成功した。

高圧力下 X 線吸収・発光分光測定及び構造解析の結果、 $\beta\text{-YbAlB}_4$ の圧力下電気伝導測定で観測されている異常に Yb イオンの価数変化が関係していることを示した。

III 3d 遷移金属化合物の物性研究

Study of Magnetism in 3d Transition Metal Compounds

池田修悟・小林寿夫
Ikeda, S. and Kobayashi, H.

他研究機関と協力して、科学技術振興機構・産学共創基礎基盤研究に採択された M 型フェライト化合物に関する実験研究を開始した。M 型フェライト化合物に関しては、既に基礎的、実用的な研究が多くの実験手法を用いて行われている。しかし、全ての実験結果が矛盾なく説明されているわけではない。本年度、Fe サイトを Ni で置換した M 型フェライト化合物の ^{57}Fe メスバウアー分光の温度依存性測定を行った。解析から得られた、超微細相互作用定数の温度依存性や Ni 置換依存性などが Co 置換 M 型フェライト化合物とは異なる結果となった。特に、Ni 置換にともなう微細相互作用定数間の相関に対する異なる Fe サイト依存性は、実用磁石材料としての M 型フェライト化合物の性能向上の指針の一つとなる結果である。

IV 希土類・ウラン化合物の磁性の研究

Study of Structure and Magnetism in Rare Earth and Uranium Compounds

池田修悟・小林寿夫
Ikeda, S. and Kobayashi, H.

正方晶 EuNi_2Ge_2 は、Eu イオンの価数が 2 価であるため、 $7\mu_{\text{B}}$ の大きな磁気モーメントを持ち、30 K で反強磁性に磁気秩序する。約 2 GPa の静水圧下では、Eu イオンの価数が 2 価から非磁性の 3 価に価数転移を示すことが報告されている。我々は、過去に報告より純度の良い単結晶をブリッジマン法で育成し、圧力磁化測定を行った。その結果、0.5GPa 近傍から既に Eu イオンの価数が変化しており、それに伴い反強磁性の磁気構造が変化していることが明らかとなった。

反強磁性体 EuNiIn_4 は、 b 軸方向の格子定数が他の軸に比べて 2~4 倍程度大きい斜方晶の結晶構造を持つ。過去の ^{151}Eu メスバウアー分光測定から、ネール温度以上から既に

内部磁場が観測されているため、EuNiIn₄ の磁性は単純ではないことが期待される。そこで我々は、インジウムを媒体としたフラックス法を用いて単結晶を育成し、磁気異方性を含めた EuNiIn₄ の磁性を詳細に調べた。その結果 EuNiIn₄ は、15 K と 14 K に逐次転移をもち、14 K 以下では b 軸方向が磁化容易軸であるイジング的な反強磁性体であることが分かった。低温 2 K での磁化曲線は、5 テスラまでに 4 つの多段の異常を示すことも明らかとなった。

他研究機関と協力して、NdFe₂Al₁₀ の ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を行った。その結果、反強磁性秩序温度より高温で長距離磁気秩序の前駆現象とみられる メスバウアー吸収スペクトルに異常を観測した。

V (磁気) コンプトンプロファイル測定による電子状態の研究

Study of electronic states in Magnetic Material by using (magnetic) Compton profile measurement

小泉昭久
Koizumi, A.

他研究機関・他研究室との協力のもとに、Ce系およびU系の重い電子系化合物 (CeRu₂Si₂, URu₂Si₂) を対象にして、高分解能コンプトンプロファイルの角度依存測定を行い、その二次元再構成解析から運動量密度分布及び電子占有数密度を求め、電子状態の温度変化についての研究を展開した。特に、URu₂Si₂ においては、隠れた秩序転移に伴う電子状態の変化、f電子の遍歴・局在性の変化を観測している。また、磁気コンプトンプロファイルがスピン磁気モーメントの大きさのみに比例するという特徴を利用して、放射光を用いたスピン磁気ヒステリシス測定の開発を行なった。

VI レーザー逆コンプトン散乱による円偏光高エネルギーγ線の発生と磁気コンプトン散乱測定への応用

Generation of circularly polarized high energy γ -ray by laser-Compton scattering and its application to magnetic Compton scattering measurement

小泉昭久
Koizumi, A.

ニュースパルの BL1 において、電子ビームとレーザー光との逆コンプトン散乱による円偏光高エネルギーγ線の生成とその応用実験についての研究を行っている。位相子を用

いてレーザー光の円偏光の向きを切り替えることによって、発生する γ 線の円偏光を制御することができる。これを利用して、偏光切り替えによる磁気コンプトン散乱測定を行ない、磁気コンプトン・プロファイルの積分値からスピン磁気モーメントの磁場変化を観測している。

