

物性研だより

第44巻
第2号

2004年7月

目次	1	物性研に着任して	佐藤 卓
	3	物性研に着任して	大谷義近
	4	スーパーコンピュータ支援によるソフトマスターの計算機シミュレーション	山本量一
		研究室だより	
	7	○軌道放射物性研究施設	柿崎明人
		物性研究所短期研究会報告	
	12	○高圧物性21：圧力誘起量子相転移	
	62	○LEEM・PEEMを用いた表面研究の新しい展開	
	87	○遷歴系の特異な磁性と磁性材料への応用	
	106	物性研究所談話会	
		物性研ニュース	
	112	○受賞	
	115	○人事異動	
	116	○東京大学物性研究所の教官公募の通知	
		編集後記	



極紫外・軟X線放射光源施設 (イメージ図)

東京大学物性研究所

ISSN 0385-9843

物性研に着任して

中性子科学研究施設 佐藤 卓

この度 3 月 31 日付けで中性子科学研究施設に着任いたしました。それまでは茨城県つくば市にあります独立行政法人物質・材料研究機構 材料研究所で主に準結晶の物性に関する研究を行って参りました。物性研究所では中性子散乱をキーワードに、これまで研究して参りました準結晶だけに留まらず、新奇な物性を示す物質群の研究を広く行っていきたいと考えておりますので、宜しく願い申し上げます。

さて、大学院を出てからほぼ 8 年間、国立研究所（現在独立行政法人）で研究をしてきた訳ですが、物性研究所に着任して国立研究所と大学の差を強く感じる毎日です。国立研究所は基本的には国策として定められた研究を行うところであり、大きな意味での研究目標は国が定めるところとなっています。従って、研究者の個人的発想に基づく研究を行いたいと希望する場合、まずその研究が所の方針に沿っている、必要ならば所の方針を変えるという過程が（大なり小なり）必要になります。この点は基本的に個人の発想が尊重される大学とは大きく異なりますし、常々研究は個人の能力、発想によるものだろうと考えていた私にとって大学は溶け込みやすい雰囲気です。一方で、国立研究所では研究だけが唯一の目標ですから、組織そのものが研究だけに最適化されています。（もちろん、色々と問題はありますが、少なくとも目標としてはそうです。）大学には、種々の目標（研究、教育、共同利用等）があり、これらのバランスを取る必要性からまだ最適化が完全では無いようで、いわゆる雑用が数々存在しているように感じます。大学が大学である所以と言ってしまうとそれまでなのですが、雑用に支配され、研究時間は圧倒的に減ってしまったというのが正直な感想です。ところで、国立研究所が研究に最適化されはじめたのはそれほど昔の事ではなく、私が明らかな変化を感じたのは 3 年前の国研独法化の時でした。独法化に際して事務処理は大幅に簡素化されましたし、サポートスタッフの制度もかなり改善されました。

（もちろん独法化は良い面ばかりではなく、例えば論文数とインパクトファクターによる数値化された厳しい評価制度が導入された事は、研究にノルマ制を持ち込んだ感が否めなく残念でなりませんでした。）従って、大学に於いても独法化をチャンスと捉え色々な制度の簡素化に積極的に取り組む事で問題の多くはいずれ解決するものと期待していますし、解決に向けて努力する所存でも有ります。

さて、研究に話を移します。私は大学院では 3 角格子磁性体や重い電子系の中性子散乱による研究を行って参りました。そんな私が、ちょっとした運命のいたずらから、科学技術庁傘下の金属材料技術研究所（現物質・材料研究機構）に拾われ、準結晶という毛色の変った物質の物性を研究する事になりました。当時既に日本の物理屋の間ではあまり話題に上る事の無くなっていた準結晶ですが、しかし、それは本質が解明されたという事ではなく、色々な事が理解されないままに徐々に興味が失われてきたという状況に思えました。そこで、金材研時代の 8 年間は、それまで手つかずの問題であった準結晶の磁性を調べました。今後、是非チャレンジしたい問題としては「なぜ準結晶構造が安定に形成されるのか？」という問題が有ります。準結晶はある種の合金をただ普通に液体から固化する事によって得られますが、なぜ周期性がないにも関わらず高い秩序を持ったいわゆる準周期構造が安定にさも簡単に形成されるのかは未だ理解されていません。中性子散乱（特に非弾性散乱）を用いてこの謎にどこまで迫れるか、乞うご期待というのが今の心境です。

一方、せっかく職場が変わったこの機会に新しい分野にも是非チャレンジしたいと考えています。中性子散乱は世界的に見ても現在大きな転換期に差しかかっていると言えます。米国と日本で共にこれまでの約 1000 倍の測定効率を目指したパルス中性子源計画が走っており、今後 5 年ぐらいの間に両方の施設が稼働しはじめるでしょう。稼働の暁にはこれまで不可能と考えられていた微小サンプルの非弾性散乱や、表面界面の研究、さらには極限環境下での研究が可能になると期待されます。このような時期に、物理的には興味深いにも関わらず試料の量の問題でこれまで中性子実験が出来なかった物質をリストアップしておく事は大変重要な事でしょうから、暇を見付けては色々見聞を広めているところです。一方で、少なくとも現状では、中性子散乱には他の実験では考えられないくらいの量の試料が必要な事も確かで、共同研究者の皆様に大量の試料作成をお願いするのもなかなか気が引けるものです。そこで、柏の物性研には主に金属系物質の試料作成および単結晶育成環境と簡単なキャラクタリゼーション環境を整えているところです。さらに、今後はこれまで以上に新しい中性子散乱法の出現が期待されます。中性子散乱の実験法は近年まであまり本質的な改良を見なかったのですが（逆に言うと最初から完成された手法であったとも言えます）最近、中性子光学やディテクター開発に新しい風が吹き込まれています。このような新しいテクニックを積極的に利用した新しい分光法の開発も是非行ってみたいと考えています。

このような中性子散乱にとって激動の時期に物性研中性子で仕事出来る事は大きなチャンスであると考えております。何とぞよろしくお願い申し上げます。

物性研に着任して

ナノスケール物性研究部門 大谷 義近

この4月1日付けでナノスケール物性研究部門に着任いたしました大谷です。誌面をお借りして、物性研とのかかわりを含めた研究経歴を簡単に紹介させていただき、今後の抱負を述べようと思います。

思い返せば物性研には学部・院生時代、また東北大学助教授時代にも大変お世話になりました。学部・院生時代には物性研から慶応義塾大学物理学科に移られた近角聡信先生と宮島英紀先生（現・慶応義塾大学物理学科教授）のご指導を受けて、希土類遷移金属化合物（Nd-Fe-B 合金）の磁気異方性を中心にその保磁力機構について研究を行いました。当時、15テスラを超える磁気異方性磁場を持つ磁性体の強磁場磁化測定を行うのは一研究室の設備では困難であったため、たびたび六本木の物性研磁気1部門の三浦登先生を訪ね、当時助手の中尾公一氏（現超伝導工研）の指導の下に、強磁場施設（一巻きコイルを用いたパルス磁場）を使った強磁場磁化測定をさせていただきました。物性研の恵まれた実験環境や最先端の実験設備に目を見張ったのを覚えています。

博士課程終了後は、ヨーロッパ連合の永久磁石の物性に関わるプロジェクトに博士研究員として採用され、アイルランドのダブリンに渡りました。そこでもしばらく希土類金属間化合物の研究を続けました。この間、物性研究の手ほどきを受けると同時に、結晶格子間隙に窒素や炭素を挿入し磁気異方性を制御する等、結晶場を起源とする磁気異方性の不思議や魅力に触れる多くの機会を持ちました。もちろん研究ばかりでなく研究室では収まらない議論をアイリッシュパブでギネスを片手に続けることも体験しましたし、いつも“**他人とは違うことをしたがる**” 良い意味で“**創造的**”な悪くは“**気まぐれで頑固**”なアイルランド人気質を学びました。当時の海外留学のメッカがアメリカであったことを考えると、極東の若年研究者があえて極西の国アイルランドに行ったことは私の性格とアイルランド気質は良く合っていたのでしょう。そのせいか、アイルランドの生活は大変楽しく充実したものでした。また研究の進め方などアイルランド人気質は後の私に大きな影響を与えたように思います。

続く、フランス（グルノーブル）の研究員時代には、私の磁性体研究に対する興味の対象はナノスケール磁性体の磁気物性にまで広がりました。人工的に作製した強磁性体を用いて磁化反転、磁化状態、磁気抵抗などの磁気・伝導物性を制御することやナノ磁性の面白さを知りました。さらに、メゾスコピック物理の研究者の影響を受けて、微小磁石配列を超伝導体と組み合わせて電気伝導物性を測定することを始めたのもグルノーブル時代です。丁度その頃は、強磁性体と非磁性体を相互に積層した金属人工格子において巨大磁気抵抗効果（GMR）が発見された直後で、それを契機に磁性体を用いたスピン依存伝導に関する研究の重要性が認識され、新しい分野である“スピン（エレクトロ）トロニクス”が台頭し始めた頃です。GMR にまつわるスピン依存伝導現象が多くの研究者の注目を浴びており、私は膜厚方向の制御から面内と3次元の構造制御がポピュラーになるのだらうとおぼろげながら感じていましたが、それが今の私の研究対象になっています。続いて、東北大学時代は、強磁性微粒子配列格子や細線に特化して研究を進めました。ようやく磁性体のナノ構造が作製できるようになり、少しずつ研究結果が出始めた頃に、まだ六本木にあった物性研先端領域部門の客員研究員として実験させていただく機会を得ました。これが物性研との2回目のコンタクトです。

