

## 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.

フラックス法による化合物育成環境を整えることで、鉄系超伝導体の中で  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  の単結晶を育成し、圧力・磁場・低温の多重極限環境下における電子状態の研究を行ってきた。 $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  は、 $T_0 = 190$  K 近傍において鉄サイトが反強磁性秩序すると同時に構造相転移を示す。圧力印加により  $T_0$  は急激に減少し、2.4 GPa 以上でバルク超伝導が発現する。我々は、圧力下  $^{57}\text{Fe}$  核共鳴前方散乱実験を用いて  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  の磁性と超伝導の相関を調べた。その結果、圧力及び温度共に常伝導と超伝導状態の間で Fe の NFS スペクトルの特徴に変化が現れた。このスペクトルの変化は、超伝導相内でのみ実現する特異な反強磁性状態が存在することを意味している。次に、この特異な反強磁性と超伝導の共存相が発現する起源を調べるため、Fe 核の s 電子密度を反映するセンターシフトの圧力依存性を測定できる環境の構築を試みている。現在のところ、1 GPa 近傍で常磁性及び反強磁性状態でセンターシフトを測定することに成功している。

## 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.

国内他研究機関と協力して、 $\beta\text{-YbAlB}_4$  とその異性体化合物である  $\alpha\text{-YbAlB}_4$  の低温・高圧力・磁場中  $^{174}\text{Yb}$  放射光メスbauer分光測定の研究を展開している。

低温・高圧力下  $^{174}\text{Yb}$  放射光メスbauer分光測定及び構造解析の結果、 $\beta\text{-YbAlB}_4$  では外部圧力に量子臨界性の抑制に、価数揺動時間スケールの変化と格子振動が強く関係していることを示した。一方、 $\alpha\text{-YbAlB}_4$  では、磁場誘起の Yb 4f 電子の四極子モーメントの変化を直接観測することに成功した。 $\alpha\text{-YbAlB}_4$  での磁場誘起の Yb 4f 電子の四極子モーメントの変化と結晶構造の関係を実験的に明らかにするために、単結晶低温・磁場中 X 線回折測定も併せて行った。その結果、わずかな回折強度の磁場依存性を観測した

が、その変化による原子位置変化だけでは、低温・磁場中  $^{174}\text{Yb}$  放射光メスバウアー分光測定の結果を説明できなことを明らかにした。

### 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.

ドイツ及びスペインの研究機関と共同で、温度・圧力誘起の金属-絶縁体転移を示す  $\text{RNiO}_3$  の高圧力下 X 線回折及び X 線吸収・発光分光実験を行った。高圧力下 Ni *K*-edge X 線吸収・発光分光法の結果からは、絶縁体相では加圧とともに吸収エッジが低エネルギー側にシフトし、金属相ではその圧力依存性がほとんどないことが分かった。また、電氣的四重極遷移に関係し、3*d* 電子状態を直接観測していると考えられる、吸収ピークにおいても圧力誘起の金属-絶縁体転移での異常を観測した。

国内他研究機関と協力して、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。永久磁石材料の主成分化合物である Sr サイトを La 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・スペクトルの組成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組成依存性から、Co イオン置換サイトの特定を行った。この結果は、Co 置換による磁気異方性の増強は、今までの単純な残量軌道磁気モーメントによる寄与では説明できないことを示している。

### IV 希土類化合物の磁性の研究

#### Study of Structure and Magnetism in Rare Earth Compounds

池田修悟・小林寿夫

Ikeda, S. and Kobayashi, H.

斜方晶 *Cmcm* の結晶構造を持つ  $\text{EuTIn}_4$  (T: Ni, Pt) は、 $\text{Eu}^{2+}$  サイトが反強磁性転移を示す。反強磁性転移温度  $T_N$  は約 13.5K~15K である。またその磁気異方性は大きく異なり、磁化容易軸が  $\text{EuNiIn}_4$  は *b* 軸の一軸磁気異方性を示すのに対し、 $\text{EuPtIn}_4$  は *ac* 軸の面内磁気異方性を示す。また磁場を磁化容易軸方向にかけた際の  $T_N$  以下の磁化曲線では、 $\text{EuPtIn}_4$  はスピントロップ転移のみを示すが、一方で  $\text{EuNiIn}_4$  は 4 段の多段磁気転

