

## I Fe 系超伝導体の純良試料育成と物性研究

Single Crystalline Preparation and Study of Magnetism in iron-based superconductors

池田修悟・小林寿夫

Ikeda, S. and Kobayashi, H.

近年 As が四面体的に Fe を囲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。さらに、Se が四面体的に Fe を囲む遷移金属化合物で超伝導状態が実現されることが報告されている。

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、この FeAs 系化合物の中で  $AFe_2As_2$  ( $A: Ca, Eu$ ) 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  $AFe_2As_2$  の磁性・格子振動と超伝導との関係の研究を行った。圧力下磁化測定及び核共鳴前方散乱実験から、 $EuFe_2As_2$  の磁性と超伝導の相関について調べた。その結果、Fe サイト及び Eu サイトの反強磁性と超伝導が微視的に共存する領域が 2.7 GPa 近傍で存在することを明らかにすることができた。この共存相では、Fe サイトの磁気構造が変化するが、磁気モーメントに比例する物理量である内部磁場は超伝導転移前後で変化しない。これは、 $EuFe_2As_2$  の Fe サイトの磁性と超伝導は、競合することなく共存していることを意味している。次に  $CaFe_2As_2$  に関して、室温における圧力下  $^{57}Fe$  メスバウアー分光測定を行った結果、センターシフトの圧力依存性に不連続な減少が現れることが分かった。電場勾配の圧力依存性に明瞭な異常が観測されないことから、このセンターシフトの不連続な減少は、構造相転移ではなく、純粋な電子状態の変化を示している。さらにこの電子状態の変化が現れる圧力領域において、低温で超伝導が現れることから、本研究で明らかにされた新しい電子状態と超伝導の間には、密接な相関があることが考えられる。さらに、 $K_{1-x}Fe_{2-y}(Se,S)_2$  化合物の単結晶育成にも成功した。

## 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  $\beta$ -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  $^{174}Yb$  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。その温度依存性から 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。

また、他研究機関と協力して、<sup>151</sup>Eu 放射光メスバウアー分光による EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の圧力下磁場誘起価数転移の観測を試みた。さらに、他研究機関と協力して、正方晶及び立方晶 Sm 化合物の内殻吸収/光電子スペクトル線二色性測定を行った。

### III 3d 遷移金属酸化物・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 <sup>57</sup>Fe メスバウアー分光の磁場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磁場依存性は、結晶学的に異なる 5 つの Fe サイトのうち 3 つは、単純な Fe<sup>3+</sup> イオン状態からは説明できないことが分かった。この結果を説明するためには、Fe イオンにわずかな残量軌道成分の存在が必要であり、実用磁石材料としての M 型フェライト化合物の磁気異方性を考察する上での重要な結果となった。

一方、他研究機関と協力して電荷密度波とスピン密度波が共存する Mn<sub>3</sub>Si における X 線散乱により新たな秩序機構を提案した。

### 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.

EuTIn<sub>4</sub> (T: Ni, Pd, Pt) は、同じ斜方晶 *Cmcm* の空間群を持ち、Eu<sup>2+</sup> サイトが反強磁性に磁気転移を示す。しかし遷移金属 T サイトが Ni から Pt へ変わるに従い磁気異方性

は、一軸磁気異方性から面内磁気異方性へ変化する。さらに一軸異方性を示す  $\text{EuNiIn}_4$  は、磁化容易軸方向で 5 T までに 4 つの多段磁気転移を示すが、面内磁気異方性を示す  $\text{EuPdIn}_4$  及び  $\text{EuPtIn}_4$  では、スピントリップ転移のみ現れる。ここで我々は、 $\text{EuNiIn}_4$  に対して静水圧及び一軸圧を印加することで磁気異方性を制御し、磁気異方性の変化に伴う多段磁気転移の変化を調べた。その結果静水圧下では、一軸異方性に変化はなく、反強磁性転移温度  $T_N$  及び多段磁気転移磁場  $H_a$  が増加することが分かった。一方磁化容易軸である  $b$  軸方向に一軸圧を印加した場合は、 $b$  軸方向における  $T_N$  以下の磁化率が増加することが明らかとなった。これは、磁気異方性が一軸磁気異方性から面内磁気異方性に変化することを意味している。この磁気異方性の変化に伴い、4 つの  $H_a$  は消失し、一つのスピントリップ転移と思われるブロードな異常が現れた。以上の結果から、 $\text{EuNiIn}_4$  の多段磁気転移は、磁気異方性と強く相関しており、一軸異方性の時のみ現れることが明らかとなった。