当時はまだスピン方向に依存した散乱が研究の中心であったのですが、その後の展開は急速で今では、スピン依存散乱によりスピン角運動量を局在モーメントに移送し生じるトルクを利用して磁化反転を誘起する事（磁場の要らない磁化反転）やスピン流と電荷流を分離するなどの事がしごく当たり前を実現できる世の中になっています。その後の、理化学研究所のフロンティア研究システムにおいてはこれらの現象に着目した研究を始めて現在に至っています。物性研に立ち上げる研究室では、着目する物理現象は同じでもアイルランド人気質に則り、エスプリに富んだユニークな研究を進めて行きたいと思います。どうぞよろしく願いいたします。

スーパーコンピュータ支援によるソフトマターの計算機シミュレーション

京都大学大学院理学研究科、物性研究所客員講師 山本 量一

このたび平成 16 年 4 月より 6 ヶ月間、客員講師として物性研にお世話になります。表題の様な研究テーマを今田正俊教授にご提案させていただきましたところ、快くホストをお引き受けいただくことができました。これまで私は、分子シミュレーションの手法を用いてミクロとマクロの中間のメソスケールが重要な役割を果たしているソフトマター(高分子、液晶、ガラス、コロイド…)について、レオロジーやダイナミクスに関する基礎的な研究を行ってきました。ソフトマターで生じる問題の多くは、系の個別の複雑さにより理論的なアプローチが極めて難しく、巨視的な実験事実とその微視的メカニズムとを直接結ぶための強力な手法としてコンピュータシミュレーションが必要とされています。機能性材料の宝庫として期待されていることもあり、ソフトマターには多くの工学的に重要な問題が存在しますが、以下にあげたものは特に私自身が今後数年間集中して取り組みたいと考えている研究課題であります。いずれも現時点までに基礎的な研究成果を得ているものですが、今後数年で応用につながる可能性を有していると考えています。特に今回は、物性研究所が運営しているスーパーコンピュータシステムを最大限に利用して、これまで達成不可能であった領域(例えば 3 次元の多粒子シミュレーション)に挑戦したいと考えております。スーパーコンピュータの利用者として CPU 時間をいただくだけでなく、今回の機会を利用して物性研内部でシステムの運営に携わっている方々や、ソフトマター以外の分野で数値計算に携わっている方々と直接お話しできればと願っています。

1. ハイブリッド型分子動力学シミュレーションの開発と応用

ソフトマターをはじめ、機能性材料として重要な物質の多くは空間的にも時間的にも全くスケールの違う階層構造で成り立っている場合がほとんどであり、最先端のシミュレーションといえどもすべての階層を同じレベル(計算手法)で取り扱うことは現実問題として不可能です。例えばコロイドや生体分子の溶液であれば、溶媒を構成する分子の大きさや運動の時間スケールはコロイド粒子や生体分子のそれらより何桁も小さく、シミュレーションのスケールを前者にあわせると意味のある結果を得るまでに世界最速のスーパーコンピュータを用いても天文学的な計算時間が必要になります。逆にコロイドや生体分子の方にスケールをあわせようとする、今度は多かれ少なかれ現実と乖離したモデル(トイモデルなど)を用いざるを得ず、実際の物質との対応が希薄になってしまいます。このようなマルチスケールの階層性こそがソフトマターなどにおいてシミュレーションを困難にしている最大の要因となっています。この原理的問題を克服した新しいシミュレーション法の開発が望まれており、その具体的な手法の 1 つとして我々は「ハイブリッド型分子動力学(MD)シミュレーション」の方法を提唱し、研究を実施しています。この方法はソフトマターのような速いダイナミクスと遅いダイナミクスが共存する系において特に有効となります。前者の自由度を完全に消去するのではなく、連続体として粗視化したメソスケールの変数として与え、モデルとして妥当な密度汎関数を通じてそれらの自由度を物理的に正確に、なおかつコンピュータで扱いよい形で扱うのがハイブリッド型 MD シミュレーションの最も大きな特長となっています。

ハイブリッド型 MD シミュレーションの開発は科学技術振興機構・戦略的創造事業に採択していただいております、実はその会合で今田先生とご一緒させていただいたことが今回の客員研究の発端となりました。我々の方法は適応の範囲が大変広く、水中の生体分子や界面が関与する問題、ナノテクノロジーによる機能性材料開発、マイクロ流体デバイスやマイクロラボ等の諸問題への応用が可能と考えています。各種溶媒に分散するコロイド粒子への応用についてはすでに成果が得られており、「荷電コロイド分散系の構造形成(図 1)」と「ニュートン流体中でのコロイド粒子の沈降(図 2)」について、最新のシミュレーション結果を次頁に示します。

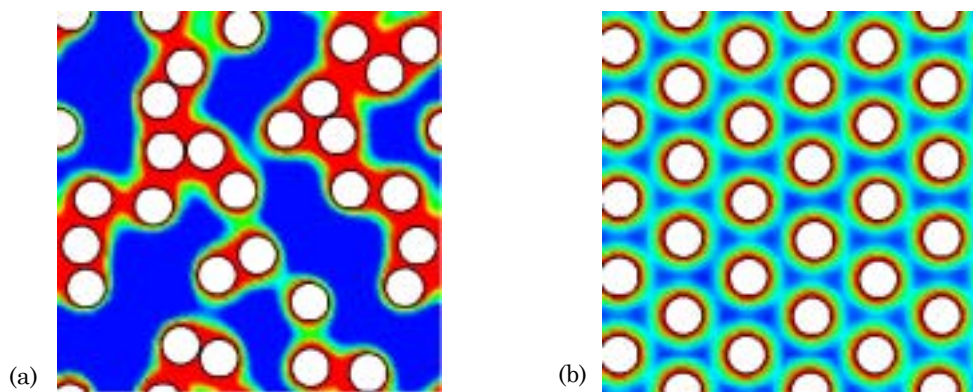


図 1. 対イオン雰囲気中で分散する荷電コロイド粒子（白丸）の構造形成：(a) 初期状態（ランダム）、(b) 最終状態（2次元ウィグナー結晶）。色は対イオンの密度を表し、コロイド近傍の赤い部分に多く存在し、青い部分にはほとんど存在しない。ハイブリッドMDの方法では、電場のポアソン方程式にコロイド表面での境界条件が必要ないため静電ポテンシャルを高速に計算することが出来る。2004年度中に塩の効果と溶媒の流体力学効果を取り込み、現実系への適応範囲を広げる予定である。機能性材料の製造プロセスや生体系への応用が期待できる。

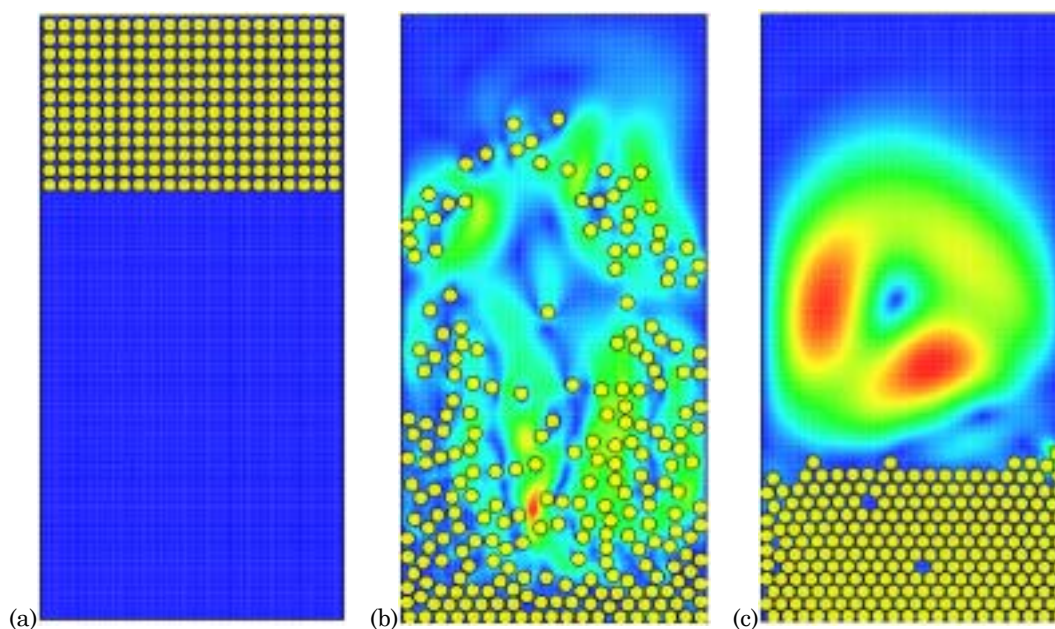


図 2. 非圧縮ニュートン流体中を重力により沈降するコロイド粒子（黄丸）：(a) 初期状態、(b) 中間状態（流体力学相互作用により渦が発生して粒子の運動が大きく乱されるが、レイノルズ数が小さいのでいわゆる乱流とは異なる）、(c) 終期状態（まだ渦が残っているが流体の粘性によりやがてすべてが静止する）。色は流体の速度の大きさを表し、赤い部分では速く、青い部分では静止している。ハイブリッドMD法ではコロイド表面での境界条件が必要なく、従来の方法に比べて劇的に速くナビエ・ストークス方程式を時間発展させることが出来る。液晶等の複雑液体の溶媒への拡張を計画している。

最近注目を集めているマイクロ流体デバイスやマイクロラボでは流体力学効果が本質的に重要であり、問題の解決や設計にハイブリッドMD法の応用が期待できます。このようなメソスケールの移動現象では流体のレイノルズ数が小さいために、いわゆる乱流の効果は無視することが可能です。逆に熱や物質の拡散の効果が大きくなり、イオンの分布や分子の配向など溶媒の内部自由度の影響も重要になります。これらのことから、メソスケールの移動現象では化学プラントのような大きなスケールで発生する流動現象とは質的に異なる知識と技術が必要となります。現在我々はプログラム開発を効率的に行うために2次元の系を扱っていますが、現実の物質（3次元系）への適応が目的であることは言うまでもありません。

