

Quantum Magnetism

量子物性学

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

河智史朗・池田修悟・小林寿夫

Kawachi, S., 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 EuFe_2As_2 , SrFe_2As_2 などの単結晶を育成し、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。ここでは、 ^{57}Fe 核共鳴前方散乱法を用いて、入射・散乱光子の偏光特性を活用することで、超微細相互作用の対称性を議論している。特に、今年度は国内他研究機関と協力して BaFe_2X_3 ($\text{X}=\text{S}, \text{Se}$) における軌道秩序と誘電特性及び圧力下超伝導発現機構についての入射・散乱光子の偏光特性を活用する ^{57}Fe 核共鳴前方散乱法を用いて研究を展開した。

最初に発見された鉄系超伝導体 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ より高濃度の電子ドーピングが可能となった $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$ における研究も進めている。本研究では、鉄系超伝導体 $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{H}_x$ の高濃度水素置換領域における鉄のフォノンダイナミクスを明らかにするため、 ^{57}Fe 核共鳴非弾性散乱を広い温度範囲で実施した。試料は超伝導基底状態を示す $x = 0.35$ と、反強磁性基底状態を示す $x = 0.51$ の二つの多結晶である。得られたスペクトルから抽出した Fe のフォノン状態密度は、 $x = 0.35$ では明瞭なピークを示す一方、 $x = 0.51$ ではほぼ完全に抑制されていた。第一原理計算に基づく構造緩和解析は、この 15 meV のピークが Fe と As 原子を介した最近接方向の光学振動に由来することを示し、その抑制は面内の電子的不等価性に起因することを支持する。したがって、反強磁性相である $x = 0.51$ には室温以上から電子ネマティシティの兆候が現れるのに対し、超伝導相である $x = 0.35$ にはそのような兆候がほとんど存在しないと示唆される。この結果は、軌道・スピン・格子の相互作用が鉄系超伝導体の物性を決定する重要な要素であることを示唆するとともに、電子構造と超伝導発現機構の関係を理解する上で新たな知見を与えるものである。

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

小林寿夫

Kobayashi, H.

国内他研究機関と協力して、価数揺動物質である β -YbAlB₄ とその異性体化合物である α -YbAlB₄, α -Yb(AlFe)B₄ の低温・高圧力・磁場中 ^{174}Yb 放射光メスバウアー分光測定の研究を展開している。

また、Yb 価数揺動系準結晶の 1/1 近似結晶での圧力誘起量子臨界性の原因を探るために、低温・高圧力下 ^{174}Yb 放射光メスバウアー分光および低温・高圧力下 X 線回折測定による研究を展開した。 ^{174}Yb 放射光メスバウアー分光測定から、常圧力下で量子臨界性を示す Yb 価数揺動系準結晶の Yb イオンの基底状態と Yb 価数揺動系 1/1 近似結晶の Yb イオンの基底状態に大きな違いがあることが、実験的に明らかとなった。さらに、放射光を用いた低温・高圧力下 X 線回折測定からは、準結晶での六次元格子定数の異常な圧力依存性を 12 K 以下の温度で観測した。

一方、本研究領域では、1K 以下の極低温および磁場印加が可能な測定環境が必要となる。そこで、国内他研究機関の協力を得て、高エネルギー放射光を用いる分光手法により 300 mK での磁場印加環境での測定に初めて成功した。この新たな測定環境で価数揺動 Yb トポロジカル化合物の研究を展開し継続している。

III 3d 遷移金属酸化物・化合物・合金の物性研究

Study of Magnetism in 3d Transition Metal Compounds

河智史朗・小林寿夫

Kawachi, S. and Kobayashi, H.

国内他研究機関と協力して、酸化物永久磁石材料の主組成材料である M 型フェライト化合物に関する実験研究を行っている。特に、La-Co 置換による保持力向上の機構を Co 置換サイトを能動的に変えることにより明らかにすることを目指している。同一 La-Co 置換量 Sr M 型フェライトを用いた試料作製での熱処理過程の違いにより、室温での磁気異方性が変化することを磁化測定により確認した。その原因は Co 置換サイトの変化によると考えて、 ^{57}Fe メスバウアー分光法により Co 置換サイトを推定するための詳細な測定を行い、Co 置換サイトの熱処理変化に関する実験的な証拠が得られつつある。

マルチフェロイック物質におけるスピンと強誘電分極の微視的メカニズムの解明に向けた研究を行っている。マルチフェロイック物質は、スピンと強誘電分極を用いた高密度多値メモリーや、電流を用いない省電力メモリーへの応用が期待されている。我々が現在着目している BiFeO₃ では、室温環境下でも、磁場による磁気ドメイン制御 (~ 10 T) や逐次磁気相転移 ($\sim 12 - 15$ T) に伴って巨大電気磁気効果を示す。この巨大電気磁気効果を生み出すスピンと強誘電分極の結合には、鉄