発表論文 List of Publications

- I-1** 池田修悟・張小威 (KEK)・亀掛川卓美 (KEK)・小林寿夫:「 AFe_2As_2 (A:Eu 及び Sr) と A サイト置換系の磁性と超伝導 I」日本物理学会 2012 年秋季大会 (横浜国立大 2012 年 9 月)
- I-2** 土屋優・池田修悟・小林寿夫:「 CaFe_4As_3 の ^{57}Fe メスバウアー分光測定と圧力下磁化測定」日本物理学会 2012 年秋季大会 (横浜国立大 2012 年 9 月)
- I-3** 小林寿夫:「放射光を用いた高圧力下核共鳴散乱・メスバウアー分光」第 53 回討論会 (大阪大学会館 2012 年 11 月) (依頼講演)
- I-4** 福田竜生 (JAEA)・小林寿夫・池田修悟・土屋優・筒井智嗣 (JASRI)・Alfred Q.A. Baron(理研)・中村博樹 (JAEA)・町田昌彦 (JAEA):「 SrFe_2As_2 のフォノン測定」日本物理学会第 68 回年次大会 (広島大学 2013 年 3 月)
- I-5** 池田修悟・土屋優・阪口友唯・張小威 (KEK)・依田芳卓 (JASRI)・小林寿夫:「 ^{57}Fe 核共鳴前方散乱による SrFe_2As_2 の電子状態研究」日本物理学会第 68 回年次大会 (広島大学 2013 年 3 月)
- I-6** S. Ikeda, and H. Kobayashi: Superconductivity of EuFe_2As_2 under high pressure. The 19th International Conference on Magnetism (Busan Korea 2012 年 7 月)
- I-7** H. Kobayashi: ^{57}Fe nuclear resonant inelastic scattering on AFe_2As_2 (A: Sr and Eu). JAEA Synchrotron Radiation Research Symposium (Harima Japan 2013 年 3 月) (招待講演)
- I-8** S. Ikeda, K. Yoshida, and H. Kobayashi: Electronic property of SrFe_2As_2 under high pressure studied by ^{57}Fe Mössbauer spectroscopy. *Hyperfine Interact.* **208** (2012) 7-11
- I-9** H. Kobayashi, S. Ikeda, Y. Sakaguchi, Y. Yoda(JASRI), H. Nakakura(JAEA), M. Machida(JAEA): Observation of a pressure-induced As-As hybridization associated with a change in the electronic state of Fe in the tetragonal phase of EuFe_2As_2 . *J. Phys.: Condens. Matter* **25** (2013) 022201 FAST TRACK COMMUNICATION.
- II-1** 阪口友唯・池田修悟・久我健太郎 (東大)・曾根啓太 (東大)・中辻知 (東大)・小林寿夫:「価数揺動物質 $\alpha\text{-Yb}(\text{Al}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{B}_4$ の圧力下物性測定およびその研究」日本物理学会 2012 年秋季大会 (横浜国立大 2012 年 9 月)

- II-2** 阪口友唯・池田修悟・久我健太郎(東大)・曾根啓太(東大)・中辻知(東大)・平尾直久(JASRI)・大石泰生(JASRI)・小林寿夫: 「価数揺動物質 $\text{Yb}(\text{Al}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{B}_4$ の高圧力下構造解析」第53回討論会(大阪大学会館 2012年11月)
- II-3** 阪口友唯: 「価数揺動物質 $\text{Yb}(\text{Al}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{B}_4$ の物性測定とその研究」多重極限物質科学研究センター研究発表会(兵庫県立大 2012年12月)
- II-4** 小林寿夫: 「 ^{174}Yb 放射光メスbauer一分法による YbAlB_4 の研究」新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」第4回研究会(東工大 2013年1月)
- II-5** 小林寿夫: 「Valence Fluctuation probed by Mössbauer Spectroscopy」ISSP ワークショップ(東京大学物性研究所 2013年2月)
- II-6** 阪口友唯・池田修悟・久我健太郎(東大)・曾根啓太(東大)・中辻知(東大)・平尾直久(JASRI)・大石泰生(JASRI)・河村直己(JASRI)・水牧仁一郎(JASRI)・小林寿夫: 「価数揺動物質 $\beta\text{-Yb}(\text{Al}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{B}_4$ の圧力誘起 Yb イオンの価数変化」日本物理学会第68回年次大会(広島大学 2013年3月)
- II-7** 阪口友唯・池田修悟・増田亮(京大)・小林康浩(京大)・瀬戸誠(京大)・依田芳卓(JASRI)・久我健太郎(東大)・曾根啓太(東大)・中辻知(東大)・小林寿夫: 「価数揺動物質 $\text{Yb}(\text{Al}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{B}_4$ の ^{174}Yb 放射光メスbauer一分法による研究」日本物理学会第68回年次大会(広島大学 2013年3月)
- II-8** Y. Sakaguchi, S. Ikeda, K. Kuga(東大), K. Sone(東大), S. Nakatsuji(東大), and H. Kobayashi: Mössbauer spectroscopy of Fe doped valence fluctuating $\alpha\text{-YbAlB}_4$. The 19th International Conference on Magnetism (Busan Korea 2012年7月)
- II-9** H. Kobayashi, Y. Yoda(JASRI), and A. Ochiai(東北大): Electronic states of Eu_4As_3 under pressure. The 19th International Conference on Magnetism (Busan Korea 2012年7月)
- IV-1** 田中佑季・池田修悟・本間佳哉(東北大)・小林寿夫: 「 EuTIn_4 の多段メタ転移」日本物理学会 2012年秋季大会(横浜国立大 2012年9月)
- IV-2** 川端一史・窪真志・池田修悟・小林寿夫: 「単結晶 RNi_2Ge_2 (R=Eu,Gd) における圧力下磁気相図 II」日本物理学会 2012年秋季大会(横浜国立大 2012年9月)
- IV-3** 田中佑季: 「 EuTIn_4 (T:Ni,Pd) の強磁場磁化過程」多重極限物質科学研究センター研究発表会(兵庫県立大 2012年12月)
- IV-4** 安田明子・阪口友唯・谷田博司(広島大)・世良正文(広島大)・池田修悟・小林寿夫: 「 $\text{NdFe}_2\text{Al}_{10}$ の ^{57}Fe メスbauer一分光測定」日本物理学会第68回年次大会(広島大学 2013年3月)
- IV-5** S. Tsutsui(JASRI), H. Kobayashi, Y. Yoda(JASRI), H. Sugawara(神戸大), C. Sekine(室蘭工大), T. Namiki(室蘭工大), I. Shirotni(室蘭工大), H. Sato(首都大): ^{149}Sm and ^{57}Fe nuclear resonant inelastic scattering of filled Skutterudites $\text{SmFe}_4\text{X}_{12}$ (X: Pnictogen). *Hyperfine Interact.* **206** (2012) 67-70.