2. ガラス状物質の変形機構・レオロジーの研究

非晶質（アモルファス）固体、あるいはガラスといわれる物質は、材料工学や電池などのエネルギー工学上極めて重要な位置付けとなっています。例えばすでに応用が盛んなアモルファス合金は液体状態が凍結された固体であり、その物性は結晶金属より硬かつ壊れにくいという優れた力学的特性を持ち、固化温度より少し高温ではいわゆる過冷却液体として高分子溶液体に類似した粘弾性を持ち非線形流動を示すことが知られています。このようなアモルファス状態にある物質の変形機構は、原子の規則配列がないことから結晶固体状態のそれとは本質的に異なるためにほとんど解明されておらず、重要な問題となっています。コロイド結晶・コロイドガラスなどでも本質的に同様な現象が知られており、これらは実験的容易さもあって近年研究が盛んになって来ています。

通常の結晶では格子欠陥の運動が重要ですが、アモルファス固体では構造そのものが不規則であり、さらにその変形機構は塑性変形を伴うため非線型となります。しかも多くの粒子が関与するために協調的でもあります。近年、ガラスの研究の象徴的な成果の一つとして、静的な粒子配置などに不均一性や長距離揺らぎがほとんど見られないにもかかわらず、せん断や延伸に対する変形過程で粒子の再配置が空間的に不均一に起こることが分かって来ました。これらは種々のガラス物質に共通する性質であり、動的不均一性と呼ばれています。低温において数個の粒子が関与して間歇的に起こる小規模の動的不均一性については竹内伸先生（元物性研所長）や樋渡保秋氏（金沢大学）の先駆的な計算機実験による報告がありますが、数十～数千の粒子が関与する長距離の不均一性を可視化して定量的に解析を行ったのは我々の研究が最初であると考えています。この様な研究は大規模な分子シミュレーションによって初めて可能となったもので、世界に先駆けて日本で研究が進んだこともあり、今後数年間でさらに大きな成果が期待できるという点を強調したいと思います。一方、山室修助教授らの精力的な研究によってガラス転移近傍で **Correlated Rearrangement Region(CRR)** と呼ばれる粒子の協調運動が明らかになっており、動的不均一性との関連が議論されています。

今後は、未だに解決していない問題、即ち

1. ガラス状態に不均一性が出現するメカニズム
2. アモルファス物質の変形構造
3. 流動状態にあるガラス状物質の性質

についての解明をめざしたいと思います。もちろんこれらの問題は静的構造や線形応答の枠内では本質に迫ることができず、分子シミュレーションによる解析が不可欠なものとなります。

これまでのガラス・ガラス転移の研究の多くは仮想的なモデルの世界にとどまっているため、実際の材料の物性との関連が明確でなく現実の問題にはあまり役に立っていないと感じています。また研究者の関心の多くも平衡状態における線形応答の枠組みを出ていないと考えられます。本研究はアモルファス物質に共通する特異な移動現象をより直感的に理解したいという素朴な理学的発想から出発していますが、最終目標はガラス物質の実用上・工学上最も重要な力学的・動的性質を解明することを目指しています。さらにアモルファス物質を足がかりとして、将来的には非線形・非平衡領域にある物質に関する新しい研究領域を開拓したいと考えています。その際に、スピングラスにおいてエイジング等の非平衡の問題に取り組んでおられる高山一教授のグループの先駆的な研究がよいお手本になることは言うまでもありません。

研究室だより

軌道放射物性研究施設

軌道放射物性研究施設 柿崎 明人

(1) はじめに

軌道放射物性研究施設（以下、SOR 施設）は 1975 年に設立され、田無キャンパスで世界最初の放射光源専用加速器である SOR-RING を運転・管理して共同利用に供するとともに、放射光を利用した物性研究を推進する中心的な施設の一つとしてその役割を果たしてきた。その後、建設から 20 余年を経過して老朽化著しい SOR-RING の共同利用を 1997 年に停止し、2000 年春から柏新キャンパスに活動の拠点を移した。この間 SOR 施設では、SOR-RING の後継機として第 3 世代の極紫外・軟 X 線領域の光源加速器を備えた全国共同利用の放射光施設を建設する計画を推進し、光源加速器とビームラインの R&D を行うとともに、高エネルギー加速器研究機構内につくば分室を設置してフォトンファクトリー（PF）に建設・整備した 2 本のアンジュレタビームラインと偏向電磁石からの放射光を利用するビームライン 1 本を共同利用に供し、放射光を利用する物質科学研究を行ってきた。現在、SOR 施設は加速器科学を研究分野とする研究室 1（中村研究室）、放射光利用研究を主な研究分野とする研究室 2（柿崎研究室、木下研究室）で構成され、スタッフは教授 1 名、助教授 2 名、助手 4 名、技術職員 6 名、研究支援推進員 2 名、非常勤職員 2 名である。

以下では、SOR 施設が推進している第 3 世代の極紫外・軟 X 線放射光源施設（Super-SOR）計画の現状と柏キャンパスとつくば分室で行われている活動について紹介する。

(2) 極紫外・軟 X 線放射光源施設計画 [1]

SOR 施設では 20 数年前から SOR-RING の後継機を建設する計画が検討され、これまでにいくつかの光源加速器が予算規模や建設予定地に合わせてデザインされてきた。一方 2001 年、文部科学省が主宰する極紫外・軟 X 線放射光源計画検討会議（以下、検討会議）のもとで、第 3 世代の光源加速器を備えた共同利用施設計画を策定する作業がスタートし、極紫外・軟 X 線領域の高輝度放射光源を備えた施設計画が実現に向かって動き出した。

検討会議では、世界の放射光施設の現状分析と光源加速器のレビューに基づいて、建設すべき高輝度光源加速器の仕様と設置形態などが約 1 年間にわたって議論され、2002 年 5 月に極紫外・軟 X 線放射光源計画の最終案を取りまとめて文部科学省にその早期実現を提案した。その後、全国のエキスパートで構成されたナショナルチームともいえるワーキンググループ（WG）によって、光源加速器およびビームラインと分光光学系の基本設計が策定され、利用計画の提案と共に「極紫外・軟 X 線放射光源計画デザインレポート」[2]としてまとめられた。現在、WG を中心にして計画の実現に向けた仕様の広範な検討と構成機器の詳細な設計、R&D を進める作業が続いている。SOR 施設では、この基本設計にもとづいた極紫外・軟 X 線領域の光源加速器を SOR-RING の後継機として柏キャンパスに建設する計画を推進しており、

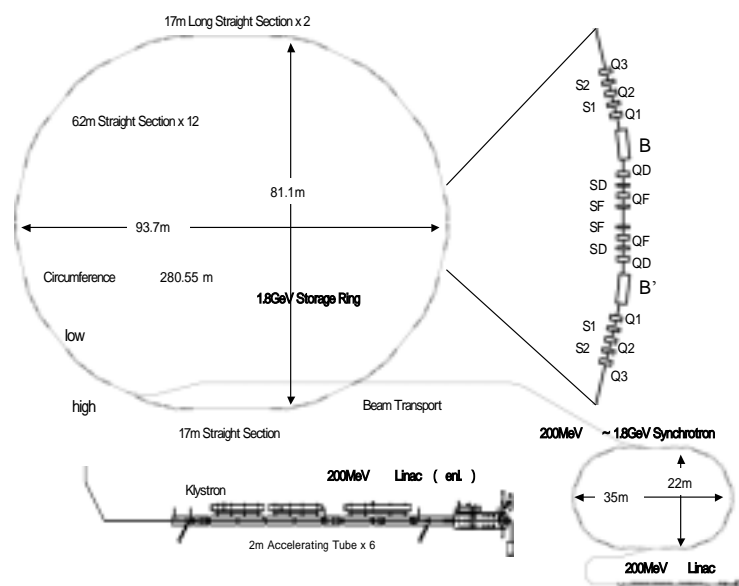


図 1 極紫外・軟 X 線放射光源計画の加速器システム

WG で進めている R&D で中心的な役割を果たしている。

Super-SOR 計画の光源加速器は、エネルギー1.8 GeV、周長 280.55m の電子蓄積リングで、電子ビームのエミッタンスが 1.8GeV で 8nmrad、1GeV で 2nmrad の第 3 世代の放射光源である。図 1 に加速器システムの全体図を示した。この加速器システムの特徴は、アンジュレータのギャップによらず常時入射が可能でトップアップ運転を利用開始時から導入することを想定した設計がシステム全体にわたってなされていることである。トップアップ運転は、蓄積リングに電子を常時入射して電子ビームの減衰を補償し、蓄積電流を一定にする最先端の加速器技術で、積分輝度の改善だけでなく放射光パワーを一定にして加速器構成機器およびビームライン光学素子が受けるビーム強度の変動による影響を大幅に軽減させ、極めて高品質な放射光をビームラインへ供給することを可能にする。

光源加速器には、挿入光源用の直線部が 12 本 (6.2m の直線部×10、17 m の長直線部×2) あり、利用目的に応じたエネルギー領域や偏光特性をもつアンジュレータを多数設置することができる。また、超高輝度放射光、コヒーレンス、高速偏光スイッチング、マイクロビームなど、アンジュレータ放射の特徴を最大限生かした利用も可能となる。図 2 に光源加速器で得られる放射光スペクトル (エネルギー1.8 GeV、ビーム電流 400mA) を示す。U_{xx} と U_{xxL} は、それぞれ 6 m 直線部と 17 m 直線部に周期長 xx mm のアンジュレータを入れた時に予想されるスペクトルである。わが国の代表的な放射光施設である SPring-8 と PF で得られるスペクトルと比べると、この光源加速器が極紫外・軟 X 線領域で優れた性能を発揮し、硬 X 線領域の高輝度光源である SPring-8 と相補的な役割をはたすことがわかる。

