

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、フラック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。

単結晶 EuFe₂As₂ による ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定及び ¹⁵¹Eu 核共鳴前方散乱実験を行った結果、Fe サイト及び Eu²⁺ サイトの磁気モーメントは、*c* 面内を向いていることが分かった。さらに、超伝導が出現する温度・圧力領域において ⁵⁷Fe 及び ¹⁵¹Eu 核共鳴前方散乱実験を行った結果、Fe サイト及び Eu サイトに内部磁場が存在することが明らかとなった。この結果は、Fe サイト及び Eu サイトの磁性と超伝導が共存していることを示唆する結果である。また超伝導と共存している Eu サイトの反強磁性秩序は、僅か 30 kOe 程度の磁場で容易に壊れ、外部磁場の方向に磁気モーメントを揃えることが明らかとなった。さらに、⁵⁷Fe 核共鳴非弾性散乱スペクトルの圧力依存性から、EuFe₂As₂ においては 2.5 GPa 付近から光学フォノン・モード・エネルギーの圧力依存性に変化が現れることを発見した。他機関の理論研究者と共同研究を行うことで、この光学フォノン・モード・エネルギーの圧力依存性の変化は、正方晶構造内の As 原子位置変数が関わっていることを指摘した。さらに、高圧力下 ⁵⁷Fe メスバウアー分光及び核共鳴前方散乱の結果から、As 原子位置変数の変化と Fe 電子状態の変化が関係していることも指摘した。

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。

II 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。温度依存性など Co 置換 M 型フェライト化合物とは異なる結果が得られた。この結果は、实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。

他研究機関と協力して、 γ -カーバイド型構造を持つ遷移金属化合物 $\text{Fe}_3\text{Mo}_3\text{N}$, $\text{Fe}_6\text{W}_6\text{N}$ に関して ^{57}Fe メスバウアー分光測定を行った。その結果、4.2K まで内部磁場による原子核レベルの分裂が観測されず、磁気秩序が存在しないことが分かった。 $\text{Fe}_3\text{Mo}_3\text{N}$ は、共同研究者による巨視的物性測定から金属強磁性発現寸前の特異な基底状態を持つことが報告されているが、 ^{57}Fe メスバウアー分光測定による微視的な視点からも、その結果が支持された。また Fe サイトを Co で置換した $(\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_3\text{Mo}_3\text{N}$ に対しても ^{57}Fe メスバウアー分光測定を行った。その結果、僅か 5% 程度の Co 置換で内部磁場が発生しており、磁気秩序の存在が明らかとなった。一方、 $\text{Fe}_3\text{Mo}_3\text{N}$ と同様の γ -カーバイド型構造を持つ $\text{Fe}_6\text{W}_6\text{C}$ は、20K で反強磁性転移を示すことが、磁化率測定で明らかとなっている。我々は、反強磁性転移以下で $\text{Fe}_6\text{W}_6\text{C}$ のメスバウアー分光測定を行った結果、内部磁場は僅か数 kOe 以下であり、Fe サイトの磁気モーメントが非常に小さいことが分かった。この結果は、反強磁性転移近傍で比熱の異常が小さい結果と矛盾しない。

III (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・小林寿夫

Koizumi, A. and Kobayashi, H.

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 (CeRu_2Si_2 , URu_2Si_2) 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、 f 電子の遍歴・局在性の変化についての研究を展開した。特に、 URu_2Si_2 においては、隠れた秩序転移に伴う電子状態の変化を観測することに成功した。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。

他研究機関と協力し、ラーベス化合物 ErCo_2 中における Co 磁気モーメントの安定性の研究を高圧力下磁気コンプトン散乱測定により行った。

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
under High Pressure

池田修悟・小林寿夫

Ikeda, S. and Kobayashi, H.

ウランカルコゲナイド化合物の金属強磁性体 UTeS と常磁性半導体 β -US₂ は、同じ結晶構造を持ちながら、磁性と伝導は大きくことなる。この常磁性半導体 β -US₂ に対して、圧力下電気抵抗測定を行った。その結果、折れ曲がりの異常が現れ、圧力の増加に伴い電気伝導が半導体から金属に移り変わることが分かった。特に、最高圧力 8 GPa での β -US₂ の電気伝導は、UTeS の伝導に近づいている。共同研究者による圧力磁化測定では、 β -US₂ の電気抵抗に現れた折れ曲がりの異常は、強磁性転移であることが明らかにされた。つまり常磁性半導体 β -US₂ は、圧力により金属強磁性体 UTeS の状態に近づくことが分かる。一方で、常圧の β -US₂ は、強磁性転移寸前の状態であり、ウランの 5f 電子は、磁気ポーラロンを形成していることなども明らかとなった。また同じ結晶構造を持つ強磁性半導体 USeS の磁気抵抗測定も行い、磁場により桁で変化する大きな負の磁気抵抗が β -US₂ と同様に観測された。

正方晶 EuNi₂Ge₂ は、Eu イオンの価数が 2 価であるため、 $7\mu_B$ の大きな磁気モーメントを持ち、30K で反強磁性に磁気秩序する。約 2GPa 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。

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) の ¹⁷⁴Yb 放射光メスバウアー分光及び 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。

V 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.