また、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。

## 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.

他研究機関と協力して、U系の重い電子系化合物  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  と関連物質において、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、電子構造の研究を行っている。 $\text{URu}_2\text{Si}_2$  が示す隠れた秩序相の電子構造と、これに競合する反強磁性相の電子構造については、両者の間に大きな違いは無いと考えられているが、Ruの一部をRhで置換した単結晶試料を用いて(001)面に射影された反強磁性相の電子占有数密度を求めたところ、両者の電子構造に違いが有ることが実験的に明らかとなった。

## 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 $\gamma$ 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** 池田修悟・土屋 優・張小威 (KEK-PF)・亀掛川卓美 (KEK-PF)・岸本俊二 (KEK-PF)・依田芳卓 (JASRI)・小林寿夫：「 $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  の磁性と超伝導」日本物理学会 2014 年秋季大会（中部大学 2014 年 9 月）
- I-2** 土屋優・池田修悟・小林寿夫：「 $\text{K}_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$  の単結晶試料育成と物性研究」日本物理学会第 70 回年次大会（早稲田大学 2015 年 3 月）
- I-3** 池田修悟・土屋 優・張小威 (KEK-PF)・亀掛川卓美 (KEK-PF)・岸本俊二 (KEK-PF)・依田芳卓 (JASRI)・小林寿夫：「圧力下  $^{57}\text{Fe}$  核共鳴前方散乱実験による  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  の電子状態の研究」日本物理学会第 70 回年次大会（早稲田大学 2015 年 3 月）
- I-4** Y. Sakaguchi, S. Ikeda, T. Kuse, and H. Kobayashi: Pressure-induced change of the electronic state in the tetragonal phase of  $\text{CaFe}_2\text{As}_2$ . *J. Phys.: Condens. Matter* **26** (2014) 295702-1–6.
- II-1** 阪口友唯・池田修悟・河村直己 (JASRI)・水牧仁一朗 (JASRI)・鈴木慎太郎 (東大)・久我健太郎 (東大)・中辻 知 (東大)・石松直樹 (広島大)・小林寿夫：「多重極限環境下における  $\beta\text{-YbAlB}_4$  の X 線吸収分光」日本物理学会 2014 年秋季大会（中部大学 2014 年 9 月）
- II-2** 光田暁弘 (九大)・浜田卓 (九大)・喜舎場英吾 (九大)・増田亮 (京大)・北尾真司 (京大)・小林康浩 (京大)・瀬戸誠 (京大)・小林寿夫・阪口友唯・依田芳卓 (JASRI)・平尾直久 (JASRI)・和田裕文 (九大)：「 $^{151}\text{Eu}$  放射光メスbauer分光による  $\text{EuRh}_2\text{Si}_2$  の圧力下磁場誘起価数転移の観測」日本物理学会 2014 年秋季大会（中部大学 2014 年 9 月）
- II-3** 阪口友唯・池田修悟・河村直己 (JASRI)・水牧仁一朗 (JASRI)・鈴木慎太郎 (東大)・久我健太郎 (東大)・中辻 知 (東大)・石松直樹 (広島大)・小林寿夫：「多重極限環境下における  $\beta\text{-YbAlB}_4$  の X 線吸収分光 II」日本物理学会第 70 回年次大会（早稲田大学 2015 年 3 月）