ビームラインは、直線部のアンジュレータから 12 本、偏向電磁石からは上流側および下流側からそれぞれ 1 本の合計 28 本取り出すことが可能である。図 3 にビームラインの配置 (案) を含む高輝度光源施設の平面図を示す。基幹チャンネルおよびビームラインの構成要素とそれらの配置、種々の挿入光源からの熱負荷の除去、トップアップ運転時の効率的な放射線遮蔽など、SPring-8 や PF で得られたノウハウを生かした設計作業が WG の検討作業と共同歩調をとりながら進められている。検討会議では、アンジュレータ放射を利用する多くの研究計画が必要とする放射光の性能とともに提案された。Super-SOR を利用することによって、ナノ・材料科学 (ナノ構造物質の創成、特性評価、新機能解明、強相関物質テクノロジー)、生命科学 (染色体構造、分子モーター観察、細胞組織の放射線応答)、物性科学 (磁性、表面・界面、触媒、高分子・ソフトマテリアル)、基礎光科学 (原子・分子、環境) などの諸分野を中心に、極紫外・軟 X 線領域でマイクロビーム、コヒーレンス、高フラックス、時間分解などを活用した先端的な研究の大きな発展が予想される。

一方、光源加速器の 6m 直線部に周期長 20mm のアンジュレータを設置すると、十分な

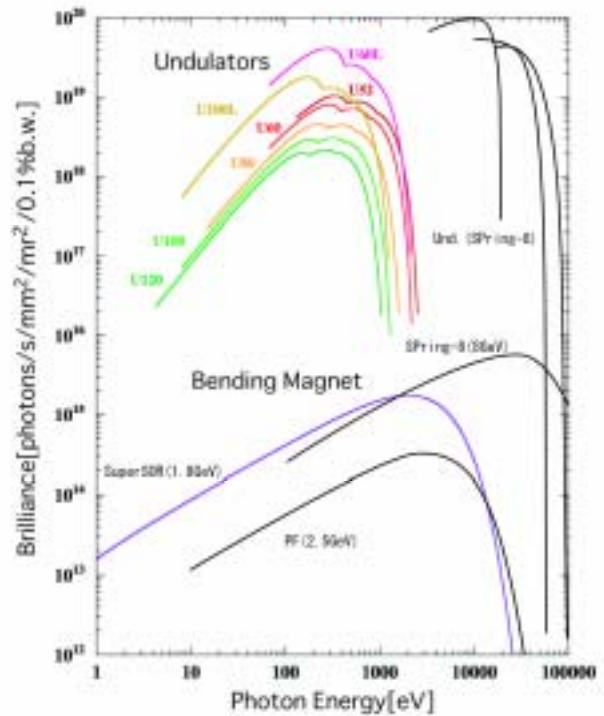


図 2 光源加速器から得られる放射光

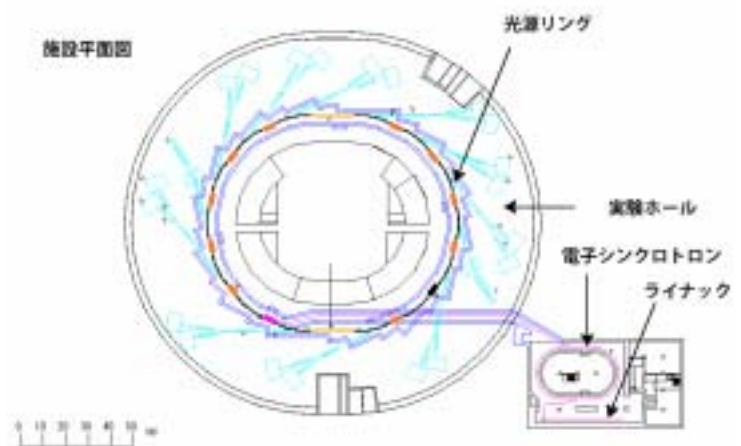


図 3 極紫外・軟 X 線放射光源施設の平面図

強度 (10^{12} photons/sec/0.1%b.w. 以上) で 10 keV を超える X 線が得られることが知られており、Super-SOR は汎用の X 線光源として蛋白質の構造解析にも利用できる。Super-SOR 計画が、2005 年に開通するつくばエクスプレス沿線に位置する柏キャンパス内に高輝度放射光を利用する施設を建設する計画である。このため、計画の実現は放射光の産業利用や地域連携にとっても利便性に優れた中核的拠点が整備されることになる、と各方面から期待されている。

(3) 柏キャンパス

柏キャンパスでは、Super-SOR 計画の推進と光源加速器およびビームライン・分光光学系の設計・開発研究がおこなわれ、中村研究室を中心に放射光加速器の研究開発とそれに関連するビーム物理の研究が行われている。中村研究室では、各種のゼミナールや 2 週間に 1 回のペースで報告会を開き、お互いの活動内容や進捗状況を確認し合いながら研究活動を進めている。また、昨年は Super-SOR 計画の光源加速器に関するワークショップ (図 4) を開催し、45 名の全国の加速器研究者や放射光ユーザーを交えて光源加速器の設計及び開発研究について活発な議論が行われた。

Super-SOR の加速器システムは、第 3 世代の放射光源である 1.8GeV 電子蓄積リングと入射器のシンクロトロンとライナックで構成され、蓄積電流を一定にするトップアップ運転を可能とする設計になっており、高性能な挿入光源 ($15\text{m}\times 2$, $4.5\text{m}\times 10$) の設置と最先端の加速器技術 (超高真空、電磁石、高精度ビーム計測、高速軌道安定化制御、高次モード減衰型加速空洞等) の導入によって高安定・高品質な高輝度放射光を供給する。中村研究室では、これらの加速器を構成する各機器の設計や開発研究を SOR 施設の実験棟 (図 5 : 高輝度光源推進室) で行っている。また、ビームを用いた試験や開発研究は高エネルギー加速器研究機構(KEK)の加速器を利用して推進している。図 6 は、最近つくばの KEK-ATF に建設した高分解能電子ビームプロファイルモニタのビームラインで、Super-SOR での高精度ビーム計測の開発研究が行われている。

これまでに開発したものの中で、高次モード減衰型加速空洞は PF の 2.5GeV リングに設置されて PF の高度化に威力を発揮しているだけでなく、その優れた性能が認められてオーストラリアで現在建設中の放射光源施設 (BOOMERANG) でも採用された。また、Super-SOR 計画のビームラインに適合する可変偏角分光器の駆動機構の R&D が終了し、PF の新しいビームライン (BL28) に設置されることになった。

(4) つくば分室

SOR 施設では、PF の 2.5GeV リングにアンジュレータ 1 基と 3 つの実験ステーションを持ち、ビームラインを維持・管理して放射光を共同利用実験に提供する



図 4 高輝度光源計画の光源加速器に関するワークショップ (2003 年 8 月)



図 5 SOR 施設実験棟 (高輝度光源推進室)



図 6 高分解能電子ビームプロファイルモニタのビームライン (KEK-ATF)

と共に、2つの研究室（柿崎研究室、木下研究室）を中心にして高輝度放射光を利用する物性研究、Super-SOR 計画の新しいビームライン・分光光学系の設計・開発、先端的放射光利用実験をめざした装置開発を行っている。



図7 リボルバー型アンジュレータ



図8 BL19A スピン・角度分解光電子分光実験装置



図9 BL19B 軟X線発光分光実験装置

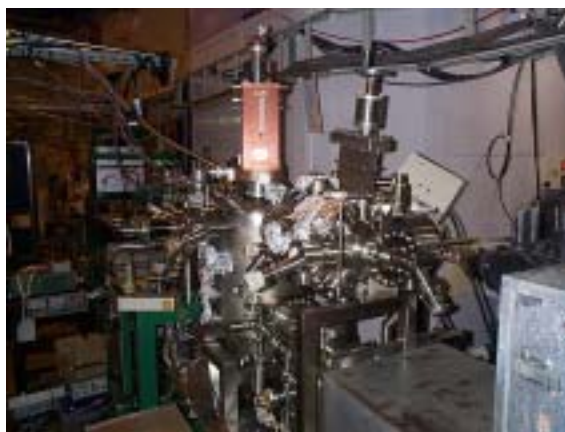


図10 BL18A 角度分解光電子分光実験装置

PFに設置されているアンジュレータは4連の磁石列を回転して10から1000eVまでの極紫外および軟X線の広い領域を基本波でカバーすることができるリボルバー型(図7)で、20~250 eV および10~1000 eV のエネルギー領域に適合した2本のビームライン(BL-19A および BL-19B)にタイムシェアして導かれ、スピン分解光電子分光実験 (BL-19A)および軟X線発光分光実験 (BL-19B)に利用されている。もう一つの実験装置は偏向電磁石からの放射光(10~170eV)を利用するビームライン (BL-18A) に設置されている角度分解光電子分光実験装置 (VG-ADES500) である。

BL-19A (図8) は、アンジュレータから得られる大強度放射光を利用してスピン分解光電子分光実験を行うことを目的として建設されたビームラインである。電子スピン検出器が当初の100keV モット検出器からSOR 施設で開発された25 keV 小型モット検出器に変更されて、世界でも数少ないスピン分解と角度分解の光電子分光実験が同時に行えるビームラインとして表面磁性の研究に利用されている。また、このビームラインではスピン検出効率を上げるためのR&Dのほか、長谷川研究室と共同で、放射光照射下でSTM 実験を行うことによって新しい元素選択的顕微鏡を開発する研究が進められている。

BL-19B (図9) は、辛研究室の協力で軟X線領域の発光分光実験ができる実験ステーションとして整備され、強相関電子系物質をはじめとするさまざまな物質の発光分光実験、光電子分光実験が行われ、多くのユーザーに活用されている。

BL-18A (図10) では、角度分解光電子分光実験と角度積分型の実験もでき、価電子帯構造の解析や浅い内殻電子励起による共鳴光電子分光などの実験がさまざまな物質で行われている。光電子スペクトルのエネルギー分解能が数10meVで、世界の最先端の性能とはいえないものの、高い到達真空度、試料の準備・評価装置の充実や小森研究室と共同開発し

