

## スピン 1/2 テトラマー物質 $\text{Cu}_2^{114}\text{Cd}^{11}\text{B}_2\text{O}_6$ の磁気励起 Magnetic excitations in the spin-1/2 tetramer substance $\text{Cu}_2^{114}\text{Cd}^{11}\text{B}_2\text{O}_6$

長谷正司<sup>1</sup>、松本正茂<sup>2</sup>、中島健次<sup>3</sup>、河村聖子<sup>3</sup>、川北至信<sup>3</sup>、菊地龍弥<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 物材機構、<sup>2</sup> 静岡大学、<sup>3</sup> J-PARC センター

$\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$  は、 $J_1S_2S_3 + J_2(S_1S_2 + S_3S_4)$  で表されるスピン 1/2 のテトラマーが弱く結合したスピン系を持つ[1,2]。  $J_1 = 27.3 \pm 1.0$  meV (反強磁性)、 $J_2 = -14.0 \pm 1.4$  meV (強磁性) である。スピン 1 重項基底状態と 3 重項第 1 励起状態のエネルギー差(スピンギャップ)は 1.6 meV であるのに対して、基底状態と第 2 励起状態とのエネルギー差は 23.6 meV と大きい。よって、低エネルギー領域では、スピンダイマーのような 1 重項-3 重項系と見なせる。

1 重項-3 重項系で磁気秩序が起こる場合、量子効果による磁気モーメントの短縮があるので、南部・ゴールドストーンモード(横モード)に加えて、ヒッグスモード(縦モード)励起が現れることが理論的に分かっている。 $\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$  では、 $T_N = 9.8$  K 以下で反強磁性秩序が現れる。アマテラス分光器を用いて、粉末試料の磁気励起を測定した。

図 1 に実験(a)と計算(b)結果を示す[3]。両者の比較から、主要な磁気励起は南部・ゴールドストーンモードであるが、3 meV 以上の励起には、ヒッグスモードが含まれていることが分かった。

ダイマーのようなクラスターをベースにした系で、磁気秩序を発現させるためには、クラスター間相互作用の絶対値の総和がスピンギャップ以上でなければならない。ダイマーでは、主相互作用の値 = スピンギャップなので、この状況を実現することは容易でない。一方、反強磁性の  $J_1$  と強磁性の  $J_2$  を持つテトラマーでは、 $J_1$  と  $J_2$  に比べてスピンギャップは小さくなる。よって、磁気秩序が起こり易い。実際、 $\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$  では冷やすだけで磁気秩序が現れる。よって、テトラマーはヒッグスモードを研究するためには適したスピン系である。

[1] M. Hase et al., Phys. Rev. B 72, 172412 (2005).

[2] M. Hase et al., Phys. Rev. B 80, 104405 (2009).

[3] M. Hase et al., Phys. Rev. B 92, 184412 (2015).

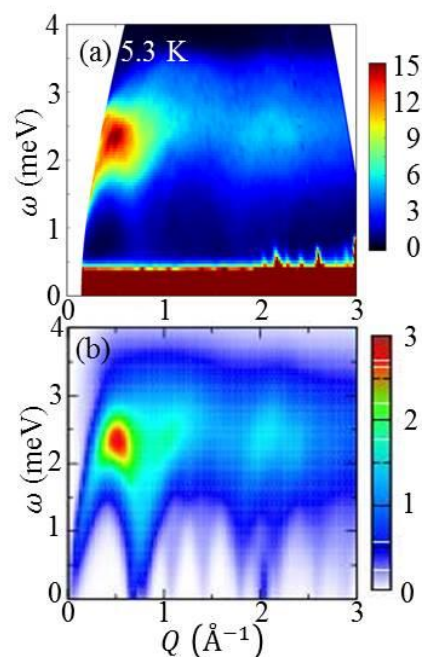


図 1 非弾性中性子散乱強度マップ。(a) $\text{Cu}_2^{114}\text{Cd}^{11}\text{B}_2\text{O}_6$  粉末の 5.3K での実験結果。(b)計算結果。

# 共鳴軟・硬 X 線散乱による マルチフェロイック物質 $\text{SmMn}_2\text{O}_5$ の研究

## Resonant soft and hard X-ray scattering study of Multiferroic $\text{SmMn}_2\text{O}_5$

石井祐太<sup>1</sup>, 御手洗誠<sup>1</sup>, 坂倉輝俊<sup>1</sup>, 堀尾哲<sup>1</sup>, 野田幸男<sup>1</sup>, 木村 宏之<sup>1</sup>,  
本田孝志<sup>2</sup>, 中尾裕則<sup>2</sup>, 村上洋一<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東北大多元研, <sup>2</sup> KEK

マルチフェロイック物質  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  ( $R = \text{Y}, \text{Bi}$ , 希土類元素) は、強誘電性と反強磁性が共存する物質である。さらに希土類元素を変えることで、磁性や誘電性において様々な性質を示すことが知られている。一方で  $R = \text{Sm}$  の場合には、 $\text{Sm}$  は大きく中性子を吸収するためこれまで微視的な磁性の情報が得られておらず、強誘電性と磁性の関係は明らかにされてこなかった。本研究では、共鳴軟・硬 X 線散乱実験を  $\text{Sm } M, L_{\text{III}}$  端,  $\text{Mn } K, L$  端,  $O$   $K$  端近傍において行い、 $\text{SmMn}_2\text{O}_5$  の微視的な磁性について調べた。

図 1 に、本研究で決定された  $\text{SmMn}_2\text{O}_5$  の誘電・磁気相図を示す。 $\text{Sm } L_{\text{III}}$  端や  $\text{Mn } K$  端での硬 X 線共鳴散乱により、低温相 ( $T < 26 \text{ K}$ ) において  $\text{Sm}$  と  $\text{Mn}$  の磁気モーメントは磁気伝搬ベクトル  $\mathbf{q}_M = (1/2, 0, 0)$  で反強磁性的秩序を持つことが明らかになった。この相では、散乱強度のアジマス角依存性から  $\text{Sm}$  と  $\text{Mn}$  の磁気モーメントは  $c$  軸方向を支配的に向くことが判明した。他の  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  系では  $\text{Mn}$  のモーメントは  $a$  軸方向を支配的に向くことから、 $\text{SmMn}_2\text{O}_5$  は特異的な磁気構造を持つことが分かる。また、 $\text{Mn } L_{\text{III}}$  端での軟 X 線共鳴散乱により、中間相 ( $26 \text{ K} < T < 34 \text{ K}$ ) において  $\text{Mn}$  の磁気モーメントが  $\mathbf{q}_M = (1/2, 0, 1/3 + \delta)$  で配列することも判明した。この相では  $\text{Sm } M$  端で強度が観測されず、 $\text{Mn}$  のみ磁気秩序を形成していることが示唆される。さらに  $O$   $K$  端における測定により、酸素も低温相で反強磁性的なスピン偏極を起こしていることが判明した。この相での、 $O$   $K$  端でのエネルギースペクトルから  $\text{SmMn}_2\text{O}_5$  では  $\text{Sm}$  と  $O$  の  $2p$ - $4f$  軌道混成により酸素サイトがスピン偏極を起こしている可能性が示唆された。また、誘電測定により、これらの磁気相転移と同時に強誘電相転移が起こることも確かめられている。講演では、これらの詳細な結果を報告し、 $\text{SmMn}_2\text{O}_5$  の強誘電性の起源について議論を行う。

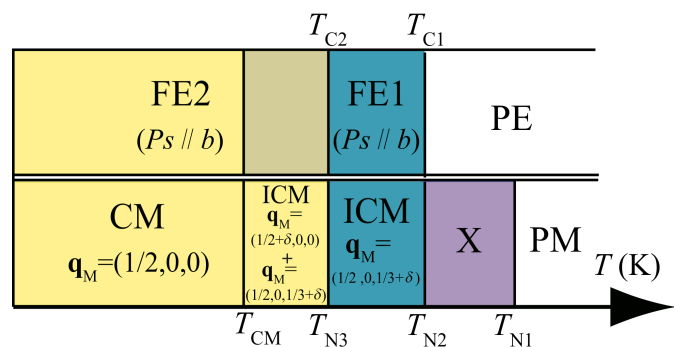


図 1.  $\text{SmMn}_2\text{O}_5$  の誘電(上段)・磁気相図(下段)。

## 絶縁体スピントロニクス物質 $Y_3Fe_5O_{12}$ の磁気励起 Magnetic excitations of the spintronics insulator $Y_3Fe_5O_{12}$

沖野友貴<sup>1</sup>、南部雄亮<sup>2</sup>、加倉井和久<sup>3</sup>、John M. Tranquada<sup>4</sup>、Barry Winn<sup>5</sup>、  
Melissa Graves-Brook<sup>5</sup>、吉川貴史<sup>1</sup>、塩見雄毅<sup>2,6</sup>、齊藤英治<sup>2,3,6,7</sup>、藤田全基<sup>2</sup>

1 東北大院理、2 東北大金研、3 JAEA、  
4 BNL、5 ORNL、6 ERATO、7 東北大 WPI

電子の持つ電荷の自由度だけでなく、スピンの自由度にも着目したスピントロニクスの研究において、スピン流が大きな注目を集めている。特に電荷の流れを伴わないスピン流は、ジュール熱を発生しないため、微細デバイス等への応用が期待されている。2008年に報告されたスピンゼーベック効果(SSE)は、強磁性金属と常磁性金属薄膜を接合した系に温度勾配を印加することで、接合界面にスピン流が生成される現象である<sup>[1]</sup>。さらに SSE は磁性絶縁体である  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG) を用いても発現することが明らかとなっており<sup>[2]</sup>、Pt/YIG 接合系は絶縁体を用いた熱電発電機構として盛んに研究されている。

磁性絶縁体における SSE は伝導電子に由来しないものであり、フェリ磁性体である YIG の磁気的な性質と深く結びついている。Pt/YIG 接合系における SSE 機構解明のため、YIG の磁気励起を調べた理論計算からは、マグノンの光学モードの温度依存性が SSE に重要であることが示されている<sup>[3]</sup>。YIG はガーネット構造を有するフェリ磁性体としてよく知られているが、その磁気励起を観測したものは 1970 年代の三軸分光器による中性子非弾性散乱による報告に限られている<sup>[4]</sup>。今回我々は、従来の定常炉三軸分光器に比べ、より効率的に広範囲の  $(Q, \omega)$  空間での測定が可能なパルス中性子源チョッパ型飛行時間分光器を使用し、35–450 K までの温度範囲で中性子非弾性散乱実験を行った。実験は、FZ 法により YIG の大型単結晶を 3 本、合計 23 g 合成し、アメリカ合衆国オークリッジ国立研究所の核破碎中性子源、BL-14B HYSPEC で行った。観測した磁気励起は先行研究の結果とおおよそ整合しているが、先行研究では報告されていない励起の測定にも成功した。本発表では測定した磁気励起について紹介し、SSE の機構や温度変化について議論を試みる。

---

[1] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nature* **455**, 778 (2008).

[2] K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 172505 (2010).

[3] J. Barker, unpublished results.

[4] J.S. Plant, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **10**, 4805 (1977).

酸素・還元アニールによる電子ドーピング型高温超伝導体母物質  
 $\text{Pr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{4+\delta}$  ( $x = 0, 0.6$ )の構造変化  
Structural change in parent material of  
 $n$ -type cuprate superconductor  $\text{Pr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{4+\delta}$  ( $x = 0, 0.6$ )  
via oxidation and reduction

御手洗誠<sup>1,2</sup>, 坂倉輝俊<sup>2</sup>, 木村宏之<sup>2</sup>, 浅野駿<sup>1,3</sup>, 堤健之<sup>1,3</sup>, 藤田全基<sup>3</sup>,  
鬼柳亮嗣<sup>4</sup>, 岸本俊二<sup>5</sup>

1 東北大院理, 2 東北大多元研, 3 東北大金研,  
4 J-PARC センター, 5 KEK 物構研

電子ドーピング型高温超伝導体は、as-grown 試料を還元アニールすることで、はじめて超伝導を発現する。そのため、還元の前後での構造変化を知ることが重要であると考えられている。先行研究では、Cu 近傍に過剰酸素があり、還元アニールによって、それが取り除かれるという報告がある[1]。また一方で、還元後の試料から析出相  $\text{RE}_2\text{O}_3$  が出現するという報告[2]があり、それによって as-grown 状態に存在した Cu 欠損が解消され、超伝導発現に最適な  $\text{CuO}_2$  面が形成されるという報告もある[3]。このような還元前後の構造変化は、可逆的であると考えられているが、還元試料を再酸化した試料の結晶構造が、as-grown 状態に一致するかは明らかではない。

以上を踏まえ、電子ドーピング型超伝導体母物質である  $\text{Pr}_{2-x}\text{La}_x\text{Cu}_2\text{O}_4$  ( $x = 0, 0.6$ ) (以下、PCO, PLCO)についての酸素・還元アニール前後での構造変化を単結晶 X 線構造解析によって調べた。格子定数測定は、実験室系の 4 軸回折計を用いて行い、構造測定は KEK-PF BL14A の 4 軸回折計を使用した。

各方向の格子定数は、as-grown 状態から還元アニールすると伸び、そこから更に酸素アニールすると再び縮み、as-grown 状態とよく一致した。結晶構造は、各試料において信頼度因子が 1~1.5% 前後の極めて高い精度で解析できた。Pr 周辺には、1 サイトモデルでは説明できない正の残渣電子密度が見られ、2 サイトに分割したモデルで説明できた。このモデルから、as-grown 状態では異なる PrO 層が 2 相共存しており、還元アニールによってほぼ単一の PrO 層になることが新たに分かった。また先行研究同様、還元アニールによる Cu 欠損の解消や、析出相  $(\text{Pr}, \text{La})_2\text{O}_3$  の出現も確認できた。更に、これらの構造変化は、還元前後で可逆的であることも確認できた。一方過剰酸素は、上記の精度で解析できたにも関わらず、確認することができなかった。

[1] P. G. Radaelli *et al.*, Phys. Rev. B **49**, 15322-15326, (1994).