移を示す。本研究では磁気異方性と多段磁気転移の関係に着目し、異方性が 90 度異なる EuNiIn<sub>4</sub> と EuPtIn<sub>4</sub> の混晶系である Eu(Ni<sub>x</sub>Pt<sub>1-x</sub>)In<sub>4</sub> を作製してその磁性を調べた。その結果  $x=15$  の Pt 置換により  $T_N$  以下の磁化率の異方性は小さくなる一方で、ブロードではあるが多段磁気転移は  $b$  軸方向で観測された。以上の結果から、多段磁気転移は、Eu<sup>2+</sup> の磁気モーメントが  $b$  軸から傾いたとしても観測されることが分かった。今後より詳細に Pt 置換量を変化させ磁性を調べることで、多段磁気転移と磁気異方性の関係について調べる予定である。

## 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.

放射光 X 線を用いた高分解能コンプトン散乱測定により、重い電子系化合物を対象にした電子構造の研究を行っている。Ce 系化合物 CeIn<sub>3</sub> や CeTIn<sub>5</sub> (T = Rh, Co) においては、4f 電子の遍歴・局在性の変化に加えて、反強磁性相や超伝導相における測定を行う計画である。U 系化合物 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> では、隠れた秩序転移に伴う電子構造の変化を捉えている。また、Yb 系の重い電子系化合物 YbT<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (T = Co, Rh, Ir) は、ドイツのグループとの共同研究で、コンプトンプロファイルの二次元再構成解析から得られた電子構造と、ドイツのグループによる光電子分光実験との比較を通じて、この系のフェルミ面の変遷や量子臨界へ至る筋道を明らかにしたい。

### 発表論文 List of Publications

- I-1 北川勇人・小林寿夫・土屋優・池田修悟：「 $K_x\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_2$  の磁場下 <sup>57</sup>Fe メスバウアー分光による研究」日本物理学会 2018 年秋季大会 (同志社大学 2018 年 9 月)
- I-2 池田修悟・永澤延元・岸本俊二 (KEK-PF)・亀掛川卓美 (KEK-PF)・河口沙織 (JASRI)・平尾直久 (JASRI)・大石泰生 (JASRI)・小林寿夫：「鉄系超伝導体  $A\text{Fe}_2\text{As}_2$  (A: Sr, Eu) の磁性と超伝導」第 59 回高圧討論会 (岡山理科大学 2018 年 11 月)
- I-3 永田晃太郎・池田修悟・小林寿夫・船守展正 (KEK-PF)：「<sup>57</sup>Fe 核共鳴前方散乱法を用いた圧力下の  $\text{SrFe}_2\text{As}_2$  の電子状態研究」日本物理学会第 74 回年次大会 (九州大学 2019 年 3 月)

