

## I RFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 化合物の試料育成と物性研究

Single Crystalline Preparation and Study of Magnetism in RFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 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 AFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> (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 AFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> の磁性・格子振動と超伝導との関係の研究を行っている。

その結果、EuFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> の単結晶を用いた高圧力下 DC 磁化測定及び <sup>57</sup>Fe 核共鳴前方散乱実験から、超伝導と Fe サイトの磁性が微視的に共存していることを明らかにすることができた。さらに圧力下における超伝導臨界温度前後で <sup>57</sup>Fe 核共鳴前方散乱時間スペクトルの形状が大きく変化することが分かった。以上の結果は、常伝導状態と超伝導状態で Fe サイトの磁気構造が変化することを示している。

## 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  $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> ( $T_c = 80$  mK) とその類似の化合物である  $\alpha$ -YbAlB<sub>4</sub> の <sup>174</sup>Yb 放射光メスバウアー分光、X 線吸収・発光分光測定の研究を展開した。

高圧力下 X 線吸収・発光分光測定及び構造解析の結果、 $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> 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。

一方、<sup>174</sup>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。Yb イオンの価数揺動ダイナミクスと量子臨界性の関係を考察した。

### 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ている M 型フェライト化合物に関する実験研究を行った。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、永久磁石材料の主成分化合物である Fe サイトを Co で置換した M 型フェライト化合物の  $^{57}\text{Fe}$  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 Co 置換依存性などが昨年度行った Ni 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、Co 置換にともなう超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 希土類化合物の磁性の研究

#### Study of Structure and Magnetism in Rare Earth Compounds under High Pressure

池田修悟・小林寿夫  
Ikeda, S. and Kobayashi, H.

正方晶  $\text{EuNi}_2\text{Ge}_2$  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。

斜方晶  $\text{EuNiIn}_4$  の磁性を詳細に調べた結果、2つの逐次転移  $T_{\text{N}1}$  と  $T_{\text{N}2}$  をもち、 $T_{\text{N}2}$  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。さらに  $T_{\text{N}2}$  以下の 2K では、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。同じ結晶構造をもつ  $\text{EuPdIn}_4$  や  $\text{EuPtIn}_4$  の磁性との比較から、多段転移の起源として磁気異方性が大きく関与していることも明らかにすることができた。

他研究機関と協力して、 $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Fe}_x)_2\text{Al}$  の  $^{57}\text{Fe}$  メスバウアー分光測定を行った。その結果、Ce イオン磁気モーメントの反強磁性秩序によ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、U系の重い電子系化合物  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  および  $\text{UPd}_2\text{Al}_3$  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。 $\text{URu}_2\text{Si}_2$  については隠れた秩序転移に伴う電子状態の変化を、 $\text{UPd}_2\text{Al}_3$  については  $f$  電子の遍歴・局在性の変化を観測している。

## 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 $\gamma$ 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  $\gamma$ -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  $\gamma$  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  $\gamma$  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 土屋優・池田修悟・小林寿夫：「 $\text{Li}_7\text{Sn}_2$  を用いたフラックス法による純良  $\text{LiFeAs}$  単結晶育成」日本物理学会 2013 年秋季大会（徳島大 2013 年 9 月）
- I-2 土屋優：「 $\text{Li}_7\text{Sn}_2$  を用いた  $\text{Sn}$  フラックス法による純良  $\text{LiFeAs}$  単結晶育成とその評価」多重極限物質科学研究センター研究発表会（兵庫県立大 2013 年 12 月）