[2] H. Kimura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 2282-2286, (2005).

[3] H. J. Kang *et al.*, Nature Mat. **6**, 224 (2007).

# モンテカルロ法による CTR 散乱の解析ソフトウェア 開発

## Development of Software for analyzing CTR scattering with Monte Carlo method

穴田壮人<sup>1</sup>、中西(大野)義典<sup>2</sup>、岡田真人<sup>2</sup>、木村剛<sup>1</sup>、若林裕助<sup>1</sup>  
1 阪大基礎工、2 東大新領域

近年、強相関酸化物をベースにした量子井戸などの人工構造を用いて、物性の設計・制御を行う研究がさかんになっている[1]。現状では、設計どおりの膜ができていると仮定して物性の議論が行われているが、手軽な分析法を用いて薄膜の構造解析を行うことができれば、この分野の研究の大きな進歩が期待できる。

CTR 散乱法は表面構造解析の有力な手法ではあるが、最小二乗法による構造精密化に入る前の、初期構造モデルの構築に多大な労力を要している。この問題を解消するためにホログラフィを含め、多くの手法が試みられてきた[2]。本研究で我々はペロブスカイト 001 基板上的のエピタキシャル膜を対象を限定し、モンテカルロ法を用いたソフトウェア開発を行った。解析例を図に示す。以前は一年近くかかっていた解析と同等の結果を 2 日で得ることができた。今回はソフトの性能に加えて、実験データのノイズが与える解析結果への影響を調査した結果の報告も行う。

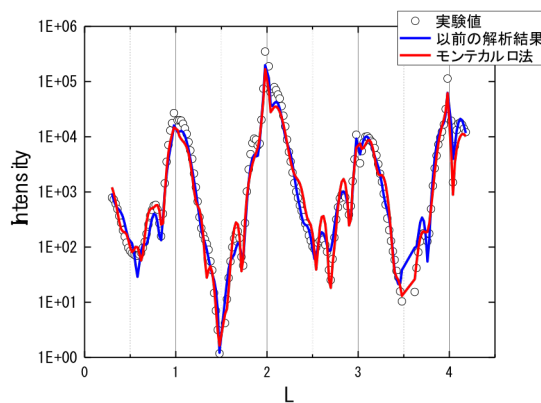


図: 実験強度データ[3]および解析結果

### 参考文献

- [1] K. Yoshimatsu *et al.*, Science **333**, 319 (2011).
- [2] M. Sowwan *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 205311 (2002).
- [3] R. Yamamoto *et al.*, Phys. Rev. Lett **107**, 036104 (2011).

## 近藤絶縁体 YbB<sub>12</sub> (001)表面の角度分解光電子分光

### ARPES of a Kondo insulator YbB<sub>12</sub>(001) surface

萩原健太<sup>1</sup>, 大坪嘉之<sup>1,2</sup>, 岸潤一郎<sup>1</sup>, 松波雅治<sup>3</sup>, 出田真一郎<sup>3</sup>,  
田中清尚<sup>3</sup>, J. Rault<sup>4</sup>, P. Le Fèvre<sup>4</sup>, F. Bertran<sup>4</sup>, A. Taleb-Ibrahimi<sup>4</sup>,  
湯川龍<sup>5</sup>, 小林正起<sup>5</sup>, 組頭広志<sup>5</sup>, 伊藤孝寛<sup>6</sup>, 宮崎秀俊<sup>7</sup>, 伊賀文俊<sup>8</sup>,  
木村真一<sup>1,2</sup>

1 阪大理、2 阪大生命、3 UVSOR、4 Synchrotron SOLEIL、  
5 KEK、6 名大工、7 名工大工、8 茨城大理

YbB<sub>12</sub>は典型的な近藤絶縁体として知られており[1]、バルク電子構造に関してこれまで数多くの研究が行われてきた。最近になって、この物質はトポロジカル近藤絶縁体(TKI)であると理論的に予測され、その表面電子構造に注目が集まっている。しかしながら、単結晶表面の清浄化が困難であるため、表面電子構造を観測できる角度分解光電子分光(ARPES)は、これまで殆ど行われていない[2]。今回、我々は超高真空下で1400°Cまで加熱することにより清浄表面を得ることができると見出し、このようにして得られたYbB<sub>12</sub>単結晶(001)表面の電子状態をARPESによって観測することに成功したので報告する。

ARPES測定はUVSOR(BL7U)、KEK(BL2A)およびSOLEIL(CASSIOPEE)で行った。図1は、 $\Gamma$ 点近傍の[100]に沿った方向のARPESイメージである。SからF<sub>dn</sub>に至るバンドは、伝導帯と局在4fバンドとの混成(c-f混成)であり、それより低結合エネルギーに、バルクのバンド計算[3]では予測されていない表面バンド(FとF<sub>up</sub>)およびフェルミ準位を横切る金属的なバンドが観測された。このような金属バンドは、理論的に予測されているTKI表面のトポロジカル表面状態であると考えられる。

当日は、内殻光電子分光の測定結果から考えられる表面の終端状況についても議論する。

[1] M. Kasaya *et al.*, JMMM, **31-34**,437 (1983).

[2] Y. Takeda *et al.*, PRB **73**, 033202 (2006).

[3] T. Saso *et al.*, JPSJ **72**,1131 (2003).

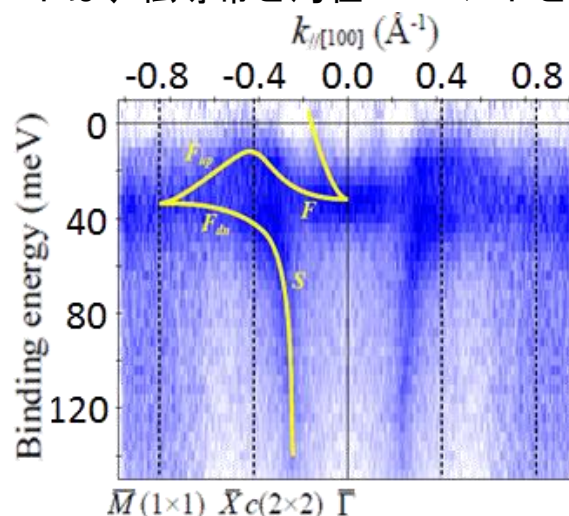


図1 YbB<sub>12</sub>(001)表面のARPESイメージ。  
励起エネルギー $h\nu$  53.5 eVで測定。

# T'構造銅酸化物 $\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_{4+\delta}$ の室温における 高エネルギー磁気励起スペクトル

## High energy spin excitation spectrum of T'-cuprate $\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_{4+\delta}$ at room temperature

浅野駿<sup>A</sup>, 鈴木謙介<sup>B</sup>, 佐藤研太郎<sup>A</sup>, Matthew Stone<sup>C</sup>,  
Lisa DeBeer-Schmitt<sup>C</sup>, 藤田全基<sup>B</sup>  
東北大院理<sup>A</sup>, 東北大金研<sup>B</sup>, オークリッジ国立研究所<sup>C</sup>

T'構造銅酸化物超伝導体  $R_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$  ( $R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu} \dots$ ) は Ce 置換と同時に還元アニール処理を行うことで超伝導が発現することが知られている。ところが薄膜試料では、適切な還元アニール処理をした元素置換しない母物質で超伝導の発現が報告された[1]。また T'構造物質に対して行われた第一原理計算で、母物質の基底状態が金属であることが示され、Mott 絶縁体となる T 構造とは基底状態が異なることが指摘された[2]。これらは、諸物性の電子・ホール対称性の議論には、結晶構造の違いを考慮する必要があることを示唆している。

我々は、T'構造  $\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_{4+\delta}$  の as-grown 試料の基底状態を明らかにするため、オークリッジ国立研究所のビームライン SEQUOIA において中性子非弾性散乱実験を行い、高エネルギー領域までの磁気励起スペクトルを観測した。さらに、スペクトルの温度変化を調べた。

図に  $\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_{4+\delta}$  の as-grown 試料の 12K と 300K の高エネルギー磁気励起スペクトルの比較図を示す。スペクトルの温度変化はごく微量であり、磁気励起スペクトルは Cu の局在スピンの Cu - O - Cu の超交換相互作用を起因とした 2 次元反強磁性 Heisenberg 模型でよく表せることが分かった。本発表では、さらなる定量的な解析結果から、 $\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_{4+\delta}$  as-grown 試料の磁気基底状態を議論する。

[1] A. Tsukada *et al.*, Solid State Commun. **133**, 427 (2005).

[2] C. Weber *et al.*, Nature Phys. **6**, 574 (2010).

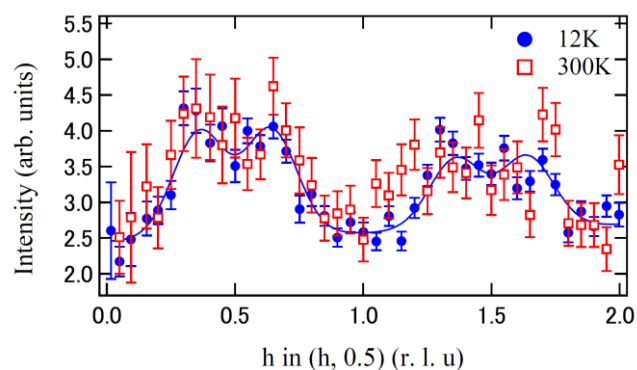


図 :  $\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_{4+\delta}$  as-grown 試料の  $200 \pm 10 \text{meV}$  における高エネルギー磁気励起スペクトル。12K と 300K の磁気励起スペクトルを比較している。

# ホールドーピング系銅酸化物高温超伝導体における 磁気励起精密測定 Precise Measurements of Magnetic Excitations in Hole-doped Copper Oxide Superconductor

佐藤研太郎<sup>1</sup>, 松浦直人<sup>2</sup>, 池内和彦<sup>2</sup>, 梶本亮一<sup>3</sup>, 脇本秀一<sup>4</sup>, 藤田全基<sup>5</sup>  
東北大院理<sup>1</sup>, CROSS<sup>2</sup>, J-PARC<sup>3</sup>, JAEA<sup>4</sup>, 東北大金研<sup>5</sup>

ホールドーピング系銅酸化物高温超伝導体において、「砂時計型」と呼ばれる特異な磁気励起分散が観測されている。この励起構造は、低エネルギー領域において格子非整合(IC)位置 $(0.5, 0.5 \pm \delta)$ ,  $(0.5 \pm \delta, 0.5)$ でピークを持ち、エネルギー上昇に伴い $(0.5, 0.5)$ へ向けて IC ピークが集中、あるエネルギー( $= E_{\text{cross}}$ )で一つのピークとなった後、さらに高エネルギーでは母物質の反強磁性スピン波のようにリング状となりゾーン境界へ広がっていく。近年、この分散は  $E_{\text{cross}}$  を境として起源の異なる2成分から構成されていることが実験的に示唆されつつある。<sup>1</sup>しかしながら、間接証拠ばかりであり、直接的に2成分の境界・クロスオーバーを観測した例はない。そこで今回、詳細なスペクトル解析から2成分説に対して直接的な実験証拠を示し、その起源を解明することを目的としてこれまでにないほどの精密条件下で中性子非弾性散乱測定を BL01 で実施したのでその結果を報告する。図 1(a - c), (g)は得られた  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ( $x = 0.16$ )の磁気励起スペクトルである。本測定によって、低エネルギー領域の IC 励起構造は非常に急峻であることが判明した。IC 励起成分と $(0.5, 0.5)$ 上の格子整合(C)励起成分の重ね合わせを仮定することで 60 meV 以下の励起スペクトル形状を良く再現することに成功した。(図 1 (d - f))本学会では詳細なスペクトル解析と温度変化の結果を報告し、励起起源について議論を行う。

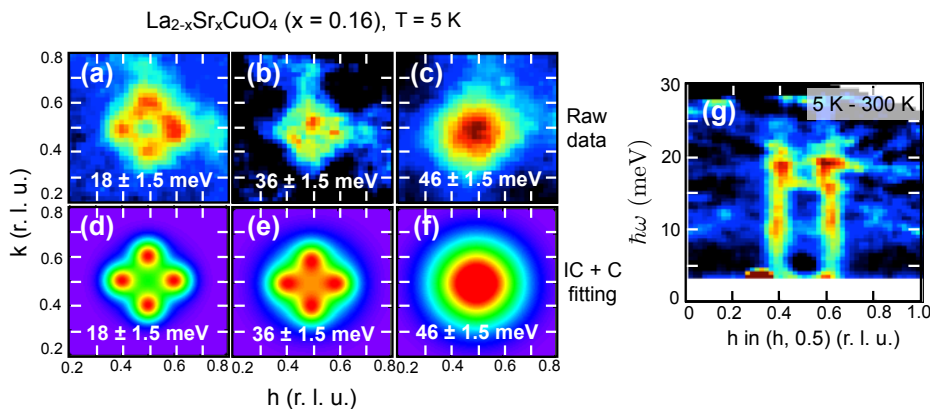


図 1: (a - c)  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ( $x = 0.16$ )における磁気励起スペクトルのエネルギー一定スライス, (d - f) 格子非整合(IC)成分と格子整合(C)成分の重ね合わせを仮定したスペクトルフィッティング結果, (g) 縦軸をエネルギー、横軸を $(0.5, 0.5)$ を通る  $h$  方向に取ったスライス図