- II-4** 内免翔(大阪大)・金井惟奈(大阪大)・山神光平(大阪大)・矢野昂平(大阪大)・藤原秀紀(大阪大)・木須孝幸(大阪大)・東谷篤志(摂南大)・門野利治(立命館大)・今田真(立命館大)・田中新(広島大)・室隆桂之(JASRI)・保井晃(JASRI)・斉藤祐児(JAEA)・玉作賢治(理研)・矢橋牧名(理研)・石川哲也(理研)・山口貴司(大阪大)・池田修悟・小林寿夫・大貫惇睦(琉球大)・関山明(大阪大): 「正方晶及び立方晶 Sm 化合物の内殻吸収/光電子スペクトル線二色性による 4f 基底状態の観測」 日本物理学会第 70 回年次大会 (早稲田大学 2015 年 3 月)
- II-5** H. Kobayashi, Y. Sakaguchi, S. Ikeda, R. Masuda(京大), M. Set(京大), Y. Yoda(JASRI), K. Kuga,(東大) and S. Nakatsuji(東大):  $^{174}\text{Yb}$  Synchrotron-radiation-based Mössbauer spectroscopic study on valence fluctuating  $\text{YbAlB}_4$ The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, (Grenoble, France, 2014 年 7 月).
- II-5** Y. Sakaguchi, S. Ikeda, N. Kawamura(JASRI), M. Mizumaki(JASRI), S. Suzuki(東大), K. Kuga(東大), S. Nakatsuji(東大), and H. Kobayashi: Intermediate valence behavior of  $\beta\text{-YbAlB}_4$  under hydrostatic pressure. The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, (Grenoble, France, 2014 年 7 月).
- II-5** 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. J. Phys. Soc. Jpn. Conf. Proc. **3** (2014) 011059-1-4.
- III-1** 永澤延元: 「 $^{57}\text{Fe}$  メスバウアー分光法による M 型 Sr フェライトにおける元素置換効果の研究」 多重極限物質科学研究センター研究発表会 (兵庫県立大 2014 年 12 月)
- III-2** S. Tomiyoshi(愛媛大), H. Ohsumi(理研), H. Kobayashi, and A. Yamamoto(NIMS): Charge density wave accompanied by spin density wave in  $\text{Mn}_3\text{Si}$ . J. Phys. Soc. Jpn. **83** (2014) 044715-1-8.
- III-3** 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. J. Jpn Soc. Powder Powder Metallurgy **61** (2014) Suppl. S1 S266-S269
- IV-1** 井上遼一・池田修悟・小林寿夫: 「 $\text{EuGa}_2$  の純良単結晶育成とその磁性」 日本物理学会 2014 年秋季大会 (中部大学 2014 年 9 月)
- IV-2** 岡前裕基・池田修悟・田中佑季・名田将人・小林寿夫: 「 $\text{EuTIn}_4$  (T=Ni, Pd, Pt) の高圧力下磁性研究」 日本物理学会 2014 年秋季大会 (中部大学 2014 年 9 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)・西岡孝(高知大)・松村政博(高知大)・池田修悟・小林寿夫: 「 $\text{RFe}_2\text{Al}_{10}$  (R=Nd, Gd) の  $^{57}\text{Fe}$  メスバウアー分光法による磁性の研究」 日本物理学会 2014 年秋季大会 (中部大学 2014 年 9 月)