た低温マニピュレータの利用などによって、ビームラインとして高いアクティビティを示している。また、多くのユーザーが新しいアイデアに富んだ実験を展開している。

それぞれの実験ステーションは、年間のべ5,000時間（200日）以上、約200名のユーザーの共同利用実験に使われている。各実験ステーションで行われた研究成果は、論文として発表されるだけでなく、毎年発行される“Activity Report of SRL-ISSP”にもSOR施設の活動報告と共に掲載されている。

現在、つくば分室には4名の職員（助教授1名、助手1名、技術職員2名）が常駐して共同利用実験のサポートをするとともに、表面磁性研究、光電子顕微鏡(PEEM)による磁区ドメインの観察やナノ構造物質の磁性解明など、高輝度放射光を利用する新しい研究領域の開拓も行っている。最近の研究成果としては、コバルト薄膜の垂直磁気異方性の研究、反強磁性体や微小磁性体のPEEM像観察などが挙げられる。

（5）おわりに

現在 Super-SOR 計画は、わが国のユーザーコミュニティが提案している多くの利用研究計画が実現できることを目指した放射光施設として、光源加速器およびビームラインの詳細設計と R&D が行われている。東京大学では、Super-SOR 計画を新キャンパスに新設する大型研究施設として位置付け、文部科学省に予算要求するとともに早期実現に向けた努力をしている。WG で活躍している 20 代、30 代の若手の努力が実を結ぶことを切望している。

SOR 施設のような共同利用施設で、施設職員がいわゆる Facility Scientist ではなく、主体的に研究し成果をあげるためには、広範な放射光利用研究、光源加速器研究分野から適切な研究テーマを選んで特徴あるサイエンスを展開し、新たな研究領域を開拓していくことが重要である。そのためには、新しい放射光利用研究の芽を取り入れていく柔軟な姿勢、活発な研究交流や人事交流が必要である。とくに、それを可能にするコミュニティの支援が欠かせない。幸い、これまで SOR 施設では多くの大学や研究機関の協力を得て新しい実験ステーションを建設・整備して新しい研究領域を開拓すると共に、人事交流についてもコミュニティから多くのサポートを得てきた。Super-SOR 計画の推進をはじめ、SOR 施設の活動はこの支援によって成り立っていると見える。この場をお借りして長年のご支援に感謝申し上げるとともに、今後も一層のご支援とご指導下るよう、皆様にお願ひする。

[1] 極紫外・軟X線放射光源計画の最新情報は、<http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/labs/sor/project/>

[2] 日本放射光学会誌 **16**、135-141 (2003).

物性研究所短期研究会

高压物性 21 : 压力誘起量子相転移

日時 : 2004 年 2 月 5 日 (木) ~ 6 日 (金)

会場 : 東京大学物性研究所 6 階大講義室

世話人 : 高橋 博樹 (日大文理)

上床 美也 (東大物性研)

近年、圧力をパラメータとする研究が盛んに行われてきている。特に最近の学会や国際会議では多くのグループが高压下のデータを報告しており、国内外を問わず非常に多くの物性研究者が高压実験に興味を持ち導入を考えていると思われる。このような発展は、最近の高压発生技術と測定技術の進歩と普及に負うところが大きく、それぞれの物性測定に適した圧力発生装置が考え出されて進歩してきている。

これまでに、最も普及している高压装置は技術的な制約から 2 GPa (以下 1GPa はおよそ 1 万気圧)以下に限られており電気抵抗をはじめ帯磁率、熱膨張、比熱、熱電能、NMR、dHvA 効果などの各測定が行われている。

一方、2GPa を超える領域は個人の技量によるところが大きいが、独創的なアイデアで精密測定が行われており、研究者人口も増加の一途である。

このような状況の中で、本短期研究会では、圧力誘起量子相転移をキーワードとし、圧力をパラメータとした物性測定について、圧力下物性測定、圧力発生技術、圧力下物質創成を中心に議論を行い、この分野でのさらなる発展を促していくことを目指しものである。

プログラム

2月5日

高压技術と物性測定 (座長: 落合 明)

- | | | |
|-------|-------------------------|---------------|
| 9:45 | はじめに | 上床 美也 (東大物性研) |
| 9:50 | 物性研究所における低温圧力発生装置の現状 | 上床 美也 (東大物性研) |
| 10:05 | 阪大極限科学研究センターにおける圧力装置の現状 | 清水 克哉 (阪大極限セ) |
| 10:20 | 繊維補強型ピストンシリンダーセルの試作 | 金道 浩一 (阪大極限セ) |

高压技術と物性測定 (座長: 辺土 正人)

- | | | |
|-------|------------------|-----------------|
| 10:40 | 異方的圧力発生への取り組み | 小坂 昌史 (埼玉大理) |
| 11:00 | 高压下 μ SR の現状 | 髭本 亘 (高エネ研) |
| 11:20 | 改良型ブリッジマン装置 | 竹下 直 (産総研 CERC) |
| 11:40 | 超高压高温実験技術の現状と展望 | 八木 健彦 (東大物性研) |

12:00~13:00 昼休み

13:00~14:45 ポスターセッション

- | | | |
|-----|------------------------------------|---------------|
| PS1 | DAC による精密測定技術 | 清水 克哉 (阪大極限セ) |
| PS2 | 重い電子系 YbAgGe の逐次磁気転移の圧力効果 | 梅尾 和則 (広大院先端) |
| PS3 | BiNiO ₃ における圧力誘起金属絶縁体転移 | 石渡晋太郎 (京大化研) |

PS4	正方晶 CeB_2C_2 の反強磁性秩序相における圧力効果	鬼丸 孝博 (東大物性研)
PS5	TlCuCl_3 及び KCuCl_3 の圧力誘起磁気量子相転移	後藤 健治 (東工大)
PS6	散乱でみる CuGeO_3 と NaV_2O_5 のスピンドYNAMIKSの圧力効果	関根 智幸 (上智大理工)
PS7	擬一次元導体における超伝導と振動論	佐々木創太郎 (京大理)
PS8	鉄基ホイスラー型合金の圧力依存性	福田 一紀 (島根大総合)
PS9	量子スピン系 NH_4CuCl_3 の圧力効果	藤澤 真士 (東工大院理工)
PS10	$(\text{Ba},\text{K})\text{BiO}_3$ における圧力誘起超伝導の探索	加藤 雅恒 (東北大工)
PS11	産総研強相関電子技術研究センターにおける圧力装置の現状	寺倉千恵子 (産総研 CERC)
PS12	中性子散乱によるスピングャップ系 TlCuCl_3 の圧力誘起相転移の研究	大沢 明 (原研先端研セ)
PS13	第一原理分子動力学法による異方的圧縮と格子異常	小林 一昭 (NIMS 計算研セ)
PS14	$\text{MP}35\text{N}$ を用いた μSR 用圧力容器の開発	佐藤 一彦 (埼玉大理)
PS15	重い電子系における圧力誘起超伝導の機構	深澤 洋乃 (姫工大院理)
PS16	CO_2SiO_4 スピネルの高圧合成とその磁性	齊藤 高志 (京大化研)
PS17	Co -グラニューラー薄膜における高次トンネル効果の圧力制御	加治 志織 (九大院理)
PS18	MnPS_3 の格子定数の圧力依存性	増淵 俊仁 (日大理工)
PS19	低温、高圧下の粉末 X 線回折測定装置	小山 和子 (東大物性研)
PS20	高純度合成ダイヤモンドによる超高压発生	中本 有紀 (阪大極限セ)
PS21	Ce_2RhSi_3 の圧力下における電気抵抗	中野 智仁 (東大物性研)
PS22	Ce_2RhIn_8 の圧力効果	小枝 真仁 (東大物性研)
PS23	YbMn_2Ge_2 の圧力誘起相転移	藤原 哲也 (東大物性研)
PS24	電気抵抗測定用小型ダイヤモンドアンビルセルの技術開発	狩野 みか (東大物性研)
PS25	リエントラント圧力誘起超伝導体 ZrTe_3	Melike Abliz (東大物性研)

試料作成・高圧下物性研究 (座長: 中村 文彦)

15:00	Bi , Pb -3d 遷移金属ペロブスカイト	東 正樹 (京大化研)
15:20	高圧下融液徐冷却法による GaN 単結晶合成	内海 渉 (原研・主任研究員)
15:40	希土類カルコゲナイド、プニクタイトにおける物理的圧力と化学的圧力	落合 明 (東北大極低温セ)
16:00	新しいピストンシリンダーを用いた強磁場 ESR システムの開発	太田 仁 (神大分子フォトセ)
16:20~16:40	休憩	

圧力下物性研究 (座長: 加賀山朋子)

16:40	静水圧、軸性圧力下の dHvA 効果	青木 晴善 (東北大極低温セ)
17:00	重い電子系の高圧下のドハース・ファンアルフェン効果	大貫 惇睦 (阪大理)
17:20	微小磁性体におけるトンネル型電気伝導と磁気抵抗の圧力効果 —高圧下の量子物性—	巨海 玄道 (九大院工)
17:40	ベータバナジウムブロンズにおける電荷秩序と圧力誘起超伝導	上田 寛 (東大物性研)
18:00	Charge Ordering and Superconductivity	福山 秀敏 (東北大金研)
18:30~	懇親会	

2月6日

圧力下物性研究 (座長:高橋 博樹)

- 9:00 圧力下の比熱測定を試み 梅原 出 (横国大工)
9:20 圧力が咲かせた” 悪魔の花” (NaV_2O_5 の電荷秩序) 藤井 保彦 (東大物性研)
9:40 有機伝導体での圧力研究の進展とそれゆえの注意点 村田 恵三 (大阪市大)
10:00 硫化スピネル CuRh_2S_4 における圧力誘起超伝導体絶縁体転移 鈴木 孝至 (広大院先端)
10:20 硫化スピネル化合物の圧力下熱電能 仲間 隆男 (琉球大理)
10:40 Cr、Mn の圧力誘起量子相転移 加賀山朋子 (阪大極限)
- 11:00~11:20 休憩