- V-1** 小泉昭久・川端一史・土屋優・本山岳・山口明・住山昭彦・小田祺景・伊藤真義 (JASRI)・櫻井吉晴 (JASRI)・久保康則 (日大)・山村朝雄 (東北大)・佐藤伊佐務 (東北大) : 「コンプトン散乱実験で観る URu₂Si₂ における 5*f* 電子の遍歴・局在性の変化」日本物理学会 2012 年秋季大会 (横浜国立大 2012 年 9 月)
- V-2** 小泉昭久・坂田由紀・井上遼一・安田明子・狩野明子・本山岳・山口明・住山昭彦・小田祺景・伊藤真義 (JASRI)・櫻井吉晴 (JASRI)・久保康則 (日大)・山村朝雄 (東北大)・佐藤伊佐務 (東北大) : 「コンプトン散乱二次元再構成実験で探る URu₂Si₂ における 5*f* 電子状態の温度変化」日本物理学会第 68 回年次大会 (広島大学 2013 年 3 月)
- V-3** A. Koizumi, G. Motoyama, Y. Kubo(日大), M. Ito(JASRI), and Y. Sakurai(JASRI): Study of electronic states in URu₂Si₂ by high resolution Compton scattering experiment. The 4th International Workshop on the Dual Nature of *f*-Electrons (Himeji 2012 年 7 月)
- V-4** A. Koizumi, G. Motoyama, Y. Kubo(日大), M. Ito(JASRI), and Y. Sakurai(JASRI): Electronic structure of heavy fermion compound URu₂Si₂ studied by high-resolution Compton scattering experiment. The Sagamore XVII - IUCr Commission on Charge, Spin and Momentum Densities (Hokkaido 2012 年 7 月)
- V-5** 小泉昭久 : 「コンプトン散乱二次元再構成実験による重い電子系化合物 URu₂Si₂ の電子状態の研究」フロンティア機能物質創製センターシンポジウム (姫路商工会議所 2012 年 12 月)
- V-6** M. Ito(JASRI), A. Koizumi, and Y. Sakurai(JASRI) : Spin and orbital magnetization loops obtained using magnetic Compton scattering. Appl. Phys. Lett. **102** (2013) 082403 1-3.

大学院物質理学研究科

博士前期課程

阪口友唯 重い電子系化合物 YbAlB₄ の圧力および Fe 置換効果による電子状態の変化に関する研究

田中佑季 EuTIn₄ (T: Ni, Pd) の純良単結晶育成と強磁場磁化過程

科学研究費補助金等

1 科学技術振興機構 産学共創基礎基盤研究

研究課題 鉄系酸化物磁石の飛躍的高機能化を目指した微視的評価技術の開発と保磁力機構の解明

研究グループ代表 小林寿夫

- 2 文部科学省科学研究費補助金 新学術領域研究 公募研究
研究課題 多重極限下放射光メスbauer分光による Yb 重い電子系の価数揺動と
超伝導・量子転移
研究代表者 小林寿夫

- 3 文部科学省科学研究費補助金 基盤研究 (C)
研究課題 コンプトン散乱測定を用いたウラン化合物における 5*f* 電子状態の解明
研究代表者 小泉昭久

- 4 兵庫県立大学特別教育研究助成金 一般研究
研究課題 元素置換及び圧力による FeAs 系化合物の磁性と超伝導の研究
研究代表者 池田修悟