- IV-5** 井上遼一：「EuGa<sub>2</sub> の純良単結晶育成と圧力下の磁性」多重極限物質科学研究センター研究発表会（兵庫県立大 2014 年 12 月）
- IV-6** 岡前裕基：「EuTIn<sub>4</sub> (T=Ni, Pd, Pt) における高圧力下の磁気異方性研究」多重極限物質科学研究センター研究発表会（兵庫県立大 2014 年 12 月）
- IV-7** 安田明子：「CeFe<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の <sup>57</sup>Fe メスバウアー分光法による磁性研究」多重極限物質科学研究センター研究発表会（兵庫県立大 2014 年 12 月）
- IV-8** 名田将人(大阪大)・田原大夢(大阪大)・杉山清寛(大阪大)・木田孝則(大阪大)・池田修悟・萩原政幸(大阪大)：「希土類金属間化合物 EuPtIn<sub>4</sub> の強磁場磁性」日本物理学会第 70 回年次大会（早稲田大学 2015 年 3 月）
- IV-9** E. Yamamoto(原研), N. Tateiwa(原研), Y. Haga(原研), S. Ikeda, H. Sakai(原研), Y. Ōnuki(琉球大), Z. Fisk(原研): Analysis of Magnetization Behavior in Magnetic Semiconductor  $\beta$ -US<sub>2</sub>. J. Phys. Soc. Jpn. Conf. Proc. **3** (2014) 011095-1-4.
- IV-10** 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>. J. Phys. Soc. Jpn. Conf. Proc. **3** (2014) 012027-1-4.
- IV-11** N. Metoki(原研), H. Sakai(原研), M. Suzuki(原研), E. Yamamoto(原研), Y. Haga(原研), T. D. Matsuda(原研), S. Ikeda: Spin Polarized Neutron Scattering Study on Metal-Insulator Crossover in Uranium Dichalcogenide  $\beta$ -US<sub>2</sub>. J. Phys. Soc. Jpn. Conf. Proc. **3** (2014) 013011-1-4.
- IV-12** S. Ikeda, T. Tanaka, and H. Kobayashi: Single crystal growth and magnetic properties of EuTIn<sub>4</sub> (T: Ni and Pd). J. Phys. Soc. Jpn. Conf. Proc. **3** (2014) 014023-1-4.
- V-1** A. Koizumi, G. Motoyama (島根大), Y. Kubo(日大), M. Itou(JASRI), and Y. Sakurai(JASRI): Change of electronic structure on the hidden order transition in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> studied by Compton scattering experiment. Strongly Correlated Electron Systems (SCES2014) (Grenoble, France 2014 年 7 月)
- V-2** 小泉昭久・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> の隠れた秩序転移に伴う電子状態の変化」日本物理学会 2014 年秋季大会（中部大 2014 年 9 月）
- V-3** 小泉昭久・松田和博(京大)：「運動量空間におけるスピン・電子密度科学学会の活動」SPRING-8 シンポジウム 2014（東京大 2014 年 9 月）
- V-4** 小泉昭久・本山岳(島根大)・伊藤真義(JASRI)・櫻井吉晴(JASRI)・久保康則(日大)・山村朝雄(東北大)：「コンプトン散乱で観た URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の隠れた秩序転移に伴う電子構造の変化」第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム（立命館大 2015 年 1 月）

V-5 小泉昭久：「X線（磁気）コンプトン散乱の基礎と応用」物性分光研究会（京大化研 2015年2月）

V-6 小泉昭久・山本悦嗣（原研）・芳賀芳範（原研）・久保康則（日大）・伊藤真義（JASRI）・櫻井吉晴（JASRI）：「コンプトン散乱で観る  $U(Ru_{0.97}Rh_{0.03})_2Si_2$  の反強磁性相における電子構造：隠れた秩序相との比較」日本物理学会第70回年次大会（早稲田大 2015年3月）

## 大学院物質理学研究科

博士前期課程

井上遼一	EuGe <sub>2</sub> の純良単結晶育成と圧力下の磁性
岡前裕基	高圧力下 EuTIn <sub>4</sub> (T = Ni, Pd, Pt) の磁性研究
永澤延元	(Sr,La)(Fe,Co) <sub>12</sub> O <sub>19</sub> の強磁場下メスバウアー分光
安田明子	Ce(Ru <sub>1-x</sub> Fe <sub>x</sub> ) <sub>2</sub> Al <sub>10</sub> と RFe <sub>2</sub> Al <sub>10</sub> の <sup>57</sup> Fe メスバウアー分光法による研究

## 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 遷移金属元素の価数に着目した鉄系酸化物磁石の実用材周辺の基礎科学とその高性能化に向けた物質設計指針の提案  
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 5f電子状態の解明  
研究代表者 小泉昭久