圧力下物性研究 (座長:加藤 雅恒)

- 11:20 高圧下におけるデラフォサイト型遷移金属酸化物 $\text{CuFeO}_2, \text{CuCrO}_2$ の磁氣的性質 高橋 博樹 (日大文理)
11:40 モット絶縁体から強磁性2次元金属へ: Ca_2RuO_4 の圧力効果 中村 文彦 (広大院先端)
12:00 ペロブスカイト型鉄酸化物の高圧下メスバウアー分光 川上 隆輝 (日大理工)
12:20 Pr247 酸化物の新しい超伝導と圧力効果 山田 裕 (新潟大理)
- 12:40~13:40 昼休み

圧力下物性研究 (座長:光田 暁弘)

- 13:40 UIr の圧力誘起超伝導 小林 達生 (岡山大理)
14:00 低温高圧 NQR で見た CeIn_3 の圧力誘起量子相転移と超伝導 川崎 慎司 (阪大基礎工)
14:20 CeCoIn_5 の高圧下での In-NQR 小堀 洋 (千葉大理)
14:40 圧力下極低温磁化測定 の現状 田山 孝 (東大物性研)
- 15:00~15:20 休憩

圧力下物性研究 (座長:清水 克哉)

- 15:20 $\text{Yb}_{1-x}\text{Y}_x\text{InCu}_4$ における圧力誘起の価数転移消失と強磁性転移 光田 暁弘 (富山大理)
15:40 YbInCu_4 の高圧下における価数揺動と磁気秩序の競合 水戸 毅 (神戸大理)
16:00 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ の量子相転移と非フェルミ液体 中村慎太郎 (東北大極低温セ)
16:20 TmTe の圧力下金属相における非弾性中性子散乱 松村 武 (東北大)
16:40 圧力誘起量子臨界点近傍における電気抵抗と熱膨張異常 大橋 政司 (九大院理)
17:00 ハイブリッド型ピストンシリンダー圧力容器の開発 辺土 正人 (東大物性研)
17:20 終了の挨拶 高橋 博樹 (日大文理)

物性研究所における低温圧力発生装置の現状

東京大学物性研究所 上床 美也

強相関係物質における圧力効果の研究は、多くの研究者が興味を持ち年々盛んになっていようと思われる。物性研究所においては、多くの共同利用研究者との共同研究および独自研究をピストンシリンダー式圧力装置、改良ブリッジマンアンビル装置、キュービックアンビル型圧力装置、ダイヤモンドアンビル装置等の装置をそれぞれの実験目的に合わせて使用している。主力は、図1に示すキュービックアンビル圧力発生装置である。実験に使用可能な試料空間は、 $\sim 2\text{mm}^3$ でありピストンシリンダーの $\sim 300\text{mm}^3$ に比べて100分の1以下である。そのため、試料セッティングには、特殊技術を必要とするが、何も知らない学生でも1週間程度でセッティング出来るように、様々な部品が規格化されている。このため、圧力の再現性は非常に良く、個人による発生圧力の差はほとんど無い。この装置を用いることにより、現在10GPaの圧力下、2K以上の温度変化および3.5Tまでの磁場中で物性実験が可能である。さらに低温や高磁場を必要な場合は、コンパクトなハイブリッド式ピストンシリンダーを用いて4GPa、タングステンアンビルを用いた改良ブリッジマンアンビル装置を用いて6GPaまでの圧力中において、希釈冷凍機温度、20Tまでの磁場中での物性測定が可能となっている。さらに、現在は、ダイヤモンドアンビル装置を用いて10GPaクラスの圧力下、希釈冷凍機温度および磁場20Tまでの環境下での物性測定を可能とすべく開発を行っている。図2にフロリダ強磁場研究者のS. Tozer氏と開発した、ダイヤモンドアンビル装置の外観図を示す。大きさは、6.6mm ϕ x 7mmと非常に小さく磁場中で、自由に回転させることが可能な大きさである。この装置を用いて、7GPa中での電気抵抗測定に成功している。今後は、それぞれの圧力装置の特性を生かして、より高圧、より低温での電気抵抗、磁化、熱膨張、ホール効果等の精密物性測定を目指して進めていきたい。

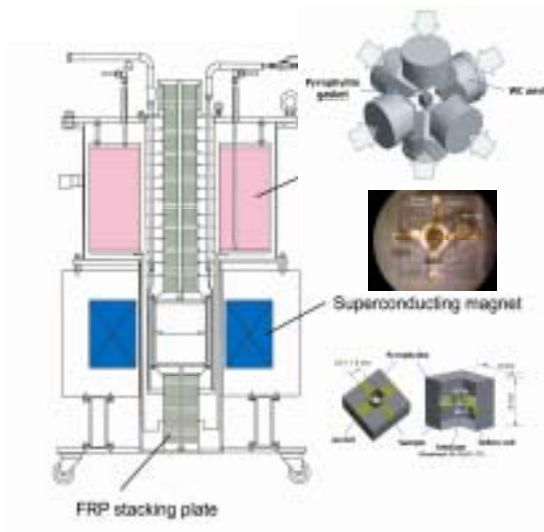


図1：キュービックアンビル装置

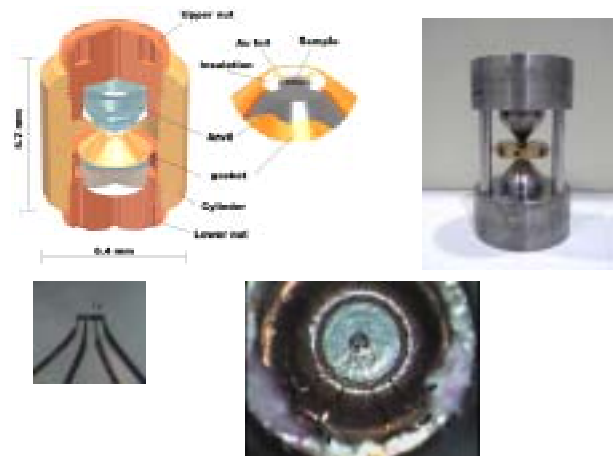


図2：ダイヤモンドアンビル装置

阪大極限科学研究センターにおける圧力装置の現状

極限科学研究センター 清水 克哉

1. はじめに

著者の研究グループが行っている、圧力下でのみ誘起される新現象、または相転移の発見と解明を目指した開発研究を紹介する。

近年、特に圧力下で常圧下での測定に匹敵する精度・信頼度での精密測定技術が求められている。具体的には、「磁性元

素や強相関電子系物質の超高压下超伝導」、および「分子性固体における圧力誘起分子性金属状態」を研究対象としている。

2. 静水圧の印加による精密化

従来のDACを用いた高压下の電気抵抗測定はダイヤモンドで直接挟んで加圧する方法であった。これによる電気抵抗測定の達成圧力は200 GPaを超えたが、試料中の大きな圧力分布および非静水圧性は免れなかった。静水圧性に敏感なデリケートな試料一方向的な圧縮を要求する試料を扱う場合には、大きな問題となった。目標を1 K 以下、10 GPa 以上の温度圧力領域、圧力媒体にはヘリウムを使う4 端子電気抵抗測定とした。現在までに、圧力下における重い電子系物質、およびスクッテルナイト化合物の超伝導検出に適用している。これまで、圧力媒体は食塩を主に用いたが、今後はより高い静水圧性を目指してヘリウムに移行して行く予定である。

3. 微細加工による精密化

半導体技術における微細加工技術はナノメートルの領域にまで到達し、その成果はすでに実生活に供される段階である。これらの微細加工技術の融合によって、高压下の精密固体物性研究を発展させることを目指した。ダイヤモンドアンビルの圧力発生面に、微細な電極を描画することを開発してきた。超高压域の研究には試料のサイズが微細化する事が避けられない。100GPa を超える超高压ではミクロンオーダーのサイズとなる。その極微試料を測定できるように電極もミクロンオーダーでの作成が不可欠となる。Fig.1に実際に作成した電極の写真を示す。

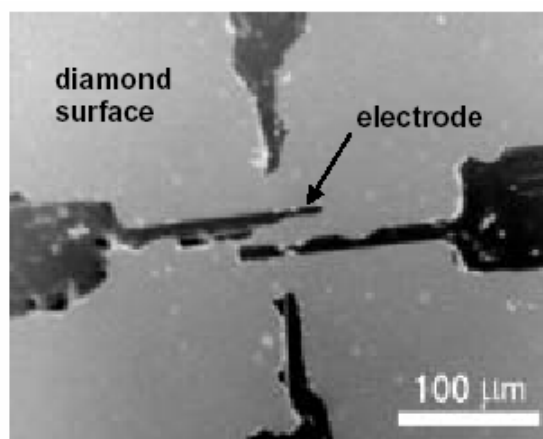


Fig.1. Photograph of 4-wire electrodes on diamond. The electrodes are made of platinum with a several-micron thickness evaporated by the arc deposition.