ニュースバルの 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・吉田和樹・張 小威 (KEK)・依田芳卓 (JASRI)・小林寿夫 : 「複合極限環境下 ^{151}Eu 核共鳴前方散乱による EuFe_2As_2 の電子状態研究 III」日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山大 2011 年 9 月)
- I-2 吉田和樹・池田修悟・依田芳卓 (JASRI)・張 小威 (KEK)・小林寿夫 : 「 ^{57}Fe 核共鳴前方散乱法による単結晶 SrFe_2As_2 の複合極限下物性」日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山大 2011 年 9 月)
- I-3 阪口友唯・久世哲嗣・池田修悟・小林寿夫 : 「単結晶 CaFe_2As_2 の温度-圧力相図」日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山大 2011 年 9 月)
- I-4 本間佳哉 (東北大)・池田修悟・小林寿夫・那須三郎 (JAEA)・芳賀芳範 (JAEA)・四竈樹男 (東北大) : 「 EuFe_2As_2 単結晶の ^{151}Eu メスバウアー分光」日本物理学会 2012 年春季大会 (関西学院大 2012 年 3 月)
- I-5 池田修悟・吉田和樹・張 小威 (KEK)・依田芳卓 (JASRI)・小林寿夫 : 「複合極限環境下 ^{151}Eu 及び ^{57}Fe 核共鳴前方散乱による AFe_2As_2 ($\text{A} : \text{Eu}, \text{Sr}$) の電子状態研究」日本物理学会 2012 年春季大会 (関西学院大 2012 年 3 月)
- I-6 池田修悟 : 「複合極限環境下 ^{151}Eu 及び ^{57}Fe 核共鳴前方散乱による AFe_2As_2 ($\text{A} : \text{Eu}, \text{Sr}$) の電子状態研究」遍歴電子系研究会「金属磁性体の構造とスピンの揺らぎ」(姫路 2011 年 11 月)
- I-7 小林寿夫 : 「 AFe_2As_2 ($\text{A}=\text{Sr}$ and Eu) の ^{57}Fe 核共鳴非弾性散乱」量子ビーム JST-TRIP 三機関連携合同研究会「超伝導と磁性とフォノン」(箱根 2012 年 1 月)
- I-8 S. Ikeda, K. Yoshida, H. Kobayashi: Electronic properties of AFe_2As_2 ($\text{A} : \text{Sr}$ and Eu) under high pressure studied by ^{57}Fe Mössbauer spectroscopy. The 31th International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect (Kobe, Japan 2011 年 9 月)
- I-9 Y. Homma(東北大), S. Ikeda, H. Kobayashi, S. Nasu(JAEA), Y. Haga(JAEA), T. Shikama(東北大): ^{151}Eu Mössbauer spectroscopy of EuFe_2As_2 single crystal. The 31th International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect (Kobe, Japan 2011 年 9 月)