<sup>1</sup> D. Reznik, *et. al.*, PRB. **78**, 132503 (2008)



# PILATUSを利用するCo/Pd多層膜のX線磁気回折実験

## X-ray Magnetic Diffraction Experiments on Co/Pd Multilayers by using PILATUS

高嶋雅仁<sup>1</sup>、大沢冬樹子<sup>1</sup>、加藤康平<sup>1</sup>、土屋大河<sup>2</sup>、吉田司<sup>2</sup>、  
下山秀文<sup>1</sup>、平野馨一<sup>3</sup>、鈴木宏輔<sup>1</sup>、桜井浩<sup>1</sup>、伊藤正久<sup>1</sup>

1:群馬大大学院理工学府、2:群馬大理工学部、3:物質構造科学研究所

X線磁気回折(X-ray Magnetic Diffraction、以下 XMD)は、強磁性体を対象に楕円偏光X線を用いた非共鳴型X線磁気ブラッグ散乱の一種であり、磁気構造因子のスピンの軌道モーメントの各成分を分離して測定できる実験方法である。従来の XMD 実験の多くは、単結晶試料を対象に、白色X線と Ge 半導体検出器(単一素子)を用いて行われてきたが、今回 XMD 実験を多層膜試料へ適用することを目論んだ。単結晶試料の回折像はスポット状であり、半導体検出器の検出範囲(直径 8mm の円内)にとどまるが、多層膜試料の回折像はより広範囲に及び、この検出範囲では全体を捉えられず、ゆえに測定統計誤差が非常に大きくなるという弊害があった<sup>1)</sup>。そこで、多層膜の広い回折像を捉えるために 83.8mm × 33.5mm の検出範囲をもつ二次元多素子検出器である PILATUS-100K を用いることとした。先ず、STARS を利用して PILATUS、電磁石、回折計を統合して制御する XMD 測定プログラムを整備した<sup>2)</sup>。

今回の XMD 実験で用いた試料は、群馬大学高度人材育成センター(HRCC)所蔵の高周波スパッタ装置で作製された Co(8Å)/Pd(32Å)である。400 層程度積層し、膜厚は約 3μm であった。試料の蛍光X線を抑えるために単色法を採用することとし、Si(111)二結晶モノクロメータによって白色X線を単色化し試料への入射X線とした。蓄積リングの電子軌道面から斜め上(下)方向に放射される左(右)回り楕円偏光を利用した。実際の試料位置は軌道面から上(下)方向に 0.5mm であった。本多層膜のFCC構造に由来する 222 回折(散乱角が 90°となるように入射X線の波長を調整した)像を PILATUS にて測定した。20 秒間隔の磁場反転毎に回折像を取り込み、磁場反転に起因するX線回折強度の相対変化(Flipping Ratio)を測定した。詳細はポスターにて報告する。

1) 下山秀文 平成 26 年度 群馬大学大学院 修士論文(2015)

2) 加藤康平他 量子ビームサイエンスフェスタ(2016)

## パイロクロア型ニオブ酸化物における all-in 型四面体変位構造の観測

### Observation of the all-in type tetrahedral structure in pyrochlore structure

鳥越秀平<sup>1</sup>、池田一貴<sup>2</sup>、中尾裕則<sup>2</sup>、大友季哉<sup>2</sup>、松村大樹<sup>3</sup>、西畑保雄<sup>3</sup>、  
樹神克明<sup>3</sup>、富安啓輔<sup>4</sup>、野上由夫<sup>5</sup>、池田直<sup>5</sup>、花咲徳亮<sup>1</sup>

1 阪大院理、2 KEK、3 原研、4 東北大院理、5 岡大院自然

パイロクロア酸化物においてスピナイス状態が盛んに研究され、特異的な磁気散漫散乱が観測されている。我々は、この状態に類似した“原子変位型アイス・電荷アイス”等の発見を目指し、変位・電荷に起因した散漫散乱と局所構造を研究している。隣接遷移金属サイトでの軌道混成は、格子ひずみや多量体形成(変位型アイス)を実現する可能性もある。そこで、パイロクロア型ニオブ酸化物  $A_2\text{Nb}_2\text{O}_7$  ( $A=\text{Y}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}, \text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}$ ) に着目した。

$A=\text{Y}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}$  では粉末中性子回折によって Nb 原子が四面体中心に向かって内側か外側へ変位する、“ダイポールアイス”状態が指摘された[1]。さらに、電子線回折によって Nb 変位に伴う散漫散乱は短距離秩序であることを示しているが、変位パターンは確定していなかった。

我々は、この短距離秩序を明らかにするため、散漫散乱の X 線回折実験(PF BL-4C)に加え、二体相関によって局所構造解析を行うことができる PDF と EXAFS 解析を行っている[2]。まず、J-PARC(BL21 NOVA)で行った粉末中性子回折から得られる PDF 解析(Fig.1 (a))によって Nb 四面体の変位構造を決定し、all-in 型の Nb 変位を見出した(Fig.1 (b))。この結果は、EXAFS、共鳴軟 X 線回折(PF BL-11B)の実験とも良い一致を示した。また、この all-in 変位は軌道混成によるエネルギー安定化に由来しており、本物質が非磁性である事とも一致している[3]。

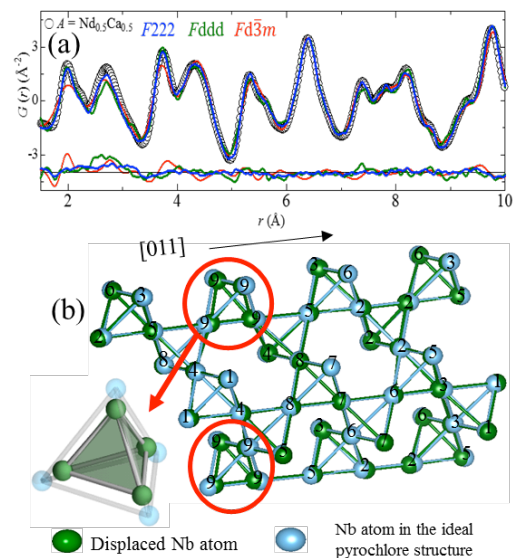


Fig.1 (a) 空間群を  $F222$  と  $Fddd$  と  $Fd-3m$  と仮定した場合の PDF 解析、(b) 決定された Nb 四面体変位構造、赤丸内は all-in 型の変位

[1] T. M. McQueen, *et al.*, J. Phys.:Condens. Matter **20**, 235210 (2008).

[2] S. Torigoe, *et al.*, Phys. Rev. B, accepted in Dec. 2015.

[3] P. Blaha, *et al.*, Phys. Rev. Lett., **93**, 216403 (2004).

## Substitution effect on magnetic excitation of $\text{RBaFe}_4\text{O}_7$ ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Ho}$ ) spin frustrated system — Inelastic neutron scattering —

*K. Kamazawa*<sup>1,\*</sup>, *M. Ishikado*<sup>1</sup>, *S. Ohira-Kawamura*<sup>2</sup>, *Y. Kawakita*<sup>2</sup>, *K. Kakurai*<sup>3</sup>, *K. Nakajima*<sup>2</sup>, and *M. Sato*<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Comprehensive Research Organization for Science and Society (CROSS), Tokai, Ibaraki 319-1106, Japan, \*Email: k\_kamazawa@cross.or.jp*

<sup>2</sup>*J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency (JAEA), Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan*

<sup>3</sup>*Quantum Beam Science Center, JAEA, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan*

A cubic ferrite  $\text{RBaFe}_4\text{O}_7$  ( $\text{R} = \text{Y}, \text{Lu}, \text{In}, \text{Sc}, \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Yb}, \text{etc.}$ ) takes mixed valence state of  $\text{Fe}^{2+}$  and  $\text{Fe}^{3+}$  with a number ratio of 3 : 1, and Fe spins form a 3D network of corner-sharing tetrahedra which is a pyrochlore lattice. The nearest-neighbor interaction of  $\text{RBaFe}_4\text{O}_7$  is antiferromagnetic and the spin system is expected to be geometrically frustrated. The system with small R ions keeps cubic symmetry to the temperature ( $T$ ) = 4K so far investigated without any charge ordering.

In our recent result of  $\text{YBaFe}_4\text{O}_7$  [1], the observed inelastic neutron scattering intensity map in the energy ( $\omega$ )–wave vector ( $Q$ ) space shows a streak-like magnetic scattering extending to a rather high- $\omega$  region (up to 80 meV at least by another spectrometer) at the  $Q$  position of  $Q_p \sim 1.25\text{\AA}^{-1}$ , where the width  $\kappa$  and position  $Q_p$  of the streak are found to be insensitive to both  $T$  and  $\omega$ . These results indicate the existence of the short-time spin correlation of Fe hexagons in the pyrochlore lattice, and can be understood by considering the spin fluctuation arising from the purely frustrating nature of three-dimensional classical insulating systems. On the other hand  $\text{HoBaFe}_4\text{O}_7$  shows possible crystal field excitation at  $\omega \sim 0.8$  meV and contrary to our expectation, quasielastic scattering at  $Q = Q_p$ , and the streak-like scattering is absent.

In the presentation, substitution effects on the spin fluctuation of frustrated system free from the quantum effect and low-dimensional nature are given.

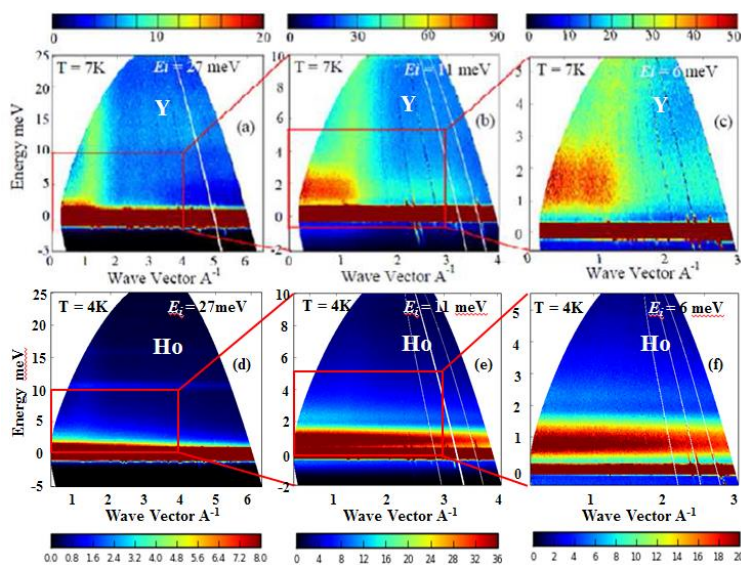


Figure: Inelastic neutron scattering intensity map in the energy ( $\omega$ ) – wave vector ( $Q$ ) space. Neutron measurements were carried out with the spectrometer AMATERAS (BL-14) at MLF of J-PARC). We used multi-incident neutron energies with  $E_i$  of 27.59, 11.66, and 6.389 meV. Top ((a)(b)(c))  $\text{YBaFe}_4\text{O}_7$  ( $T = 7\text{K}$ ), bottom ((d)(e)(f))  $\text{HoBaFe}_4\text{O}_7$  ( $T = 4\text{K}$ ), left ((a)(d))  $E_i = 27\text{meV}$ , middle ((b)(e))  $E_i = 11\text{meV}$ , right ((c)(f));  $E_i = 6\text{meV}$ .