4. まとめ

従来の高压物理の学術的な興味は、より高い圧力の発生へ向かっていた感があるが、本研究センターの目指す常圧状態に匹敵する実験精度や信頼度は、多くの研究領域に「高圧力」環境を普及・進展させ、今後、当該分野の研究の発展に寄与すると考えている。

繊維補強型ピストンシリンダーセルの試作

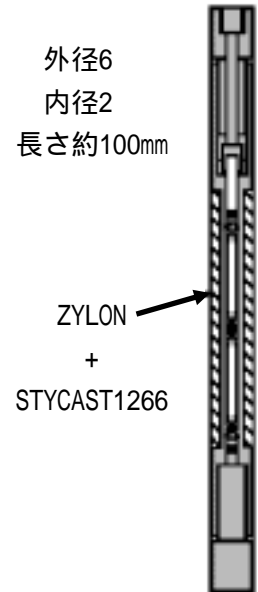
大阪大学極限科学研究センター 金道 浩一

パルス強磁場下で磁化測定を行うためのピストンシリンダーセルの改良を行っている。ピックアップコイル法による磁化測定における問題点は、主に以下の三点にまとめられる。

1. セルが誘起する電圧のキャンセレーション
2. パルス磁場によってセルに誘起される渦電流からのノイズ
3. 渦電流による発熱

1. についてはスクイドでも生じる問題であるが、図のような細長いセルを用い、検出用およびキャンセル用のコイルを上下に配置することでほぼ解決できる。2. と3. を解決するために今回、Be-Cu製の胴体を3mmφまで削り、代わりに高強度繊維ザイロンで補強したセルを試作した。まず、発生圧力は約1GPaであった。この限界は”押し棒”が変形するため、オールBe-Cu 製の場合でもこの辺りが限界でありかつセルに変形等は見られない。次に、2. については劇的

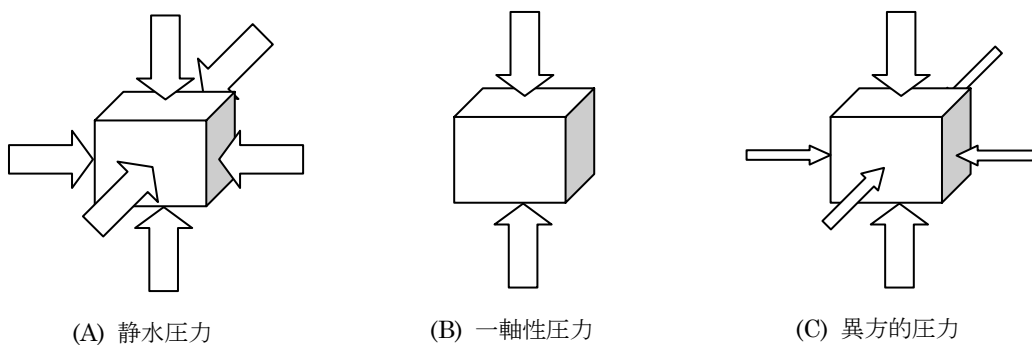
ではないが確実に良い方向に向かっている。これについてはさらにロングパルス磁場と組み合わせることにより大いに進展する可能性がある。3. については、あまり効果が現れなかった。この問題のチェックには、磁化プラトー物質として有名な NH_4CuCl_3 の磁化過程を用いている。このプラトートの明瞭さは温度変化が顕著であり、発熱の有無が確認できるためである。結果は、ザイロン使用前後で変化が見られなかった。Be-Cu 製のセルでパルス幅の違いによる変化を調べたところ、パルス幅 50ms 程度のロングパルスよりは7ms 程度のショートパルスのほうがむしろ明確なプラトーが現れており、これは発生した熱が有限時間内にサンプルを熱している事を示している。また、金属試料の測定時には、発熱の抑えられた磁化過程がしばしば観測されるが、これはセルの内壁に試料が電氣的に接触しないようういたテフロンチューブにより熱的な接触も避けることが出来たためであると考えられ、セルの外側の問題よりも内側の工夫で解決できる可能性が考えられるようになった。これについては今後の課題である。



異方的圧力発生への取り組み

埼玉大学 小坂 昌史

これまでの物性研究における高圧力発生技術は、いかにして良質な静水圧力を作り出すかに精力が注がれてきた。(A) 図のような等方的な圧力を目指してきたわけである。その理由は物質が異方的な圧力に往々にして敏感であり、圧力分布に勾配が生じると電気抵抗率などの圧力効果が正しく測定できないからである。それとは対照的な最近の新しい展開としては(B)図のような、一軸性圧力下で生じる興味深い現象が挙げられる。しかしながら、物質は一軸性圧力の印可により結局は破壊してしまうため、どんなに良い条件でも数百 MPa が一軸性圧力の限界であった。本研究の狙いは、数 GPa という超高圧力下での(C)図のような異方的圧力発生技術の確立することであり、つまりそれは(A)の環境の中で更に(B)の環境を作り出し、制御することにある。この技術は、磁気ゆらぎや超伝導ゆらぎが大きい量子臨界点近傍での異方的圧力(一軸性圧力) 効果を測定することができる画期的な技術と位置付けることができる。現在、異方的圧力発生手法の確立に取り組み始めており、現状について報告したい。



高圧下の μ SR

KEK 物構研中間子施設 髭本 亘

近年一部の専門家だけではなく一般の研究者の間でも広く高圧実験が行われるようになり、それに伴い見出された高圧下でおこる様々な現象が注目されるようになった。 μ SR はその特性から物性研究において重要な知見をもたらすため高圧下の実験は今後重要となることが予想される。現在高圧下での μ SR 実験は数グループで行われているが、まだ開発要素が多い。ここでは我々の高圧下 μ SR 実験の現状を報告する。

● 圧力セルの方式

現在 μ SR 実験で用いられている高圧セルはピストンシリンダー型セルである。この μ SR 実験にとってのピストンシリンダー型セルの利点は主として比較的広い試料空間を有することにある。例えば我々のセルでは最大圧力において ϕ 10x15 の円筒状の試料空間がある。このセルの場合 ϕ 8 x 10 の Ni 試料を用いたテスト実験で 2 以上の SN 比で測定可能である。壁の厚さとしては 100MeV/c のビームが透過できる厚さが BeCu の場合で約 12mm 程度となり、これと試料空間の大きさにより最大圧力が決まる。我々の試料空間が ϕ 10 のセルの場合には約 1GPa が圧力の上限となるためピストンシリンダー型セルでこれ以上の圧力を得る場合には SN 比及びデータの積算速度を犠牲にして試料空間を小さくすることが必要となる。

● 材 質

セルには高硬度の材質が必要であり、 μ SR の場合も通常高圧セルとして使用されている材質を使用することができる。ただし μ SR のデータにも試料の大きさ等に応じた割合でセル自身からのシグナルが混ざってくるため非磁性であることが必須となる。現在 μ SR 用セルとして主に使われているのは BeCu 合金である。 μ SR シグナルとしては Cu と同様な核双極子緩和が見られるだけで、大きな温度変化はない。また高硬度材料として市販されている MP35N でもやはり核双極子緩和しかみられないことから有効な材料であり、現在これを用いたセルも実用化している。その他高硬度のプラスチック系の材料と組み合わせることも可能であるが、冷却等の問題も含めて開発要素が残る。

● 圧力媒体

圧力媒体としてはフロリナート FC70/77 の混合液が多く用いられる。この中でミュオンはフッ素と結合状態 ($F\mu^+F$) を作ることににより独自のシグナルを作る。実際にフロリナートを圧力媒体として用いた場合の我々のデータの中にも僅かな回転成分が見られており、フロリナート由来のものと考えている。また Daphne7373 の場合は電子と結合した状態を作るためミュオンスピンの緩和が見られる。これらは弱磁場で緩和の様子が変わるため磁場依存性を精度良く測定する場合は他の媒体をもちいるか、圧力媒体を最低限の量にする必要がある。

● 実験例

現段階では圧力セル本体および圧力媒体からの緩和があるために相転移に伴い μ SR 信号に大きな変化が見られる試料が望まれる。このため実際の測定としては磁気的な相転移が起こり、かつその相転移に大きな圧力効果が見られる CeRh₂Si₂[1]および TlCuCl₃ のゼロ磁場中の μ SR 実験及びナイトシフト測定を行っている。

● 今後の課題

今後の課題としては言うまでもなくより高圧を目指すこと及び SN 比の高いデータを得ることである。これらは相反する課題であり、セルの方式も含めた検討が必要となる。パルスビームでの実験ではミュオン以外の陽電子等のノイズも問題となり、これを防ぐにはミュオンビームの運動量を落とすことが有効である。これに適したセルも必要となる。また一軸性圧力なども開発要素が多く、課題となる。

[1] W. Higemoto et al. Physica B329-333(2003)601

改良型ブリッジマン装置

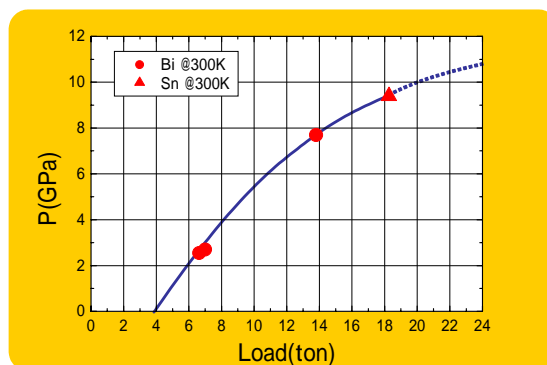
産総研強相関電子技術研究センター 竹下 直、寺倉千恵子、高木 英典、十倉 好紀

高圧力下の物性実験はかなり一般化したとはいえ、ピストンシリンダー型高圧装置で発生可能な圧力領域を越える実験は、相変わらずなかなか手を出しにくいといえる。反対に、どの分野の研究者にとっても手つかずの研究領域とも言え、魅力あるものである。このような高圧領域での実験は、現在でも様々な手法を駆使して行われている。しかしながら、一般の研究者が手軽に扱えるような装置とは言えないのが現状である。我々は、ローコストで比較的手軽に扱え、様々な実験目的に適応させることの出来る高圧実験装置として、改良型ブリッジマン装置の開発を進めているので紹介したい。

この装置は中西、毛利ら¹⁾によって物性研にて開発されたものである。我々はこの装置に構造の改良や寸法の最適化を施し、大幅な性能向上を達成した。ユーザーにとっての使い勝手を良くするためには様々な要件が考えられるが、幾つかあげてみると、1.大きな試料空間があること 2.圧力の再現性が良いこと 3.静水圧性が良いこと 4.コストが安いこと、などが挙げられる。これらを満たした上で、10GPa級の圧力装置を完成させることが目標である。そして、我々の装置はかなりの点でこれらを達成することが出来ている。

テフロンカプセル中の圧力発生空間は液体圧力媒体 (Fluorinert) で満たされており、直径および高さが約 1mm の円筒状をしている。私見だが、この試料空間のサイズはサンプリングに職人技を必要としないぎりぎりのサイズだと思っている。この中に電極を 4 本ほど導入することが出来、4 端子電気抵抗測定や誘電率などの測定が容易にできる。小さなコイルを導入して、ラフな交流帯磁率測定などの実験も可能である。圧力の再現性確保は、ガスケットなどの部品をすべて機械による自動加工によって製作することで実現した。すべての部品は素材に銅ベリリウム合金および WC、ステンレスなどを使い製作は容易で、セル単体での値段は 50 万円ほどである。あとは 20 トン程度出力できるプレスがあれば、基本的に使用が可能である。

図は Bi と Sn を用いて行った室温下における圧力較正の結果である。10GPa 近い圧力の発生が可能であることが分かる。ほぼ各部の寸法や形状の吟味は終えることが出来たので、あとは低温下の圧力較正を行うことで、装置としてはほぼ開発段階を終える。将来は是非、様々な研究者の方々に使ってもらい、ご評価頂きたいと思う。



¹⁾ Nakanishi T, Takeshita N and Mōri N, Rev. Sci. Instrum., **73** (2002) 1828.