原子 $3d$ と酸素原子 $2p$ の軌道の混成が深く関わっていることが示唆されている。この微視的な電気磁気結合を追究するためには、巨視的な磁場応答だけでなく、外場に対して磁気構造や FeO_6 八面体における鉄原子が感じる静電ポテンシャルの大きさとその対称性がどのように変化するかを紐解く必要がある。そこで、我々は放射光の直線偏光特性を活用した ^{57}Fe 核共鳴前方散乱法で、単一ドメイン化した単結晶 BiFeO_3 に対する磁場、電場、及び圧力変化を、鉄原子の超微細相互作用の大きさと対称性から調査している。また、実験室で構築した 25 T パルス強磁場下での物性測定環境を活用しつつ、上記マルチフェロイック物質や鉄系超伝導物質等の研究を展開している。

IV 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、Ce 系重い電子系化合物、La 系銅酸化物超伝導体の電子構造を研究している。Ce 系化合物 CeCoIn_5 の測定では、非フェルミ液体状態における反強磁性揺らぎに起因すると考えられる構造を観測し、低温の超伝導状態においては、その揺らぎ構造が消えることを確認した。これは、超伝導転移に伴い、超伝導ギャップが開いたことによる変化であると考えられる。また、酸化物超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x=0.08$) においては、電子ネマチック液晶に伴うフェルミ面の形状変化を観測するために、運動量密度二次元再構成の温度変化測定を行っている。

V 符号化開口マスクを用いたコンプトン散乱のイメージング測定

Imaging Measurement of Compton Scattering
Using a Coded Aperture Mask

小泉昭久
Koizumi, A.

放射光 X 線を用いたコンプトン散乱による (磁気) イメージング測定の開発を行っている。従来の測定方法では、空間分解能の向上と観測されるコンプトン散乱強度の増強は、両立しない問題であったが、符号化開口マスクを適用することで、問題の解決を図っている。平方剰余で計算される数学的な 0 と 1 の配列を二次元に拡張し、0 を遮閉部、1 を開口部としたパターンのマスクを、パルス・レーザー加工により作製した。また、測定データからイメージ像を求めるにあたって、逐次近似画像解析法によるプログラムを作成している。

発表論文 List of Publications

- I-1 池田修悟・岩本遥貴・河智史朗・青山拓也 (広島大)・大串研也 (東北大)・小林寿夫「圧力下核共鳴前方散乱実験による梯子型鉄系化合物の磁性と超伝導」日本物理学会 2024 年 年次大会 (2024 年 9 月 北海道大学)
- I-2 齋藤一輝 (岩手大)・脇倉和平 (岩手大)・中村光輝 (岩手大)・吉澤正人 (岩手大)・池田修悟・小林寿夫・中西良樹 (岩手大)「鉄系超伝導体 EuFe_2As_2 の磁場中伝導特性測定」日本物理学会 2024 年 年次大会 (2024 年 9 月 北海道大学)
- I-3 池田修悟・岩本遥貴・高見颯汰・河智史朗・小林寿夫「 ^{57}Fe 核共鳴前方散乱実験による外部磁場に対する EuFe_2As_2 の磁気ドメイン」日本物理学会 2024 年 春季大会 (2025 年 3 月 オンライン)
- II-1 S. Tsutsui(JASRI), Y. Kobayashi, M. Mizumaki(JASRI), N. Kawamura(JASRI), M.K. Kubo, S. Ikeda, H. Kobayashi, Y. Yoda(JASRI), T. Onimaru(広島大), M.A. Avila(広島大), and T. Takabatake(広島大): Magnetic properties and lattice dynamics in non-doped and Si-doped type-I clathrate $\text{Eu}_8\text{Ga}_{16}\text{Ge}_{30}$ studied by ^{151}Eu Mössbauer effect and magnetic circular dichroism J. Phys. Soc. Jpn. **93** (2024) 084702-1-6.
- II-2 木下勇海・永澤延元 (JASRI)・池田修悟・河智史朗・増田 亮 (弘前大)・依田芳卓 (JASRI)・中村優貴 (名古屋大)・榊原祐弥 (名古屋大)・米山祐樹 (名古屋大)・横尾恭真 (名古屋大)・金井辰也 (名古屋大)・出口和彦 (名古屋大)・小林寿夫「価数揺動 Au-Al-Yb 1/1 近似結晶の低温・高圧力下放射光 ^{174}Yb メスバウアー分光 III」日本物理学会 2024 年 年次大会 (2024 年 9 月 北海道大学)
- II-3 木下勇海・池田修悟・河智史朗・永澤延元 (JASRI)・増田 亮 (弘前大)・河口 沙織 (JASRI)・門林 宏和 (JASRI)・森 一広 (KEK)・中村優貴 (名古屋大)・榊原祐弥 (名古屋大)・米山祐樹 (名古屋大)・横尾 恭真 (名古屋大)・金井辰也 (名古屋大)・出口和彦 (名古屋大)・小林寿夫「 Au-Al-Yb 準結晶における圧力に対して強固な量子臨界性の原因解明」第 29 回準結晶研究会 (2025 年 1 月 大阪大学)
- II-4 木下勇海「放射光 ^{174}Yb メスバウアー分光で探る Au-Al-Yb 準結晶・近似結晶の Yb イオン電子状態」第 18 回 SPRUC 核共鳴散乱研究会 (2025 年 3 月 名古屋工業大学)