[1] K. Kamazawa, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn* **84**, 104711 (2015)

# バナジウムスピネル酸化物 $\text{CoV}_2\text{O}_4$ の単結晶放射光回折 Single crystal synchrotron X-ray diffraction in spinel vanadate $\text{CoV}_2\text{O}_4$

下野聖矢<sup>1</sup>、石橋広記<sup>1</sup>、佐賀山基<sup>2</sup>、中尾裕則<sup>2</sup>、  
河口彰吾<sup>3</sup>、森茂生<sup>4</sup>、久保田佳基<sup>1</sup>

<sup>1</sup>阪府大院理、<sup>2</sup>KEK-物構研、<sup>3</sup>JASRI、<sup>4</sup>阪府大院工

バナジウムスピネル酸化物  $\text{CoV}_2\text{O}_4$  は  $\text{V}^{3+}$  (B サイト) イオンに軌道自由度を持ち、 $T_1 \sim 150$  K でフェリ磁性転移を起こすことが報告されている<sup>[1]</sup>。類似物質の  $\text{MnV}_2\text{O}_4$  や  $\text{FeV}_2\text{O}_4$  は  $\text{V}^{3+}$  の軌道秩序を伴う構造相転移を起こすのに対し、 $\text{CoV}_2\text{O}_4$  は  $T_2 \sim 50$  K で比熱の異常を伴う相転移が観測されているにもかかわらず、結晶構造は最低温まで立方晶(空間群  $Fd\bar{3}m$ ) のままであると報告されている<sup>[2]</sup>。本研究では、 $T_2$  における相転移の起源を結晶構造の観点から解明することを目的として、 $\text{CoV}_2\text{O}_4$  の単結晶試料を作製し、単結晶放射光回折実験(KEK, PF, BL-4C, 8B) 及び磁化と比熱の温度依存性の測定を行った。

図 1 に磁化と比熱の温度依存性を示す。 $T_1 = 154$  K,  $T_2 = 47$  K で相転移による比熱のピークが観測された。 $T_1$  ではフェリ磁性転移が観測され過去の報告と一致する<sup>[1,2]</sup>。図 2 に X 線回折(BL-4C)により得られた 311 反射(空間群  $Fd\bar{3}m$  における基本反射)と  $6\bar{4}0$  反射(禁制反射)の回折プロファイルの温度依存性を示す。60 K と 40 K の強度を比較すると、311 反射と比べて  $6\bar{4}0$  反射強度が明らかに増加していることが分かる。このような禁制反射の出現は、 $T_2$  において対称性の変化を伴う構造相転移を起こしていることを示唆する。当日は、これらの結果の詳細を報告し、 $\text{CoV}_2\text{O}_4$  の結晶構造解析結果に基づいて  $\text{V}^{3+}$  の軌道状態の変化と  $T_2$  における相転移の相関関係について議論する。

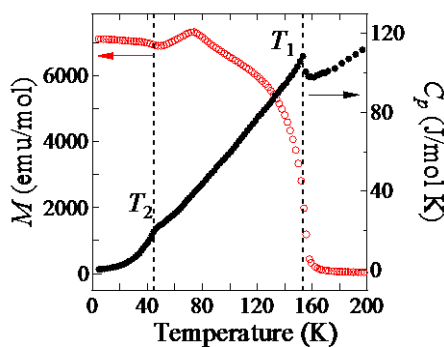


図 1. 磁化と比熱の温度依存性

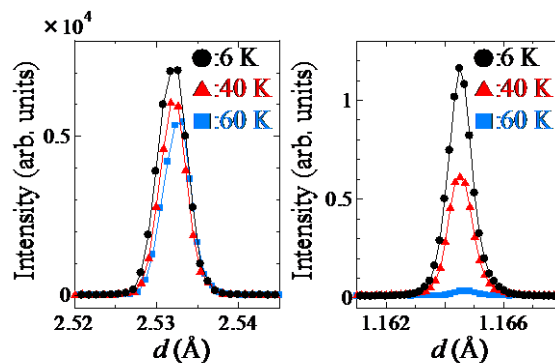


図 2. (左)311 反射, (右)  $6\bar{4}0$  反射の温度依存

[1] Y. Huang *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter* **24** (2012) 056003.

[2] A. Kismarhardja *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **106** (2011) 056602.

## カイラル磁性体 $\text{CsCuCl}_3$ の磁気的カイラリティ Magnetic Chirality in Chiral Helimagnet $\text{CsCuCl}_3$

大石一城<sup>1</sup>, 高阪勇輔<sup>2</sup>, 小山珠美<sup>2</sup>, 加倉井和久<sup>3</sup>, V. Hutanu<sup>4</sup>, T. Brueckel<sup>5</sup>,  
宮本幸乃<sup>2</sup>, 世良文香<sup>2</sup>, E. Proskurina<sup>6</sup>, 小椋隆弘<sup>6</sup>, 幸田章宏<sup>7</sup>, 小嶋健児<sup>7</sup>,  
H. Luetkens<sup>8</sup>, A. Amato<sup>8</sup>, 鈴木淳市<sup>1</sup>, 井上克也<sup>2</sup>, 秋光純<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup>CROSS, <sup>2</sup> 広大院理, <sup>3</sup> JAEA, <sup>4</sup> RWTH Aachen at Heinz Maier-Leibnitz Zentrum,  
<sup>5</sup> Jülich Center for Neutron Science, <sup>6</sup> 青学大理工, <sup>7</sup> KEK-IMSS, <sup>8</sup> PSI

カイラルな結晶構造を有する物質では、交換相互作用とジャロシンスキー・守谷相互作用の拮抗により、片巻きの単一磁区を有するカイラルらせん磁性体が自発的に発現する。しかしながら、現実には結晶構造のカイラリティを制御することは極めて困難であり、試料内に左右のカイラリティドメインが混在するラセミ双晶が形成される。 $\text{CsCuCl}_3$  はカイラルな空間群に属し、らせん磁気構造を形成するため、カイラルらせん磁気構造の形成が期待されている。しかし、本物質は通常の結晶育成手法ではラセミ双晶が形成されるため、これまで行われてきた偏極中性子回折測定で統一的な見解が得られていない。

我々は独自の結晶育成手法により  $\text{CsCuCl}_3$  の結晶カイラリティを単一化することに成功した。本物質の結晶とらせん磁気秩序のカイラリティ結合を検証するため、右手系結晶並びに左手系結晶を用いて、偏極中性子回折測定を J-PARC/MLF TAIKAN 及び FRM-II POLI にて、更にはミュオンスピン回転測定を J-PARC/MLF D1 及び PSI GPS にて行った。偏極中性子回折測定では、入射中性子のスピン偏極方向の反転に伴う磁気衛星反射強度の変化を観測し、 $\text{CsCuCl}_3$  の右手系結晶構造では右巻きのらせん磁気構造、左手系結晶構造では左巻きのらせん磁気構造を形成していることが判明した。一方、ミュオンスピン回転測定では、右手系単結晶及び左手系単結晶で得られた結果が完全に一致することから、各々の結晶の磁気構造が鏡像関係にあり、中性子実験結果と矛盾しない結果が得られた。更には、実験結果と内部磁場分布シミュレーションとの比較から、磁気モーメントは Cu サイトのみならず Cl サイトにも存在することを示唆した。発表当日は各々の測定結果の詳細を報告する。

## 強磁性半金属 $\text{CrO}_2$ の局所構造解析 Local structural analysis on half metallic ferromagnet $\text{CrO}_2$

樹神克明<sup>1</sup>、池田一貴<sup>2</sup>、武田晃<sup>3</sup>、磯部正彦<sup>4</sup>、伊藤正行<sup>5</sup>、上田寛<sup>6</sup>、  
社本真一<sup>1</sup>、大友季哉<sup>2</sup>

<sup>1</sup>JAEA、<sup>2</sup>KEK 物構研、<sup>3</sup>東大物性研、<sup>4</sup>Max Planck 研、<sup>5</sup>名大理、<sup>6</sup>豊田理研

$\text{CrO}_2$  は 394K 以下で強磁性を示す半金属である。この系はルチル型の結晶構造をもち、ユニットセル中に含まれる2つの Cr サイトは結晶学的に等価である。構造解析からは常磁性相から強磁性相に渡って結晶構造が変化しないことが報告されている[1]。しかし強磁性状態におけるゼロ磁場中 NMR 測定からは価数が異なる[2]、あるいは磁場中 NMR 測定からは 3d 電子の軌道占有状態が異なる 2 つの Cr サイトが存在することが提案されている[3]。これらの結果は通常の構造解析では 1 種類の Cr サイトしかみえないが、局所的には 2 種類の Cr サイトが存在することを示している。そこで我々は J-PARC に設置されている高強度全散乱装置 NOVA を用いて粉末中性子回折実験を行い、得られたデータから原子対相関関数 (PDF) を導出して局所構造を調べた。

図1に強磁性状態 (50 K) で得られた PDF を白丸で示す。図中の 2.7 Å 付近のピークは主に  $\text{CrO}_6$  八面体内の O-O 相関に対応する。空間群  $P4_2/mnm$  をもつ平均構造モデルで計算した PDF を灰色線で示す。計算された PDF は実験結果をおおよそ再現できるものの、2.7 Å 付近のピークの形状がやや合わない。それに対し空間群 P-1 をもち、2つの非等価な Cr サイトを含む局所構造モデルで計算された PDF (黒線) は 2.7 Å 付近のピーク形状をも良く再現できることがわかった。さらに局所構造パラメータから予想される Cr サイトの電子状態や局所構造の相関長についても議論する。

[1] J. Dho et al. Solid State Commun. 150 (2010) 86.

[2] J. Shim et al. Phys. Rev. Lett. 99 (2007) 057209.

[3] H. Takeda et al. preprint.

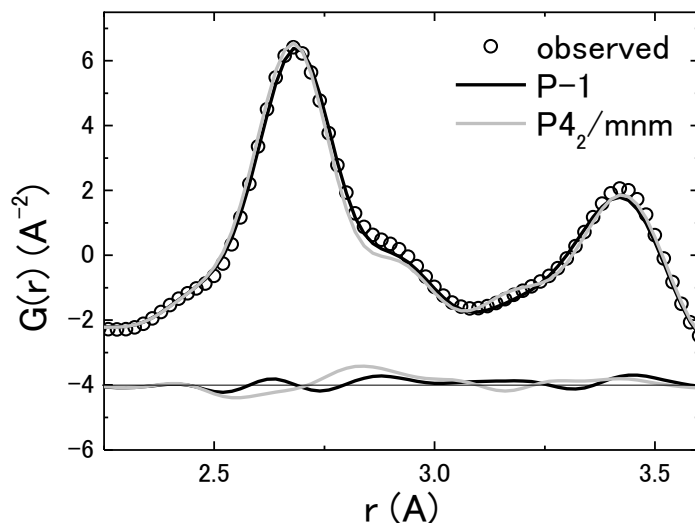


図1 50K で得られた PDF (O) と局所構造モデル (黒線) と平均構造モデル (灰色線) を用いてフィットした結果

# ホールドーピングされた量子スピン鎖 $\text{Nd}_{2-x}\text{Ca}_x\text{BaNiO}_5$ における磁気励起

## Magnetic Excitation of Hole-doped Quantum Chain $\text{Nd}_{2-x}\text{Ca}_x\text{BaNiO}_5$

横尾哲也<sup>1,2</sup>、伊藤晋一<sup>1,2</sup>、井深壮史<sup>1,2</sup>、池田陽一<sup>3</sup>、吉沢英樹<sup>3</sup>、秋光純<sup>4</sup>  
1KEK-物構研、2J-PARC センター、3 東大-物性研、4 青学大

Quantum spins in one-dimensional (1D) chains show unusual properties such as Haldane gap and spin-Peierls state, by strong quantum nature of localized spins. Particularly in the system where several physical degrees of freedom are entangled in, it opens the new paradigm of the material science. In the quantum spin systems, spin singlet is the basic starting point describing a ground state of the quantum spin chain. Another interest in quantum spin systems is the cooperation between charges and spins. The high- $T_c$  superconductivity is one of the most fascinating examples realized in 2D  $\text{CuO}_2$  sheet. Practically it is hard to realize the carrier doping in 1D material because the carrier localization occurs at low temperature. Here we present spin and hole dynamical properties in hole-doped 1D Haldane chain  $\text{Nd}_{1.9}\text{Ca}_{0.1}\text{BaNiO}_5$ , which is successfully hole doped 1D Haldane system. Though the hole-doped sample shows lower electronic resistivity than undoped sample at whole range below room temperature, it is still a semiconductor. Spin dynamical properties were measured by means of pulsed neutron inelastic scattering. It is clearly observed the entire one-magnon band with 10 meV spin gap (Haldane gap) at magnetic zone center (MZC). The energy at zone boundary reaches 60 meV that is less comparing to undoped Haldane chain. On the other hand, the gap slightly increases in its energy. Nobel dynamical structures within the gap were observed upon carrier doping, showing incommensurate structures centered at MZC. This is originated by the doped-holes. The observed dynamical structures are composed of the contribution of quantum spin chains with spin gap and holes, quite similar to that observed in high- $T_c$  superconductor. Also, at low temperature, the new excitation at  $E = 4$  meV and showing almost no momentum dependence has been observed. It is possibly originated from the crystal electric field of  $\text{Nd}^{3+}$  ions.