- I-4** 富田健史・池田修悟・今泉聖司(東北大)・青山拓也(東北大)・今井良宗(東北大)・大串研也(東北大)・小林寿夫:「単結晶  $\text{BaFe}_2\text{X}_3$  ( $\text{X}=\text{S},\text{Se}$ ) 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 74 回年次大会(九州大学 2019 年 3 月)
- I-5** S. Ikeda: Coexistence of superconductivity and antiferromagnetic order in  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$ . International Workshop on New Developments and Prospects for the Future of Mössbauer Spectroscopy (Nagoya Japan, 2018)
- I-6** S. Ikeda: Magnetic properties of the iron arsenide superconductor  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  under pressure. International Conference on Magnetism (San Francisco, USA, 2018)
- I-7** S. Ikeda, Y. Tsuchiya, X.-W. Zhang(KEK-PF), S. Kisimoto(KEK-PF), T. Kikegawa(KEK-PF), Y. Yoda(JASRI), H. Nakamura, M. Machida, J.K. Glasbrenner and H. Kobayashi: New antiferromagnetic order with the pressure-induced superconductivity in  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$ . Phys. Rev. B **98** (2018) 100502-1–5 (R).
- II-1** 北川勇人・大浦桃子・池田修悟・田中良和(理研)・玉作賢治(理研)・増田亮(京大)・小林康浩(京大)・瀬戸誠(京大)・依田芳卓(JASRI)・鈴木慎太郎(東大)・久我健太郎(東大)・中辻知(東大)・小林寿夫:「重い電子系化合物  $\alpha\text{-YbAlB}_4$  の低温における磁場下物性 II」日本物理学会第 74 回年次大会(九州大学 2019 年 3 月)
- II-2** H. Kobayashi: 「Synchrotron-Radiation-based  $^{174}\text{Yb}$  Mössbauer spectroscopic studies on valence fluctuating  $\text{YbAlB}_4$ 」Inter. Workshop: Novel Phenomena in Quantum Materials driven by Multipoles and Topology (Kashiwa Japan, April 2018)
- II-3** M. Oura, S. Ikeda, R. Masuda(京大), Y. Kobayashi(京大), M. Seto(京大), Y. Yoda(JASRI), N. Hirao(JASRI), S.I. Kawaguchi(JASRI), Y. Ohishi(JASRI), S. Suzuki(東大), K. Kuga(東大), S. Nakatsuji(東大), and H. Kobayashi: Valence fluctuating compound  $\alpha\text{-YbAlB}_4$  studied by  $^{174}\text{Yb}$  Mössbauer spectroscopy and X-ray diffraction using synchrotron radiation. Physica B **536** (2018) 162–164.
- III-1** 永澤延元・池田修悟・河口沙織(JASRI)・平尾直久(JASRI)・大石泰生(JASRI)・平岡望(JASRI)・浦瀬真人(阪府大)・池野豪一(阪府大)・J.A. Alonso(マドリッド大)・M.J. Martinez-Lope(マドリッド大)・M.M. Abd-Elmeguid(ケルン大)・小林寿夫:「圧力誘起金属-絶縁体転移を示す  $\text{RNiO}_3$  (R: 希土類) の結晶構造」日本物理学会第 74 回年次大会(九州大学 2019 年 3 月)
- III-2** M. Oura, N. Nagasawa, S. Ikeda, A. Shimoda(京大), T. Waki(京大), Y. Tabata(京大), H. Nakamura(京大), N. Hiraoka(JASRI), and H. Kobayashi:  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer and Co  $K\beta$  x-ray emission spectroscopic investigations of La-Co and La substituted strontium hexaferrite. J. Appl. Phys. **123** (2018) 033907-1–6.
- IV-1** 池田修悟・金子耕士(原研)・川崎卓郎・中尾朗子(原研)・鬼柳亮嗣(原研)・大原高志・M. D. Frontzek・H. Cao・望月健生・近藤晃弘(東大)・金道浩一(東大)・本間佳哉(東北大)・小林寿夫:「中性子回折及び  $^{151}\text{Eu}$  メスバウアー分光による  $\text{EuNiIn}_4$  の多段磁気転移の研究」日本物理学会第 74 回年次大会(九州大学 2019 年 3 月)

- V-1** A. Koizumi, Y. Kubo(日大), G. Motoyama(島根大), T. Yamamura(東北大), and Y. Sakurai(JASRI): How the Electronic Structure in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> Changes with Temperature: A High-Resolution Compton Scattering Study. J. Phys. Soc. Jpn. **87** (2018) 064703-1-6.
- V-2** A. Koizumi, Y. Kubo(日大), E. Yamamoto(原研), Y. Haga(原研), and Y. Sakurai(JASRI): Electronic Structure in Heavy Fermion Compound UPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub> through Directional Compton Profile Measurement. J. Phys. Soc. Jpn. **88** (2019) 034714-1-6.
- V-3** 片山大地・Jumaeda Jatmica(静岡大)・海老原孝雄(静岡大)・松本紳(筑波大)・時井真紀(筑波大)・小林寿夫・辻成希(JASRI)・小泉昭久:「コンプトン散乱測定による重い電子系化合物 CeIn<sub>3</sub> の電子構造の研究」日本物理学会第74回年次大会(九州大学2019年3月)

## 科学研究費補助金等

- 1 文部科学省科学研究費補助金 新学術領域研究  
研究課題 局在多極子と伝導電子の相関効果  
研究分担者 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による重い電子系 Ce 化合物における電子構造の研究  
研究代表者 小泉昭久
- 3 公益財団法人カシオ科学技術財団  
研究課題 放射光メスバウアー分光測定による FeAs 系化合物の超伝導発現機構の解明  
研究代表者 池田修悟