- I-3** 土屋優・池田修悟・小林寿夫:「鉄系超伝導体 LiFeAs 単結晶の物性研究」日本物理学会第 69 回年次大会 (東海大 2014 年 3 月)
- I-4** H. Kobayashi, S. Ikeda Y. Sakaguchi, Y. Yoda(JASRI), H. Nakamura(JAEA), and 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  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$ . *J. Phys.: Condens. Matter* **25** (2013) 022201-1-6 Fast Track Comm. **IOPselect, Highlights of 2013.**
- II-1** 阪口友唯・池田修悟・河村直己 (JASRI)・水牧仁一朗 (JASRI)・久我健太郎 (東大)・中辻 知 (東大)・小林寿夫:「価数揺動物質  $\beta\text{-YbAlB}_4$  の低温・高圧力下における Yb イオン価数変化の研究」日本物理学会 2013 年秋季大会 (徳島大 2013 年 9 月)
- II-2** 小林寿夫:「価数と軌道揺らぎが誘起する新しい金属状態:ドニアック描像を超えて価数揺動とその特異なダイナミクス:重い電子超伝導体  $\text{YbAlB}_4$  の量子臨界」日本物理学会 2013 年秋季大会 (徳島大 2013 年 9 月)
- II-3** 阪口友唯・池田修悟・河村直己 (JASRI)・水牧仁一朗 (JASRI)・平尾直久 (JASRI)・大石泰夫 (JASRI)・鈴木慎太郎 (東大)・久我健太郎 (東大)・曾根啓太 (東大)・中辻 知 (東大)・石松直樹 (広島大)・小林寿夫:「価数揺動物質  $\beta\text{-YbAlB}_4$  の低温・高圧力下における Yb の電子状態変化に関する研究」日本物理学会第 69 回年次大会 (東海大 2014 年 3 月)
- II-4** Y. Sakaguchi, S. Ikeda, K. Kuga(東大), K. Sone(東大), S. Nakatsuji(東大), N. Hirao(JASRI), Y. Ohishi(JASRI), and H. Kobayashi: Structural and magnetic properties of  $\alpha\text{-YbAlB}_4$  under hydrostatic pressure. The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (Tokyo, Japan, 2013 年 8 月)
- II-5** Y. Sakaguchi, S. Ikeda, H. Kobayashi, K. Kuga(東大), K. Sone(東大), and S. Nakatsuji(東大): Mössbauer spectroscopy of Fe doping Valence fluctuating  $\alpha\text{-YbAlB}_4$ . *J. Korean Phys. Soc.* **62** (2013) 2146-2149
- III-1** 永澤延元・池田修悟・下田愛子 (京大)・和氣 剛 (京大)・中村裕之 (京大)・小林寿夫:「 $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-y}\text{Co}_y\text{O}_{19}$  の  $^{57}\text{Fe}$  メスバウアー分光法による研究」日本物理学会第 69 回年次大会 (東海大 2014 年 3 月)
- III-2** N. Nagasawa, S. Ikeda, A. Shimoda(京大), T. Waki(京大), Y. Tabata(京大), H. Nakamura(京大), and H. Kobayashi: La-Ni substituted M-type Sr hexaferrite studied by  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer spectroscopy. The 11th International Conference on Ferrites (Okinawa, Japan, 2013 年 4 月)
- III-3** 小林寿夫:「放射光を用いた高圧力下核共鳴散乱・メスバウアー分光法 —現状と今後の展望—(Nuclear resonant scattering and Mössbauer spectroscopy under high pressure using synchrotron radiation - Current statuses and Future prospects -)」高圧力の科学と技術 **23** (2013) 260-267 (依頼原稿) .