共鳴軟 X 線小角散乱を用いたマルチフェロイック  
 $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$   
におけるスキルミオン形成の観測  
Observation of the skyrmion formation in the  
multiferroic  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  by means of small angle  
resonant soft x-ray scattering

岡村嘉大<sup>1</sup>, 山崎裕一<sup>1,2</sup>, 森川大輔<sup>2</sup>, 本田孝志<sup>3</sup>, 中尾裕則<sup>3</sup>,  
村上洋一<sup>3</sup>, 関真一郎<sup>2</sup>, 賀川史敬<sup>2</sup>, 有馬孝尚<sup>2,4</sup>, 十倉好紀<sup>1,2</sup>  
東大工<sup>1</sup>, 理研 CEMS<sup>2</sup>, KEK 物構研<sup>3</sup>, 東大新領域<sup>4</sup>

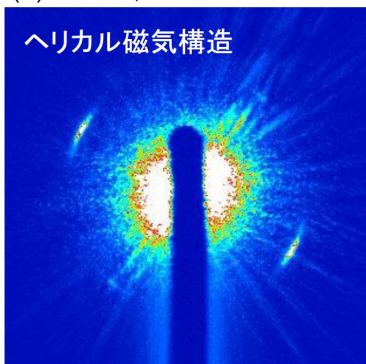
近年、スキルミオンと呼ばれる渦状の磁気構造が、キラルな結晶構造の磁性体において発見された。スキルミオンは、構成するスピンのあらゆる方向をもつという特徴をもち、これによって多彩な電気磁気応答が発現することが知られている。現在では駆動や生成消滅といった制御に向けた研究が数多く行われているが、そのダイナミクスに関する知見を得るための早い時間スケールで磁気構造を正確におえる実験手法は確立されていなかった。

このような課題に対して、本研究では、KEK-PF の BL-16A において新たに開発された共鳴軟 X 線小角散乱を用いることで、スキルミオンの新奇な高速ダイナミクスを観測することを目指した。この手法では、これまでスキルミオンをとらえる最も有効な手法の一つとして知られていた、小角中性子散乱よりも優れた波数・時間分解能でスキルミオンを回折図形として直接観測することが可能である。

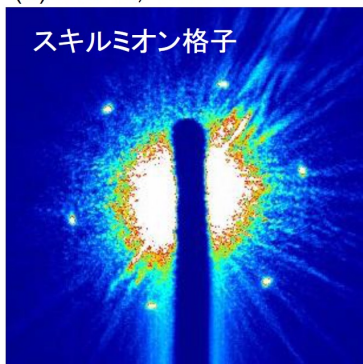
本発表では、スキルミオンの電場下でのダイナミクスを観測することに向けて、まずは上記の手法でスキルミオンを観測することに成功したので、それについて報告する。また、電場制御する際に有利な磁場温度を探すために、様々な磁場温度走査過程における磁気相図も作成している。さらに、本発表の最後では、この手法を用いたスキルミオンの新奇ダイナミクス探索のさらなる

応用展開についても紹介する予定である。

(a) 51.5 K, 0 mT



(b) 51.5 K, 40 mT





# $\mu$ SR 法を用いた 1 次元量子スピン系 $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$ の 磁性研究

## Magnetic properties of one-dimensional quantum spin system $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$ studied by $\mu$ SR

<sup>1</sup>河村聖子、<sup>2</sup>富安啓輔、<sup>3</sup>幸田章宏、<sup>1</sup>中島健次、<sup>4</sup>渡邊功雄  
<sup>1</sup>J-PARC MLF、<sup>2</sup>東北大理工、<sup>3</sup>KEK-IMSS、<sup>4</sup>理研仁科セ

量子スピン系  $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  は、スピン 1/2 が 1 次元ジグザグ鎖を形成し、強磁性的な最近接相互作用  $J_1$  と反強磁性的な次近接相互作用  $J_2$  により、スピンプラストレーションの存在が期待される物質である [1]。  $J_2/J_1$  の値をもとに、この系の磁気基底状態は、非整合なスピン 1 重項であることが理論研究から予想されているが [2]、非磁性基底状態の明確な証拠は報告されていない。そこで我々は、 $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  の磁氣的性質を明らかにするため、この系の  $\mu$ SR 測定を行った。

J-PARC MLF のミュオンビームライン D1 において、250K から 3K までの広い温度範囲で測定を行ったところ、図に示すように、20K 以下で、ミュオンスピン緩和のわずかなエンハンスメントが観測された。この緩和の起源を探るため、理研-RAL ミュオン施設の Port-2 において、さらに低温領域における詳細な測定を行ったところ、時間スペクトルは約 1.5K 以下になると温度変化を示さず、磁気秩序を示唆する強い内部磁場は 50mK まで発現しないことが明らかになった。この結果から、 $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  の磁気基底状態は非磁性であることが予想される。また、緩和のエンハンスメントは、非磁性系においてしばしば観測される、短距離秩序およびスピン 1 重項形成にともなう内部磁場の変化であると考えられる。発表では、詳細なダイナミクスの温度変化についても議論する。

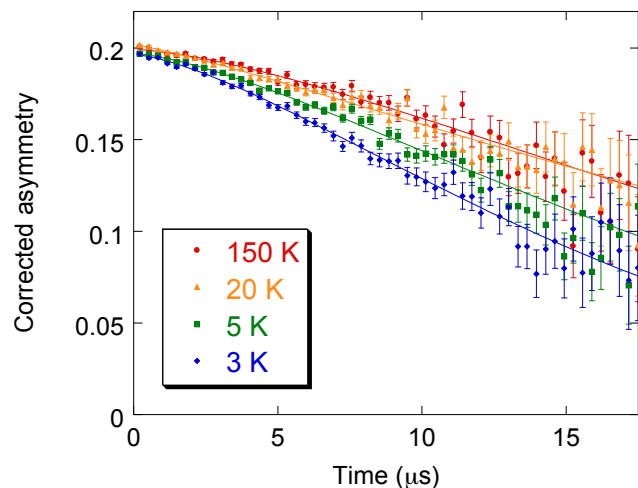


図 1: 零磁場下での時間スペクトル。

### 参考文献

- [1] M. Hase et al., Phys. Rev. B 70 (2004) 104426.
- [2] T. Tonegawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 58 (1989) 2902.

## ラシュバ型スピン軌道相互作用誘起の Fe 超薄膜の垂直磁気異方性の変化

### Study of perpendicular magnetic anisotropy change of Fe ultrathin film induced by Rashba spin-orbit interaction

山本真吾<sup>A</sup>、山本航平<sup>A</sup>、田久保耕<sup>B</sup>、福田憲吾<sup>C</sup>、大島大輝<sup>D</sup>、  
加藤剛志<sup>C</sup>、岩田聡<sup>D</sup>、和達大樹<sup>B</sup>、松田巖<sup>B</sup>  
東大理<sup>A</sup>、東大物性研<sup>B</sup>、  
名古屋大工<sup>C</sup>、名古屋大未来材料・システム研究所<sup>D</sup>

スピントロニクス分野においてデバイスの高密度・集積化のために、面直磁化膜が注目を集めている。しかし垂直磁気異方性(Perpendicular Magnetic Anisotropy: PMA)の発現に関して、詳細な理論での解釈が完全にはなされていない。これまでPMAやその電場依存性は、界面へのドーピングの効果から説明がなされてきていた[1]。それに対して先行研究によって強磁性体の交換相互作用と界面におけるラシュバスピン軌道相互作用の相関によって強磁性体超薄膜にPMAが発現し、その電場依存性についても説明ができるとされた[2]。本研究では、スピン軌道相互作用の大きな5d金属Auと絶縁体MgOの間に3d遷移金属Feの超薄膜を挟み込んだ系(Au/Fe/MgO系)を分子線エピタキシー法により成膜した。そして、AGM(Alternating Gradient field Magnetometer)測定により、Fe膜厚が薄くなるに従ってPMAが大きくなることが観測された。さらに、放射光を用いたX線磁気円二色性を測定し、総和則と組み合わせることでスピン、軌道磁気モーメントの膜厚依存性を調べ、PMAが大きくなるに従って、軌道磁気モーメントが大きくなることが確認された。膜構造、FeのM端近傍の共鳴MOKEスペクトルも含めてこの系の垂直磁気異方性とラシュバスピン軌道相互作用の関係について議論する。講演では、電場を用いたPMA制御に関する展望についても述べる。

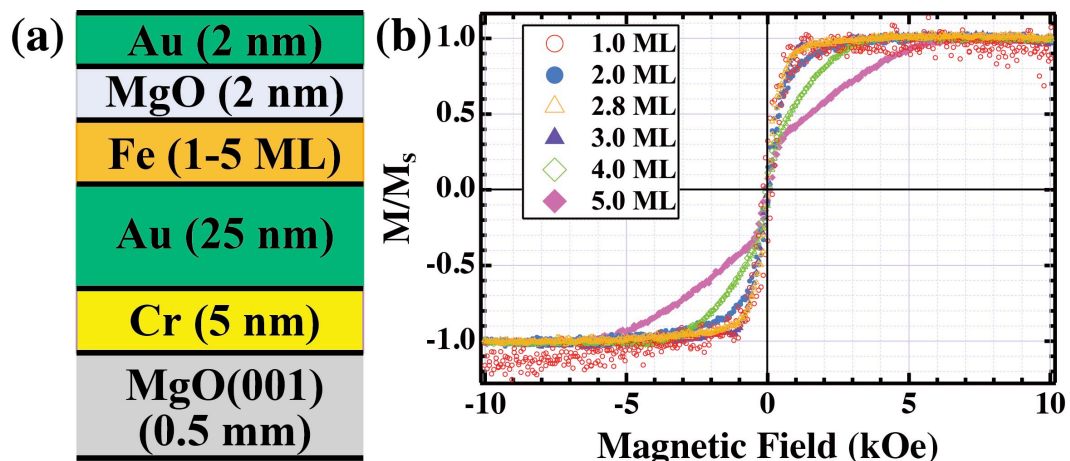


図 (a) Au/Fe/MgO系の膜構造  
(b) AGMによる面直方向の磁気曲線の膜厚依存性

[1] T. Maruyama *et al.*, Nat. Nanotechnol., **4**, 158, 2009

[2] S. E. Barnes *et al.*, Sci. Rep., **4**, 4105, 2014

# μSR から見た電子ドーブ型 T' 銅酸化物超伝導体の オーバードープ領域における Cu スピン相関 μSR Study of the Cu-Spin Correlation in the Overdoped Regime of Electron-Doped High- $T_c$ T'-Cuprates

足立匡<sup>1</sup>, M. A. Baqiya<sup>2</sup>, 扇太郎<sup>2</sup>, 今野巧也<sup>2</sup>, 渡邊功雄<sup>3</sup>, 小池洋二<sup>2</sup>

1 上智大学理工学部, 2 東北大学大学院工学研究科

3 理研仁科センター

近年, T' 構造を有する電子ドーブ型銅酸化物超伝導体において, 試料中に含まれる過剰酸素を適切に取り除くことで, 母物質を含む幅広いキャリア濃度領域で超伝導が発現すると報告され, 注目を集めている[1-3]。我々は, この系における超伝導の発現機構を明らかにするために, T'-Pr<sub>1.3-x</sub>La<sub>0.7</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4+δ</sub>の単結晶を用いて, 物性を詳細に調べている[4-6]。

以前, 我々は, 超伝導を示す T'-Pr<sub>1.3-x</sub>La<sub>0.7</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4+δ</sub>のアンダードープ領域 ( $x = 0.10$ ) の単結晶と超伝導を示す母物質である T'-La<sub>1.8</sub>Eu<sub>0.2</sub>CuO<sub>4+δ</sub>[2] の多結晶における Cu スピン相関を調べるために, μSR の測定を行った[7]。その結果, いずれも低温で反強磁性短距離磁気秩序が形成され, 超伝導とマイクロに共存していることがわかった。そこで,  $x$  の増加とともに超伝導転移温度が低下するオーバードープ領域における Cu スピン相関を調べるために, T'-Pr<sub>1.3-x</sub>La<sub>0.7</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4+δ</sub>の  $x = 0.15$  および T'-Pr<sub>1-x</sub>LaCe<sub>x</sub>CuO<sub>4+δ</sub>の  $x = 0.17, 0.20$  の単結晶を用いて, μSR の測定を行った。

ゼロ磁場μSRの測定の結果,  $x$ の増加とともにCuスピン相関の発達が弱まり, 超伝導がほとんど消失した  $x = 0.20$  では, Cu スピン相関の発達は極めて小さいことがわかった。これらのことから, Cu スピン相関は超伝導の発現に密接に関わっていると推察される。また, 母物質でも超伝導を示す T' 型銅酸化物が, 通常のバンド金属ではなく, 強相関電子系であることが強く示唆される。

## 参考文献

- [1] O. Matsumoto *et al.*, Physica C **469**, 924 (2009).
- [2] T. Takamatsu *et al.*, Appl. Phys. Express **5**, 073101 (2012).
- [3] T. Takamatsu *et al.*, Phys. Procedia **58**, 46 (2014).
- [4] T. Adachi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 063713 (2013).
- [5] M. Yamamoto *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 024708 (2016).
- [6] M. Horio *et al.*, Nature Commun. **7**, 10567 (2016).
- [7] T. Adachi *et al.*, arXiv: 1512.08095.