- I-10** H. Kobayashi, Y. Sakaguchi, K. Yoshida, S. Ikeda, Y. Yoda(JASRI): ^{57}Fe nuclear resonant scattering of AFe_2As_2 (A: Ca, Sr, and Eu). The 31th International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect (Kobe, Japan 2011 年 9 月)
- I-11** H. Kobayashi: Nuclear resonance scattering on iron based superconductors. The 489th Wilhelm and Else Heraeus Seminar (Bad Honnef, Germany 2012 年 2 月)
- I-12** H. Kobayashi, S. Ikeda, Y. Yoda(JASRI), H. Nakakura(JAEA), M. Machida(JAEA): Orthorhombic fluctuations in tetragonal AFe_2As_2 (A= Sr and Eu). Phys. Rev. B **84** (2011) 184304-1-7.
- I-13** S. Ikeda, K. Yoshida, H. Kobayashi: Magnetic Interactions on Single-Crystal EuFe_2As_2 Studied by ^{57}Fe Mössbauer Spectroscopy. J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 033703.
- II-1** T. Waki(京大), S. Terazawa(京大), Y. Tabata(京大), Y. Murase(京大), M. Kato(京大), K. Hirota(京大), S. Ikeda, H. Kobayashi, K. Sato(東大), K. Kindo(東大), H. Nakamura(京大): HIP synthesis of η -carbide-type nitrides $\text{Fe}_3\text{W}_3\text{N}$ and $\text{Fe}_6\text{W}_6\text{N}$ and their magnetic properties. J. Alloys Comp. **509** (2011) 9451–9455.
- II-2** H. Kobayashi, J. Umemura, X.-W. Zhang(KEK), Y. Ohishi(JASRI), Y. Uwatoko(東大), H. Fujii(広島大), N. Sakai: Structural and magnetic properties of Fe_2P under pressure at low temperatures. J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 084719-1-6.
- III-1** 本山 岳・酒井佳央・蜂野幸介・小泉昭久・伊藤真義 (JASRI)・久保康則 (日大)・山口 明・住山昭彦・小田祺景・櫻井吉晴 (JASRI)・山村朝雄 (東北大)・佐藤伊佐務 (東北大):「コンプトン散乱実験による URu_2Si_2 の電子運動量密度分布の観測」日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山大 2011 年 9 月)
- III-2** 小泉昭久:「コンプトン散乱測定を利用した重い電子系化合物の電子状態の研究」重い電子系若手秋の学校 (高野山大 2011 年 9 月)
- III-3** 「動きが鈍い電子の直接観測」科学新聞 (2011 年 4 月 8 日号)
- III-4** S. Watanabe(広島大), N. Ishimatsu(広島大), H. Maruyama(広島大), H. Kobayashi, M. Itou(JASRI), N. Kawamura(JASRI), Y. Sakurai(JASRI): Instability of Co spin moment in ErCo_2 probed by magnetic Compton scattering under high pressure. J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 093705-1-4.
- IV-1** 小林寿夫:「多重極限環境下 ^{174}Yb 放射光メスbauer分光法による 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3回研究会 (東大物性研 2011 年 6 月)
- IV-2** 目時直人 (JAEA)・山本悦嗣 (JAEA)・酒井宏典 (JAEA)・芳賀芳範 (JAEA)・松田達磨 (JAEA)・池田修悟:「ウランカルコゲナイドの磁気励起」日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山大 2011 年 9 月)

IV-3 田中佑季・池田修悟・小林寿夫：「単結晶 EuTIn_4 (T: Ni, Cu, Au) の磁性と伝導」日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山大 2011 年 9 月)

IV-4 窪 真志・池田修悟・小林寿夫：「単結晶 EuNi_2Ge_2 における磁気相図」日本物理学会 2011 年秋季大会 (富山大 2011 年 9 月)

IV-5 目時直人 (JAEA)・山本悦嗣 (JAEA)・酒井宏典 (JAEA)・芳賀芳範 (JAEA)・松田達磨 (JAEA)・池田修悟：「局在 $5f$ ウラン化合物の結晶場励起」日本物理学会 2012 年春季大会 (関西学院大 2012 年 3 月)

IV-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)・小林寿夫：「価数揺動物質 $\alpha\text{-YbAlB}_4$ の Fe 置換試料におけるメスバウアー分光測定」日本物理学会 2012 年春季大会 (関西学院大 2012 年 3 月)

IV-7 窪 真志・池田修悟・小林寿夫：「単結晶 EuNi_2Ge_2 における圧力下磁気相図」日本物理学会 2012 年春季大会 (関西学院大 2012 年 3 月)

IV-8 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. Shirovani (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). The 31th International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect (Kobe, Japan 2011 年 9 月)

IV-9 N. Tateiwa (JAEA), Y. Haga (JAEA), H. Sakai (JAEA), S. Ikeda, T.D. Matsuda (JAEA), E. Yamamoto (JAEA), Y. Ōnuki (阪大): Non-magnetic to Magnetic Transition under High Pressure in Narrow-Gap Semiconductor $\beta\text{-US}_2$. J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) SA103.

IV-10 K. Sugiyama (阪大), Y. Hirose (阪大), K. Enoki (阪大), S. Ikeda, E. Yamamoto (JAEA), N. Tateiwa (JAEA), Y. Haga (JAEA), T. Kida (阪大), M. Hagiwara (阪大), K. Kindo (東大), F. Honda (阪大), R. Settai (阪大), Y. Ōnuki (阪大): Magnetic-Field-Induced Metallic State in $\beta\text{-US}_2$. J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) SA104.

大学院物質理学研究科

博士前期課程

- | | |
|------|--|
| 窪 真志 | 純良単結晶 RNi_2Ge_2 (R=Eu, Gd) における圧力下磁性研究 |
| 永瀬将弘 | 単結晶 EuFe_2As_2 の圧力誘起超伝導と磁気秩序に関する電気抵抗及び磁化測定による研究 |
| 吉田和樹 | ^{57}Fe 核共鳴前方散乱法による SrFe_2As_2 の多重極限下物性研究 |

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 笹川科学研究助成
研究課題 複合環境下における放射光メスbauer分光と電気伝導の同時測定
システムの開発
研究代表者 池田修悟