- III-1 河智史朗「ラボスケール小型パルス磁場装置を活用した微視的・巨視的物性実験」日本物理学会 2024 年 年次大会 一般シンポジウム講演 (2024 年 9 月 北海道大学)
- III-2 池田暁彦 (電通大)・野田孝祐 (電通大)・新堀琴美 (電通大)・田中智也 (電通大)・関健汰 (電通大)・石井裕人 (東大物性研)・矢島健 (東大物性研)・周旭光 (東大物性研)・彭詩悦 (東大物性研)・松田康弘 (東大物性研)・久保田雄也 (理研)・井上伊知郎 (理研)・犬伏雄一 (理研,JASRI)・登野健介 (理研,JASRI)・矢橋牧名 (理研,JASRI)・巖正輝 (理研 CEMS)・G. Kamini (理研 CEMS)・佐藤桂輔 (茨城高専)・赤木暢 (東北大金研)・河智史朗「ポータブル装置 PINK-02 による 120 テスラの発生と XFEL 低温粉末回折実験法の開発」日本物理学会 2024 年 年次大会 (2024 年 9 月 北海道大学)
- III-3 中尾隆人 (東大物性研)・河智史朗・室賀美香 (山梨大工)・森山拓真 (山梨大工)・上野慎太郎 (山梨大工)・藤井一郎 (山梨大工)・和田智志 (山梨大工)・山浦淳一 (東大物性研)「全有機 (反) 強誘電体 MDABCO(NH₄)X₃ (X =I, NO₃) の構造と物性」日本物理学会 2024 年 春季大会 (2025 年 3 月 オンライン)
- IV-1 A. Koizumi, S. Tsutsui(JASRI), J. Jatmika(静岡大), N. Tsuji(JASRI), M. Tokii(筑波大), M. Matsumoto(筑波大), and T. Ebihara(静岡大) Visual Indication of Electronic Structures in CeIn₃ Depending on Temperature: A Compton Scattering Study J. Phys. Soc. Jpn. **94** (2025) 034704-1-6.
- IV-2 小泉昭久「磁気コンプトン散乱を用いた物性研究 KEK・AR, SPring-8, New SUBARU における実験 と LCS ガンマ線源への期待」RARis 研究会 C038「加速器を用いたガンマ線ビームの生成、基礎科学と産業分野への利用」 (2024 年 9 月 東北大学)
- V-1 小泉昭久・大塚悠生・水野勇希 (JASRI)・辻 成希 (JASRI)「高エネルギー X 線コンプトン散乱に符号化開口マスクを適用したイメージング測定法の開発」日本物理学会 2024 年 年次大会 (2024 年 9 月 北海道大学)
- V-2 小泉昭久・鈴木宏輔 (群馬大)「コンプトン散乱研究会の活動 2024」SPring-8 シンポジウム 2024 (2024 年 9 月 九州大学)
- V-3 小泉昭久・大塚悠生・水野勇希 (JASRI)・辻 成希 (JASRI)「SPring-8 BL08W における符号化開口マスクを用いたコンプトン散乱イメージング測定法」日本放射光学会 第 38 回年会 (2025 年 1 月 つくば国際会議場)

物質科学専攻

博士前期課程

大西 秀弥 La-Co 共置換型 M 型 Sr フェライトの磁気異方性増強と Co 置換サイトとの
相関に関する ⁵⁷Fe メスバウアー分光法による研究

科学研究費補助金等

- 1 文部科学省科学研究費補助金 基盤研究 (A)
研究課題 多席化合物六方晶フェライトにおける能動的サイト選択置換による
革新的磁性材料開発
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 低温・高圧力下鉄系超伝導体の軌道・スピン秩序の直接観測による超伝導
発現機構の研究
研究代表者 小林寿夫
- 3 JFE21 世紀財団・技術研究助成
研究課題 符号化開口マスクを用いた (磁気) コンプトン散乱イメージング測定法の開発
研究代表者 小泉昭久