## スピネル型酸化物 $\text{CoV}_2\text{O}_4$ の X 線磁気円二色性 X-ray magnetic circular dichroism study of spinel-type oxide $\text{CoV}_2\text{O}_4$

野中洋亮<sup>1</sup>、芝田悟朗<sup>1</sup>、小堀内類<sup>2</sup>、石上啓介<sup>1</sup>、坂本祥哉<sup>1</sup>、池田啓祐<sup>1</sup>、  
池震棟<sup>1</sup>、小出常晴<sup>3</sup>、田中新<sup>4</sup>、勝藤拓郎<sup>2</sup>、藤森淳<sup>1</sup>

1 東大理、2 早大先進理工、3 KEK-PF、4 広大院先端物質

スピネル型バナジウム酸化物  $\text{AV}_2\text{O}_4$  は、V の  $t_{2g}$  軌道に軌道自由度が存在し、軌道整列について精力的に研究されている。ごく最近、 $\text{CoV}_2\text{O}_4$  は 90K 以下において不完全に軌道整列が抑制された軌道ガラスの状態であると報告された[1, 2]。

本研究では、 $\text{CoV}_2\text{O}_4$  の軌道状態を詳細に調べるため、軌道磁気モーメントを直接観測できる X 線磁気円二色性(XMCD)の測定を行った。ベクトル型マグネットを用いて、試料を固定して磁場( $H$ )方向を変化させながら Co, V  $L_{2,3}$  吸収端の XMCD を測定し、軌道磁気モーメントおよびスピン磁気モーメントの異方性を調べた。図 1 に XMCD 総和則によって求めた磁場方向ごとのスピンおよび軌道磁気モーメントを示す。XMCD で得られた磁気モーメントは、 $H \parallel [001]$  のときの方が  $H \parallel [111]$  のときよりも大きく、磁化測定の結果とコンシステントな磁気異方性であった。また、V の軌道磁気モーメントが 90K 以下の低温相でも非常に小さい( $<0.1 \mu_B$ )ことから、局所的に整列している軌道が主に実軌道で構成されていることが示唆された。

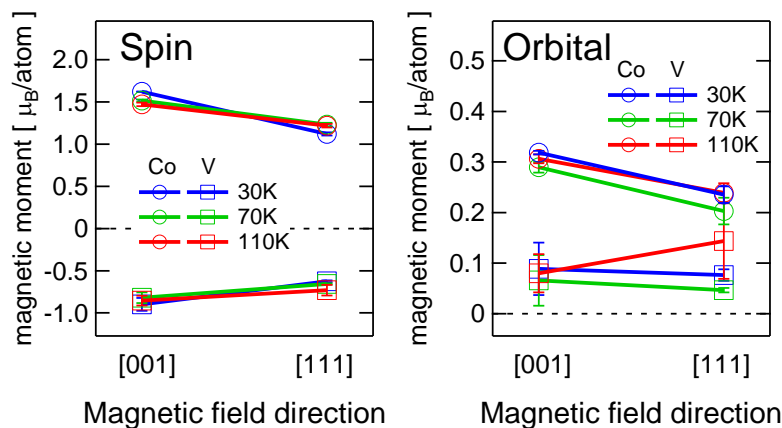


図 1 XMCD 総和則によって求めた[001], [111]方向のスピンおよび軌道磁気モーメント。V のスピン磁気モーメントは Co, Fe, Mn の correction factor [3]を外挿して見積もった。

- [1] R. Koborinai *et al.*, PRL **116**, 037201 (2016).
- [2] D. Reig-i-Plessis *et al.*, PRB **93**, 014437 (2016).
- [3] Y. Teramura *et al.*, JPSJ **65**, 1053 (1996).

## 中性子散乱から見た $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ における Al 置換誘起磁気秩序

### Al-induced magnetic order in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Al}_y\text{O}_4$ studied by neutron scattering

鈴木謙介<sup>1</sup>、佐藤研太郎<sup>2</sup>、足立匡<sup>3</sup>、小池洋二<sup>4</sup>、Tao Hong<sup>5</sup>、Guochu Deng<sup>6</sup>、  
矢野慎一郎<sup>7</sup>、Jason Gardner<sup>7</sup>、藤田全基<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東北大金研、<sup>2</sup>東北大理、<sup>3</sup>上智大理工、<sup>4</sup>東北大工、<sup>5</sup>ORNL、<sup>6</sup>ANSTO、<sup>7</sup>NSRRC

銅酸化物高温超伝導は、強い電子相関に基づく局在スピンと電子の伝導性が増した遍歴スピンの両面からの理解が重要である。しかし、広い組成領域における磁気相関の起源に関しては、現在でも統一的な理解には至っていない。その原因の一つとして、磁気シグナルの検出が困難であることが挙げられる。本質的な磁気相関の情報を得るために、少量の不純物置換により摂動を受けた電子状態を調べることが有効な手法となりえる。これまでの研究により非磁性不純物である  $\text{Al}^{3+}$  で Cu サイトを置換すると、幅広いホール濃度領域で磁気秩序が発達することが  $\mu\text{SR}$  測定からわかった[1]。そこで、Al 置換により誘起される磁気秩序を詳しく調べるため、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Al}_y\text{O}_4$  (LSCAO) について、冷中性子三軸分光器であるオークリッジ国立研究所の CG-4C (CTAX) と ANSTO の SIKA を用いて弾性・非弾性中性子散乱実験を行った。

図に LSCAO の  $x = 0.21$ ,  $y = 0.03$  において、 $\text{CuO}_2$  面を散乱面にした測定条件で  $h$  方向にスキャンした弾性散乱スペクトルの結果を示す。測定は 1.5 K で行い、 $(1/2, 1/2, 0)$  を通る方向に見ている。 $Q = (1/2 \pm \delta, 1/2, 0)$  に長周期構造を反映した非整合磁気反射を観測した。不純物のない  $\text{La}_{1.82}\text{Sr}_{0.18}\text{CuO}_4$  (LSCO) では 4.5 meV のスピンギャップが存在しているため[2]、Al 置換によって磁気秩序が形成されたとわかる。また、非整合ピーク位置は  $\delta \sim 0.135$  であり、LSCO や磁性不純物である Fe を置換した  $\text{La}_{1.80}\text{Sr}_{0.20}\text{Cu}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}\text{O}_4$  とほぼ一致する[3,4]。本講演ではこれらのデータや温度変化から Al 誘起磁気秩序の起源について議論する。

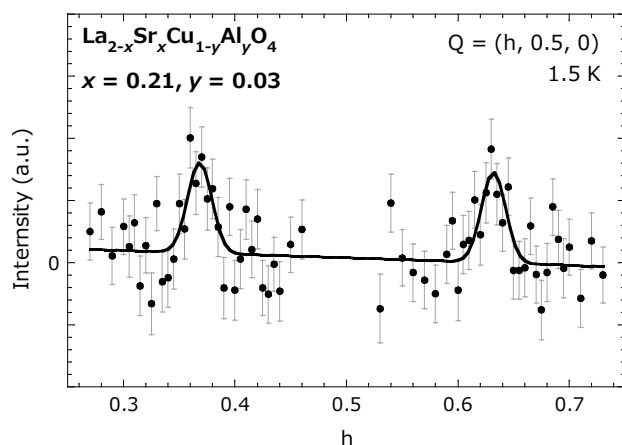


図: LSCAO  $x = 0.21$ ,  $y = 0.03$  の 1.5 K における弾性散乱スキャン。  $Q = (h, 0.5, 0)$  に沿って見た結果で、50 K のデータを差し引いてある。実線は Gauss 関数によるフィッティングライン。

[1] 鈴木謙介等, 第3回物構研サイエンスフェスタ 009B.

[2] C. H. Lee *et al.* JSPJ **69**, 1170 (2000).

[3] K. Yamada *et al.*, PRB **57**, 6165 (1998).

[4] M. Fujita *et al.*, unpublished.

## X線散乱で見た $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ の磁気秩序の 膜厚・基板方位依存性

### Thickness and orientation dependence of the magnetic order in $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ studied by X-ray scattering

山本航平<sup>1,2</sup>, 平田靖透<sup>1,2</sup>, 堀尾眞史<sup>2</sup>, 横山優一<sup>1,2</sup>, 田久保耕<sup>1</sup>, 箕原誠人<sup>3</sup>,  
組頭広志<sup>3</sup>, 山崎裕一<sup>4,5</sup>, 中尾裕則<sup>3</sup>, 村上洋一<sup>3</sup>, 藤森淳<sup>2</sup>, 和達大樹<sup>1,2</sup>

1 東大物性研, 2 東大理, 3 KEK-PF, 4 東大工, 5 理研 CEMS

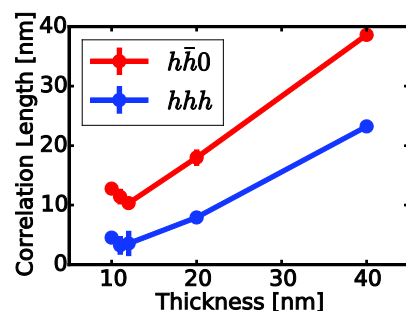
ペロブスカイト型鉄酸化物  $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$  (LSFO) は  $T_c \sim 190$  K 以下で電荷および磁気秩序を示し、 $[111]$  方向に沿って、 $\text{Fe}^{3+} \uparrow - \text{Fe}^{5+} \uparrow - \text{Fe}^{3+} \uparrow - \text{Fe}^{3+} \downarrow - \text{Fe}^{5+} \downarrow - \text{Fe}^{3+} \downarrow$  のような、3 倍周期の電荷秩序、6 倍周期の磁気秩序を発現することが知られている。磁気秩序は共鳴軟 X 線散乱 (RSXS)、電荷秩序は硬 X 線散乱の測定で確認されている[1]。電荷秩序の膜厚依存性について 15 nm 程度の LSFO 薄膜を対象に X 線による測定が行われている[2]。また電気抵抗率に関しては  $T_c$  でとびが見られていることも知られているが、この変化が 14 nm 程度より薄い領域で不明瞭になっている様子が測定された。ゆえに、薄い領域の薄膜の電荷、磁気秩序の解明には X 線による測定が重要である。

我々は LSFO(10, 11, 12, 20, 40 nm)/ $\text{SrTiO}_3$ (STO)(111) 薄膜に対して硬 X 線散乱および RSXS による測定を行った。また面内方向に  $[111]$  方向を持つ LSFO(40 nm)/STO(110) 薄膜に対して、すれすれ入射による散乱の測定を試みた。LSFO/STO(111) 薄膜に対する測定から、面内及び面直方向への秩序の相関長を求め、膜厚による影響を調べた。それによると、磁気秩序は今回調べた中では最も薄い膜厚 10 nm でも存在し、面直方向、面内方向ともにその相関長は膜厚に比例して減少した。また基板方位の異なる LSFO/STO(110) 薄膜の結果との比較から、秩序の変調ベクトル  $[111]$  が面内に存在する場合と面直に存在する場合とでの磁気秩序への影響を評価できる。今回の実験の範囲では相関長および転移温度に基板方位依存性は見られなかった。

[1] J. Okamoto et al., Phys. Rev. B **82**, 132402 (2010).

[2] R. J. Sichel-Tissot et al., Appl. Phys. Lett. **103**, 212905 (2013).

図 1: RSXS ( $h\nu=707$  eV Fe 2p 端) による磁気秩序の相関長と膜厚。相関長は磁気秩序由来のピークの半値幅の逆数として求めた。



## 多層ディラック電子系 $\text{EuMnBi}_2$ における

### X線磁気共鳴散乱による巨大な層間磁気抵抗の起源探求

Origin of giant interlayer magnetoresistance in layered Dirac material  $\text{EuMnBi}_2$  studied by X-ray resonant magnetic scattering

増田英俊<sup>A</sup>, 酒井英明<sup>A, B</sup>, 三宅厚志<sup>C</sup>, 徳永将史<sup>C</sup>, 山崎裕一<sup>A, F</sup>,  
中尾裕則<sup>D</sup>, 村上洋一<sup>D</sup>, 有馬孝尚<sup>E</sup>, 十倉好紀<sup>A, F</sup>, 石渡晋太郎<sup>A, G</sup>  
東大工<sup>A</sup>, 阪大理<sup>B</sup>, 東大物性研<sup>C</sup>, 高工機構 PF/CMRC<sup>D</sup>,  
東大新領域<sup>E</sup>, 理研 CEMS<sup>F</sup>, JST-PRESTO<sup>G</sup>

グラフェンを始めとしたディラック電子系では伝導電子が質量ゼロの相対論的粒子とみなせ、グラフェンにおける半奇数量子ホール効果などの新奇な輸送特性が注目を集めている。 $\text{EuMnBi}_2$ はMn-Bi絶縁層とビスマス正方格子の伝導層がEuイオンを挟んで積層した層状構造を持つ(図1)。擬2次元的なディラック電子がビスマス正方格子上に存在し、その量子伝導が $\text{Eu}^{2+}$ の反強磁性秩序と結合した興味深い磁気伝導現象を示す[1]。特に磁場中の反強磁性スピントロップ相において、層間抵抗率の $\sim 5$ 倍に及ぶ増大や、ホール抵抗率の量子化に伴う $\sim 50\%$ におよぶ巨大な量子振動などが観測される。これは磁気秩序の変化に伴って伝導層間の結合が抑制され系の2次元性が高まっていることを示唆するが、その微視的な機構は未解明である。本研究ではこの機構の解明を目的とし、X線磁気共鳴散乱を用いてこの系の磁気構造を調べた。

ブラッグ散乱が禁制となる(0 0 11)において、Eu  $L_3$ 吸収端(6.975 keV)でEuの反強磁性転移に対応する共鳴磁気反射が観測された(図2)。これは $q=(0\ 0\ 1)$ で特徴付けられEuスピンの $ab$ 面内で強磁性的に揃っている異方的な反強磁性秩序が実現していることを示す(図1)。詳細

は未だ不明であるが、この磁気秩序の異方性が抵抗率の異方的な振る舞いに重要な役割を果たしていると考えられる。当時はゼロ磁場、磁場中の詳細な磁気構造や層間磁気抵抗の角度依存性についても議論する。

[1] H. Masuda, H. Sakai et. al., Science Advances 2, e1501117 (2016).