- IV-1** 安田明子・阪口友唯・中村至央(広島大)・谷田博司(広島大)・池田修悟・世良正文(広島大)・小林寿夫:「Ce(Ru<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> ( $x=0.1,0.4,1.0$ ) の <sup>57</sup>Fe メスバウアー分光測定」日本物理学会 2013 年秋季大会(徳島大 2013 年 9 月)
- IV-2** 池田修悟, 田中佑季, 本間佳哉(東北大), 望月健生(東大), 近藤晃弘(東大), 金道浩一(東大), 小林寿夫「EuNiIn<sub>4</sub> の多段磁気転移」日本物理学会第 68 回年次大会(徳島大 2013 年 9 月)
- IV-3** 川端一史:「RNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> (R=Eu, Gd) 純良単結晶育成と圧力下磁性」多重極限物質科学研究センター研究発表会(兵庫県立大 2013 年 12 月)
- IV-4** 池田修悟・田中佑季・岡前裕基・川崎卓郎(JAEA)・花島隆泰(CROSS)・中尾朗子(CROSS)・鬼柳亮嗣(JAEA)・金子耕士(JAEA)・望月健生(東大)・近藤晃弘(東大)・金道浩一(東大)・小林寿夫:「EuNiIn<sub>4</sub> の多段磁気転移 II」日本物理学会第 69 回年次大会(東海大 2014 年 3 月)
- IV-5** 山本悦嗣(JAEA), 芳賀芳範(JAEA), 池田修悟, 酒井宏典(JAEA), 山村朝雄(東北大), Z. Fisk(JAEA)「ウランカルコゲナイトの比熱」日本物理学会第 69 回年次大会(東海大 2014 年 3 月)
- IV-6** S. Ikeda, T. Tanaka, and H. Kobayashi: Single crystal growth and magnetic properties of EuTIn<sub>4</sub> (T: Ni and Pd). The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (Tokyo, Japan, 2013 年 8 月)
- IV-7** A. Yasuda, Y. Sakaguchi, S. Ikeda, M. Nakamura(広島大), H. Nohara(広島大), H. Tanida(広島大), M. Sera(広島大), and H. Kobayashi: Mössbauer spectroscopic studies of NdFe<sub>2</sub>Al<sub>10</sub>. The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (Tokyo, Japan, 2013 年 8 月)
- IV-8** S. Tsutsui(JASRI), S. Shimomura(京都産大), K. Yoshida(京都産大), H. Kobayashi and H. Onodera(東北大): Sm atomic dynamics in a charge density wave compound SmNiC<sub>2</sub>. International Conference on the Applications of the Mössbauer effect (Opatija, Croatia, 2013 年 9 月).
- IV-9** N. Tateiwa(JAEA), Y. Haga(JAEA), T. D. Matsuda(JAEA), Z. Fisk(JAEA), S. Ikeda, and H. Kobayashi: Improved sensitivity of magnetic measurements under high pressure in miniature ceramic anvil cell for a commercial SQUID magnetometer. Rev. Sci. Instrum. **84** (2013) 046105 1-3
- IV-10** N. Metoki(JAEA), H. Sakai(JAEA), E. Yamamoto(JAEA), Y. Haga(JAEA), T.D. Matsuda(JAEA) and S. Ikeda: Metal-insulator crossover accompanied by the dual nature of 5*f* electrons with localized and Itinerant characters in  $\beta$ -US<sub>2</sub>. J. Korean Phys. Soc. **62** (2013) 1782.
- V-1** 小泉昭久・芳賀芳範(原研)・山本悦嗣(原研)・久保康則(日大)・大貫惇睦(琉球大)・伊藤真義(JASRI)・櫻井吉晴(JASRI): 重い電子系化合物 UPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub> における

*f*電子の遍歴・局在性の観測：コンプトン散乱実験」 日本物理学会 2013 年秋季大会（徳島大 2013 年 9 月）

**V-2** 小泉昭久・富石利樹・本山岳（島根大）・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）：「電子運動量密度分布から観た URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の隠れた秩序相における 5*f*電子状態」日本物理学会第 69 回年次大会（東海大 2014 年 3 月）

**V-3** A. Koizumi, G. Motoyama（島根大）, Y. Kubo（日大）, M. Itou（JASRI）, and Y. Sakurai（JASRI）: Change of Electronic Structure Associated with the Hidden-Order Transition in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> Observed by Compton Scattering Experiment. The 8th International Conference on Inelastic X-ray Scattering (California, USA 2013 年 8 月)

## 大学院物質理学研究科

博士前期課程

川端一史 純良単結晶を用いた高圧力下 EuNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の磁氣的性質の研究  
土屋 優 Li<sub>7</sub>Sn<sub>2</sub> を用いた純良 LiFeAs 単結晶育成と <sup>57</sup>Fe メスバウアー分光

## 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 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