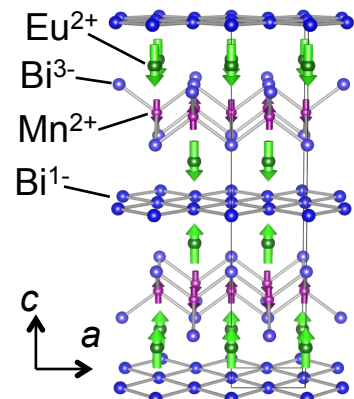


図1  $\text{EuMnBi}_2$ の磁気構造(5K, 0T)

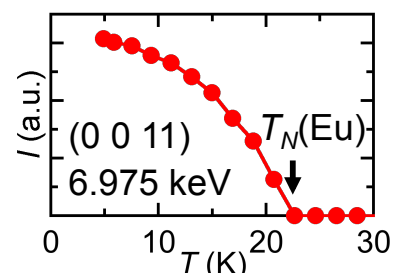


図2 X線磁気散乱強度の温度依存性

# Ca<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>RuO<sub>4</sub> (x=0,0.06)の ARPES による電子状態観測

## Observation of electronic states in Ca<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>RuO<sub>4</sub> (x=0,0.06) by angle-resolved photoemission Spectroscopy

柴田大輔<sup>1</sup>, 山本紳太郎<sup>1</sup>, 下中大也<sup>1</sup>, 小寺健二郎<sup>1</sup>, 池永英司<sup>2</sup>,  
小野寛太<sup>3</sup>, 組頭広志<sup>3</sup>, Chanchal Sow<sup>4</sup>, 前野悦輝<sup>4</sup>, 吉田鉄平<sup>1</sup>  
<sup>1</sup>京大人環, <sup>2</sup>JASRI/SPring-8, <sup>3</sup>高工研 PF, <sup>4</sup>京大院理

層状ルテニウム酸化物 Ca<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>RuO<sub>4</sub> はその組成によって超伝導体から金属、モット絶縁体まで幅広い物性を示す物質であり[1]、それぞれの領域でスピン三重項超伝導体[2]、軌道選択モット転移[3]など新しい現象の可能性が報告されている。絶縁体領域においてはモットギャップより遥かに小さい電場による金属絶縁体転移が報告されており、絶縁相もまた興味を持たれている[4]。しかしながら過去に行われた角度分解光電子分光(ARPES)の実験は金属相

を中心としたものだった [5-7]。そこで本研究では、低温で絶縁体相である Ca<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>RuO<sub>4</sub> (x = 0, 0.06) の ARPES を PF BL-28A で行った。その結果 x = 0.06 の転移温度点以下の T = 50 K において明瞭なフェルミ端とフラットバンド[6]を観測した。また、直線偏光依存性を測定するとフェルミ面マップの強度分布に大きな変化が現れた。

本発表では Ca<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>RuO<sub>4</sub> の絶縁体相の電子状態について、得られた ARPES スペクトルを元に議論する。

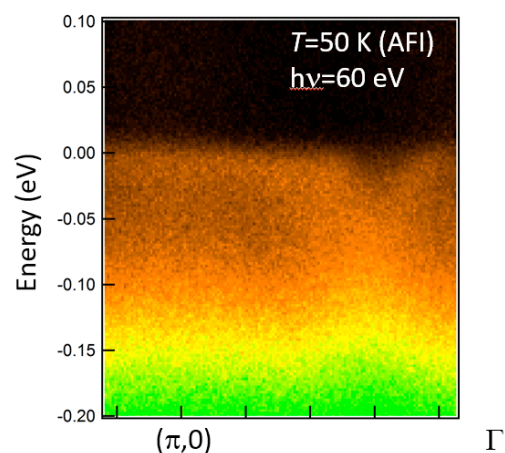


図 1: Ca<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>RuO<sub>4</sub> (x = 0.06) のバンド分散

### References

- [1] S. Nakatsuji, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 2666 (2000).
- [2] Y. Maeno *et al.*, J Phys. Soc. Jpn. **81**, 011009 (2012).
- [3] V. I. Anisimov *et al.*, Eur. Phys. J. B **25**, 191 (2002).
- [4] H. Nakamura *et al.*, Sci. Rep. **3** 2536 (2013).
- [5] M. Neupane *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 097001 (2009).
- [6] A. Shimoyamada *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 086401 (2009).
- [7] S. -C. Wang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 177007 (2004).



## Mn<sub>1+x</sub>Fe<sub>2-x</sub>O<sub>4</sub>における陽イオン分布と電子状態の 席選択的解析

### Site-selective analyses of cation distribution and electronic state in Mn<sub>1+x</sub>Fe<sub>2-x</sub>O<sub>4</sub>

奥部真樹、佐々木 聡  
東工大・応セラ研

Mn<sub>1+x</sub>Fe<sub>2-x</sub>O<sub>4</sub> (Mn フェライト)はスピネル構造を持つフェリ磁性体であり、磁心材料などに広く利用されている物質である。複数の陽イオンで構成されるスピネル型酸化物では、その陽イオン分布に磁気特性や電気抵抗などの物性が強く依存することが知られている。スピネル構造では4配位Aと6配位Bサイトの2種類の陽イオン占有席がある。Mn フェライトでは構成する遷移金属イオンのMnとFeが共に複数の価数を取り得るが、複数の同種異価イオンが混在する系において、その占有席および価数を決定することは容易ではない。本研究では、組成の異なる幾つかのMn フェライトについて、陽イオン席占有率の決定を行った。また、吸収端近傍での特徴的な電子遷移に注目したMnイオンの電子密度分布解析も行った。

単結晶および粉末の試料を作成し、吸収分光法とX線共鳴散乱を併用した相補的な実験と解析を行った。席占有率を求める解析には、実験室系及びPhoton FactoryのBL-10Aにおいて、共に4軸回折計を用いた測定データを用いた。BL-6Cにて共鳴散乱実験を行い、吸収実験と併用することで、電子のエネルギー状態と関連付けられる電子密度分布が求まった。

得られた陽イオンの席占有率や価数から、組成とMn席占有率の関係を考察した。また、電子密度分布解析からは、Mnイオンの特定の電子遷移に関与した電子密度分布が得られた。発表では、得られた電子密度分布と既報の理論計算によるDOSとを比較し、Mnイオンの電子状態について議論する。

# X線内殻分光で調べる電子ドーピング型銅酸化物高温超伝導体 におけるアニール効果

## Impact of annealing on the electron-doped cuprate superconductors studied by core-level spectroscopies

堀尾 眞史<sup>1</sup>、芝田 悟朗<sup>1</sup>、鈴木 博人<sup>1</sup>、徐 健<sup>1</sup>、輿石 佳佑<sup>1</sup>、今野 巧也<sup>2</sup>、  
高橋 晶<sup>2</sup>、扇 太郎<sup>2</sup>、佐藤 秀孝<sup>2</sup>、小林 正起<sup>3</sup>、簗原 誠人<sup>3</sup>、堀場 弘司<sup>3</sup>、  
組頭 広志<sup>3</sup>、足立 匡<sup>4</sup>、小池 洋二<sup>2</sup>、藤森 淳<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東大理、<sup>2</sup>東北大工、<sup>3</sup>KEK-PF、<sup>4</sup>上智大理工

電子ドーピング型銅酸化物高温超伝導体は反強磁性的なモット絶縁体であると考えられる母物質の希土類を Ce に置換したもののだが、近年薄膜や粉末試料で Ce 置換なしに超伝導が実現されている[1,2]。バルクの単結晶試料でも、プロテクト・アニール法と呼ばれる還元アニール方法で過剰酸素を効果的に除去することで、Ce 濃度の低い領域まで超伝導が観測されるようになっている[3,4]。電子ドーピング型銅酸化物高温超伝導体の超伝導状態を理解するためには、超伝導発現の鍵となる還元アニールが電子状態に及ぼす変化を正しく理解することが重要である。

本研究では、電子ドーピング型銅酸化物高温超伝導体  $\text{Pr}_{1.3-x}\text{La}_{0.7}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  ( $x = 0, 0.05, 0.10$ )の単結晶試料について X 線光電子分光(XPS)と X 線吸収分光の測定を行い、Ce 置換や還元アニールによる内殻構造の変化を調べた。図 1 に、XPS で観測した内殻ピーク位置から見積もった、 $x = 0$  の as-grown 試料に対する各試料の化学ポテンシャルのシフト量を示す。還元アニール前後の化学ポテンシャルを比較すると、 $x = 0$  の試料ではほとんど変化が無い一方、 $x = 0.05, 0.10$  の試料では大きなシフトが見られ、還元アニールによって電子がドーピングされたことを示唆する結果を得た。

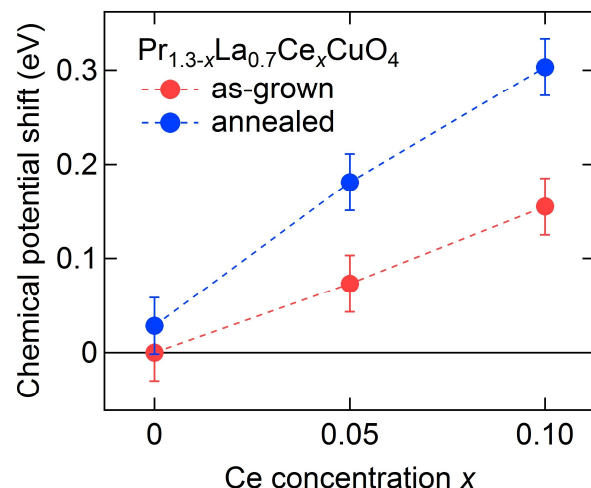


図 1:  $\text{Pr}_{1.3-x}\text{La}_{0.7}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  における化学ポテンシャルのシフト。

- [1] A. Tsukada *et al.*, Solid State Commun. **133**, 427 (2005).
- [2] T. Takamatsu *et al.*, Appl. Phys. Express **5**, 073101 (2012).
- [3] T. Adachi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 063713 (2013).
- [4] M. Horio *et al.*, Nat. Commun. **7**:10567 (2016).

# 銅酸化物超伝導体 Bi2201 における擬ギャップと 金属絶縁体転移

## Metal-Insulator Transition and Pseudogap in Bi2201 Cuprates

宮崎正範<sup>1,\*</sup>、門野良典<sup>1,2</sup>、平石雅俊<sup>1</sup>、幸田章宏<sup>1,2</sup>、小嶋健児<sup>1,2</sup>、福永泰<sup>3</sup>、  
田邊洋一<sup>4</sup>、足立匡<sup>5</sup>、小池洋二<sup>3</sup>、

1 KEK 物構研・構造物性セ、2 総研大、3 東北大院工、4 東北大院理、  
5 上智大理工 ※現、室工大院工

高い超伝導転移温度 ( $T_c$ ) を示す物質群、銅酸化物超伝導体は、反強磁性、超伝導、電荷秩序など様々な物性を示すが、その中でも擬ギャップは、高い  $T_c$  を示す起源ではないかという点で特に注目されてきた。現在においては、擬ギャップは、超伝導ギャップと独立の物理現象であり、直接的な起源ではないという理解がなされつつある[1]。しかしながら、未だその起源については謎のままである。

我々は、その起源の糸口を探るため、ホールドープ単層型の  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  (Bi2201)系に着目し、Bi の一部を Pb に置換し、ホール濃度を過剰酸素で制御した  $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  [(Bi,Pb)2201] についてミュオンナイトシフト測定を行った。その結果、 $T=0$  K の状態に着目したとき、擬ギャップが開くことにより消失する状態数は、ホール濃度にあまり因らないということが分かった。一方で、フェルミ面の状態数(状態密度)は、ホールと共に単調に増加しており、 $T=0$  K で有限の状態密度が現れはじめる濃度、即ち絶縁体から金属に相転移する濃度 ( $\rho_{\text{MI}}$ ) から超伝導相が生じている ( $\rho > \rho_{\text{MI}}$ ) ということを確認した。

さらに先行研究において、La 置換によるホール濃度制御を行う  $\text{Bi}_2\text{La}_x\text{Sr}_{2-x}\text{CuO}_{6+\delta}$  (La-Bi2201) の NMR 実験[2]から得られた相図と比較することにより、この金属-絶縁体転移は必ずしも反強磁性転移とは一致しないという可能性を示唆する結果を得た。

[1] T. Kondo *et al.* Nature Phys. 7, 21 (2011)

[2] S. Kawasaki *et al.* Phys. Rev. Lett. 105, 137002 (2010)

[3] M. Miyazaki *et al.*, submitted to PRL

## 角度分解光電子分光による BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> の電子ネマティック相 における電子構造の観測

### The observation of the electronic structure of BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> in the electronic “nematic” phase by angle-resolved photoemission spectroscopy

輿石佳佑, 劉亮, 岡崎浩三, 鈴木博人, 徐健, 堀尾眞史, 組頭広志<sup>A</sup>,  
小野寛太<sup>A</sup>, 中島正道<sup>B</sup>, 石田茂之<sup>B</sup>, 木方邦宏<sup>B</sup>, 李哲虎<sup>B</sup>, 伊豫彰<sup>B</sup>,  
永崎洋<sup>B</sup>, 内田慎一, 藤森淳  
東大理, 高エネ研 PF<sup>A</sup>, 産総研<sup>B</sup>

鉄系超伝導体の母物質 BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> は、転移温度  $T_S \sim 140$  K 以上では正方晶の結晶構造を持つ常磁性体である。一方、 $T_S$  以下では斜方晶でスピン密度波 (SDW) によるストライプ型の反強磁性を発現する。この相では、面内の 4 回対称性が破れた電子状態 (電子ネマティック状態) が電気抵抗率や角度分解光電子分光法 (ARPES) において観測されているが、その起源は明らかではない。また、反強磁性転移温度以上 170 K 近傍までの温度領域において、電子ネマティック相の存在が示唆されており、軌道秩序の存在が推測されている。今回我々は、電子ネマティック相において提案される反強的な軌道秩序によるバンドの折り畳みを観測するために、100~200 K の温度領域で角度分解光電子分光法 (ARPES) を用いて非双晶化した BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> のバンド分散を測定した。

図1(a)に 100 ~ 200 K における Dirac cone の頂点に対応する MCD スペクトル、図1(b)には MDC の面積から求めたピーク強度の温度変化を示す。各温度における MDC スペクトルを比較すると 150 K に於いても強度が確認できる。また、それらのピーク強度を比較すると転移温度以上でも有限の強度が存在しており、~170 K 程度まで残っているように見える。この温度は磁気トルク測定で 2 回対称成分が消える温度領域 (青破線) [1] と一致している。これらの結果は、電子ネマティック相における反強軌道秩序の存在を示唆している。

[1] S. Kasahara *et al.*,  
*Nature* **486**, 382  
(2012).

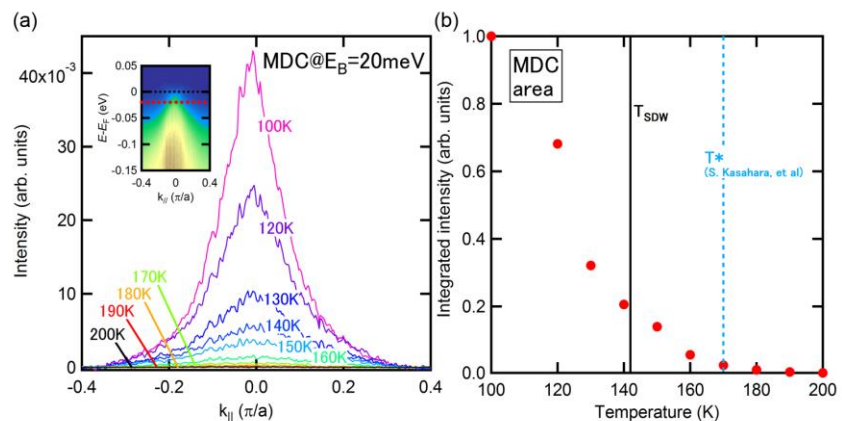


Figure 1. (a) MDC スペクトルの温度変化。束縛エネルギー (20 meV) は図中の ARPES スペクトルにおいて赤線で示す。(b) ピーク強度の温度依存性。

# 磁気過冷却相における $\beta'$ -LiCoPO<sub>4</sub>のスピンの核生成

## Spin nuclearization of $\beta'$ -LiCoPO<sub>4</sub> in magnetic supercooling state

岡部博孝<sup>A,B</sup>, 平石雅俊<sup>A</sup>, 竹下聡史<sup>A</sup>, 山内一宏<sup>A</sup>, 小嶋健児<sup>A,B</sup>, 幸田章宏<sup>A,B</sup>,  
門野良典<sup>A,B</sup>, 吉田紘行<sup>C</sup>, 宮川仁<sup>D</sup>, 松下能孝<sup>D</sup>  
KEK 物構研<sup>A</sup>, 総研大<sup>B</sup>, 北大理<sup>C</sup>, 物材機構<sup>D</sup>

近年、量子ビームを用いた測定技術の著しい発達により、物質中のミクロな磁気状態の時間発展を追跡することが可能になりつつある。 $\beta'$ -LiCoPO<sub>4</sub> は Co<sup>2+</sup> ( $s = 3/2$ ) の強磁性スピン鎖が三角形に並んだ新規化合物であり、鎖間の強磁性－反強磁性相互作用の微妙なバランスによって、多彩な磁気秩序を示すことが知られている[1]。特に  $T_{N2} = 10.5$  K で現れる秩序(非整合)－秩序(整合)型反強磁性相転移は磁気一次相転移であり、降温過程において著しい過冷却状態を持つことが判明している[2]。本研究では  $\mu$ SR 法を用いた局所磁場観察により、過冷却相におけるスピンの核生成と、その時間発展を追跡した。

図1は Co<sup>2+</sup>磁気クラスター(スピン核)の体積分率を反映したアシンメトリ(非対称度)  $A_{\text{slow}}$  の時間発展を示している。縦磁場  $\mu$ SR の解析結果より、スペクトルの遅い緩和成分  $A_{\text{slow}}$  に相当する磁気状態は、整合型反強磁性相(CAF)であることが判明している。 $A_{\text{slow}}$  は3時間を経過した辺りから増加を始める傾向を示し、8～9時間付近で最大値を示している。これは、中性子実験で見られた時間依存性[2]と同様の傾向である。 $\mu$ SR というミクロなプローブにおいて成長開始までに遅延時間が観測されていることから、初期段階においては、ミクロなスピン核の生成・消滅が起きていることが予想される。

$\beta'$ -LiCoPO<sub>4</sub> で観察された遅い磁気相転移は、物質における結晶成長過程との類似性が高く、同様の核生成機構に基づいた現象であると推察される。例えば、ジュラルミンなどの合金で見られる時効硬化、すなわち結晶粒の析出による長期間に渡る硬度の変化現象などが挙げられる。

[1] 岡部博孝, 他, 日本物理学会 2015 年秋季大会 (7aPS-134)

[2] 吉田紘行, 他, 日本物理学会 2015 年秋季大会 (17aCM-4)

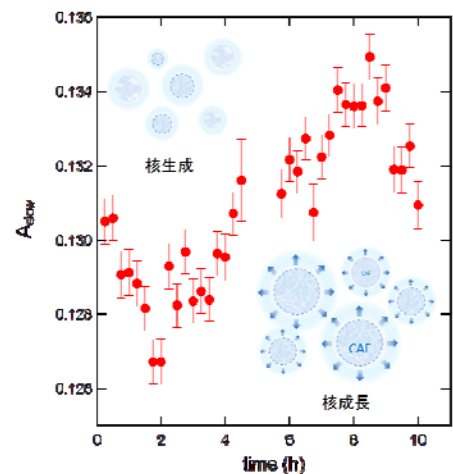


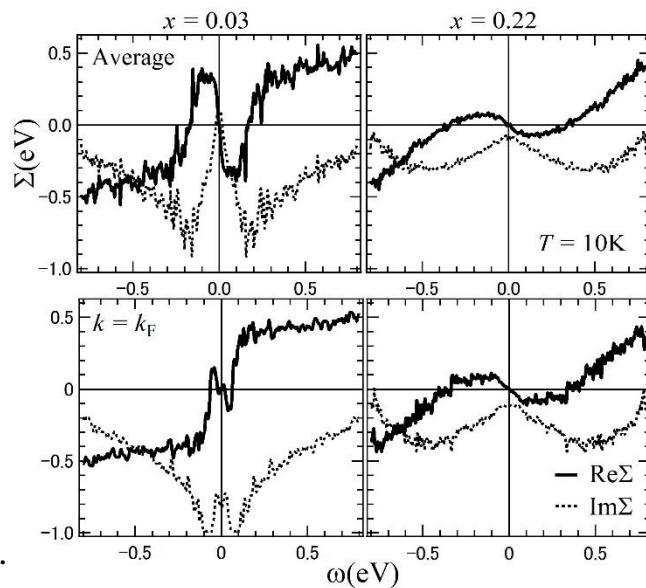
図1 ゼロ磁場 $\mu$ SR タイムスペクトルのアシンメトリ  $A_{\text{slow}}$ (遅い緩和成分)の時間発展( $T = 5$  K)。

# 高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ における ARPES スペクトルの自己エネルギー解析 Self-energy analysis of ARPES spectra in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

下中大也<sup>1</sup>, 山本紳太郎<sup>1</sup>, 小寺健二郎<sup>1</sup>, 柴田大輔<sup>1</sup>, 吉田鉄平<sup>1</sup>,  
小野寛太<sup>2</sup>, 組頭広志<sup>2</sup>, 藤森淳<sup>3</sup>, 小宮世紀<sup>4</sup>, 安藤陽一<sup>5,6</sup>  
<sup>1</sup>京大人環, <sup>2</sup>高工研 PF, <sup>3</sup>東大理, <sup>4</sup>電中研, <sup>5</sup>阪大産研, <sup>6</sup>ケルン大

銅酸化物高温超伝導体の準粒子スペクトルについての自己エネルギー解析はこれまでに多く行われているが、自己エネルギーの波数依存性まで考慮した解析は行われていない。本研究では、銅酸化物高温超伝導体  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO)について数種類の組成の試料を用いて角度分解光電子分光(ARPES)を行い、ノード方向の準粒子スペクトルを測定した。各波数におけるエネルギー分布曲線(EDC)について Kramers-Kronig 変換を行い、波数依存性を含む自己エネルギーを求めた。

図 1 に  $x=0.03$ [1]と  $x=0.22$  について得られた自己エネルギーを示す。波数方向に平均化したものと  $k=k_F$  の自己エネルギーを比較すると、 $x=0.22$  では両者はほぼ一致する。一方で  $x=0.03$  では異なる振る舞いをしめすことがわかった。このことからアンダードープ領域では自己エネルギーの波数依存性が強いと言える。フェルミ液体である  $\text{SrVO}_3$ でも同様の研究[2]が行われており、 $x=0.22$ と同様に波数依存性が弱い結果が得られている。本発表では、反強磁性相近傍からフェルミ液体相で見られる自己エネルギーの相違と、その起源について議論する。



[1] T. Yoshida *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 027001(2003).

[2] S. Aizaki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 056401(2012).

図 1: 自己エネルギー解析の結果。上段に波数方向で平均をとったもの、下段に  $k=k_F$  での自己エネルギーを示す。

## 軟 X 線光電子分光による Ru ナノシートの 電子構造の観測

### Electronic structure of Ru nanosheet observed by soft X-ray photoemission spectroscopy

小寺健二郎, 下中大也, 山本紳太郎, 柴田大輔,  
内本喜晴, 福田勝利<sup>A</sup>, 小林正起<sup>B</sup>, 組頭広志<sup>B</sup>, 豊田智史<sup>C</sup>, 池永英司<sup>D</sup>,  
吉田鉄平

京大人環,<sup>A</sup> 京大産官学,<sup>B</sup> KEK-PF,<sup>C</sup> 京大工,<sup>D</sup> JASRI/SPring-8

近年、遷移金属ナノシートは触媒、電極材料等への応用を目指した研究が進められている。Ru ナノシートにおいて紫外・可視・赤外分光法の測定結果からは層数に依存して金属-絶縁体転移を示すことがわかっている

[1]。今回、これらの電子状態を明らかにするために、Si 基板上に製膜した Ru ナノシートの軟 X 線光電子分光を PF BL-2A で行った。清浄表面は 300°C で 15 分間アニールを行った。図にフェルミ準位付近のスペクトルを示す。9 層では明瞭なフェルミ端を示すが、層数の減少とともにエネルギーギャップが開き、1 層では 0.6eV 付近からスペクトルの強度の減少がみられた。これは SPring-8 BL-47XU で測定した硬 X 線光電子分光スペクトルと同じ傾向を持っていた。また、2, 4eV に Ru 4d 軌道の状態密度を反映した構造になっている。

これらの結果をもとに、Ru ナノシートにおける金属-絶縁体転移の機構について議論する。

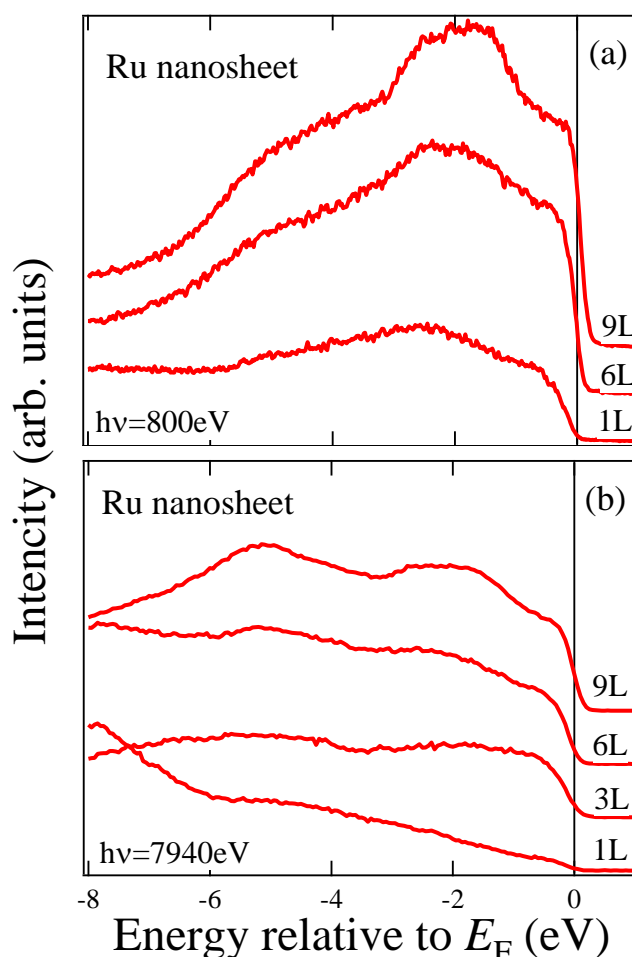


図 : Ru nanosheet のフェルミ準位近傍の光電子スペクトル。励起光エネルギー (a)hv=800eV, (b) hv=7940eV

参考文献

[1] K. Fukuda *et al.*, *Inorg. Chem.* **52**, 2280 (2013).