超高压高温実験技術の現状と展望

東京大学物性研究所 八木 健彦

はじめに

近年、超高压下の物性実験が比較的容易に行えるようになり、圧力をパラメータとした研究が広く普及してきた。以前から、高温高压状態を実験室内で作り出し、地球深部物質の構造や物性を研究する”高压地球科学”の分野では、より高い圧力、温度の発生が新しい研究に直結するため、多くの研究者が実験技術の開発に多大な努力を注いできた。それらから発展した実験技術が、低温高压実験や高温高压物質合成など他分野でも広く使われるようになった例は数多い。そこで本講演では、物性研新物質部門の八木研究室で行っている超高压高温実験の現状を紹介しながら、これからの高压実験技術を展望してみたい。

マルチアンビル装置

タングステンカーバイト (WC) 製の 6 個のアンビルを、1 軸押し油圧プレスで駆動して高圧を発生させるキュービックアンビル装置は、試料室が大きくとれ、10GPa 程度までの高圧発生が可能のため、広い分野で使われている。この装置に 8 個の立方体アンビルを入れて 2 段式にし、正 8 面体の圧力媒体を加圧する「Kawai 型装置」は、WC アンビルを使った場合約 26GPa、焼結ダイヤモンドアンビルを使った場合 40GPa 以上と、圧力領域を大幅に拡大できるため、高圧地球科学の分野では広く使われるようになっている。試料室の構成や実験技術が複雑なため、まだ他分野でこの装置を使った実験は行われていないが、モデリングマシン等を使って容易に必要な部品を製作する技術等も確立されてきており、10GPa 以上の圧力領域での新たな高圧研究に有望な装置と言えよう。

対向アンビル装置

マルチアンビル装置で焼結ダイヤモンドをアンビルとして用いる場合、8 個のアンビルを 1 セットとして用いるためコストが問題となる。一方対向アンビル装置では、2 個のアンビルで加圧するため、ずっとコストが抑えられるほか、プレスも小型で済む。欠点としては試料室が小さくなることであるが、ダイヤモンドアンビルに比べればまだ数桁体積が大きい。これらの特徴を生かして、さまざまな研究目的に応じた新しい装置の開発が考えられる。

ダイヤモンドアンビル装置

手軽さと、光学測定が可能でかつ 100GPa を越す超高压まで発生できるという特徴から、物性研究でも広く普及してきた超高压装置であるが、まだ工夫によってさまざまな発展が期待できる。地球科学分野では、レーザーや外熱ヒーターを用いた高温実験と組み合わせ超高压高温領域での相転移の研究に広く使われているが、アルゴンや窒素など常圧下で気体の物質も試料室に封入できることを生かして、超臨界流体の反応性を利用した超高压下の新しい物質合成も試みられている。試料室の体積はきわめて限られているが、最近シンクロトロン放射光や電子顕微鏡などさまざまな技術と組み合わせることにより、極微小試料から豊富な情報を引き出すことが可能になっており、今後の一層の発展が期待できる。

微細加工技術

いずれの高圧装置でも、より高い圧力の発生やより精密で安定した実験のためには、実験に用いられる部品や試料をより正確に加工することが必要となる。従来はせいぜい実体顕微鏡下で手先の器用さを生かして実験を行ってきたが、パルス YAG レーザーやエキシマレーザーを用いた微細加工機をうまく使いこなすことにより、飛躍的な実験技術の向上が可能となる。今後は高圧装置そのものだけでなく、ナノテクノロジーなど他分野で使われている技術もうまく取り込むことにより、超高压下でのさまざまな研究を一層発展させることが可能となろう。

「DAC による精密測定技術」

大阪大学極限センター 清水 克哉

物性研究において高圧力がもたらす効果のうち、特に圧力誘起絶縁体－金属転移や圧力誘起超伝導体の発見など圧力が誘起する量子相転移は近年の物性研究の中心的課題のひとつである。「圧力」のパラメータの重要性が再確認される一方で、常圧下での測定に匹敵する精度・信頼度での精密な研究が急務である。

われわれはこの現状を踏まえ、従来ピストンシリンダーなどによって行われてきたいわば 2GPa 級の実験を、ダイヤモンドアンビルセル (以下 DAC) を用いた 10GPa 超級まで拡張し、電気・磁気測定・比熱・熱膨張・X 線構造解析などの各種精密物性測定を行うことを目指している。

我々の研究対象は大きく以下の 2 つに大別できる。

(1) 超高压研究：分子性固体における圧力誘起分子性金属状態

超高压科学の究極の目標である金属水素は高压下で分子性の崩壊前の分子状態で金属化するとの予想がある。これまでにヨウ素 (I₂)、酸素 (O₂) の圧力誘起金属化・超伝導を発見してきたが、大きな圧力分布や非静水圧力印加のため詳細な実験はなされていない。分子性固体の圧力誘起分子解離、金属化、さらに超伝導性について精密な物性測定によりその

機構を解明する。

(2) 静水圧下研究：磁性元素や強相関電子系物質の超高压下超伝導

純鉄の超伝導が高压下で発見されてが、非磁性化した状態での超伝導発現と考えられる一方、強相関電子系化合物群に見られるような、磁気秩序が圧力などで抑制された状態で発現する磁気揺らぎ等を媒介とした超伝導発現機構の可能性もある。これまで実験的制約で電気抵抗以外の測定が及ばなかった圧力領域において精密な物性測定を総合的に行い、純鉄や Ce 系化合物を中心に強相関電子系物質群の超伝導発現機構の解明に迫る。

超高压発生と電気抵抗測定技術を基盤に、現在の高压力下測定技術と、微細加工技術の融合によって、高压下の精密固体物性研究を進展させることを目指している。従来の高压物理の学術的な興味は、より高い圧力の発生へ向かっていた感があるが、超高压下での精密研究のニーズは高まるばかりである。一方では半導体技術における微細加工技術はナノメートルの領域にまで到達し、その成果はすでに実生活に供される段階である。超高压発生の技術に半導体工学の微細加工技術を積極的に応用することで、高压故の試料の大きさを克服する事ができると考えている。

重い電子系 YbAgGe の逐次磁気転移の圧力効果

広大院先端物質、防衛大応物^A、東北大極低温セ^B

梅尾 和則、山根響太郎、室 裕司、加藤 健一^A、新出 譲^A、落合 明^B、高島 敏郎

Pressure Effect on the Successive Magnetic Transitions In Heavy-Fermion System YbAgGe

ADSM, Hiroshima Univ., Dep. Applied Phys., National Defense Academy^A, Center for Low Temp.

Sci., Tohoku Univ.^B, K. Umeo, K. Yamane, Y. Muro, K. Katoh^A, Y. Niide^A, A. Ochiai^B, T. Takabatake

YbAgGe は六方晶 ZrNiAl 型構造をもち、c 面内で擬カゴメ格子をなす Yb イオンによる特異な磁性の出現が期待された。そこで、単結晶試料を用いて 0.3K までの電気抵抗、比熱、磁化および圧力下での電気抵抗を測定した。

図 1 に圧力下の a 軸方向の抵抗を示す。常圧下の抵抗は $T_{M1}=0.8K$ 以下で減少し、 $T_{M2}=0.6K$ ではヒステリシスを伴って上昇する^[1]。比熱から見積もった T_{M1} でのエントロピー変化は $R \ln 2$ の 10% 程度しかない^[1]。このことは近藤効果に加えて擬カゴメ格子特有の磁氣的フラストレーション効果を示唆する。

0.5GPa まで加圧しても、 T_{M1} はほとんど圧力変化しない。一方、 T_{M2} のヒステリシスは小さくなりながら高温側にシフトし、 T_{M1} の異常と合体し、0.71GPa 以上では抵抗の急峻な減少に変わる。さらに 1.3GPa 以上では、転移温度での抵抗変化はブロードになりながら、高温側にシフトする。図 2 に磁気転移温度と 0.5K での抵抗 $\rho(0.5K)$ の圧力変化を示す。1.5 GPa 付近までは $\rho(0.5K)$ は圧力とともに増大しており、スピン揺らぎが加圧によって発達することを示す。一方、1.5GPa 以上で $\rho(0.5K)$ が急減することは大きな磁気モーメントをもつ磁気構造に変化することを示唆する。

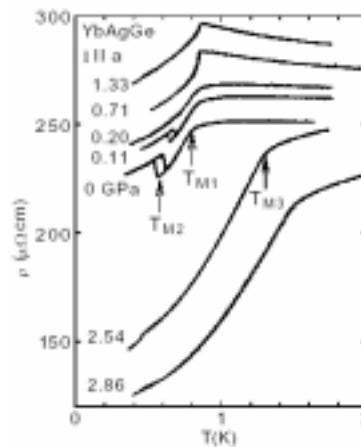


図 1 a 軸方向の圧力下電気抵抗

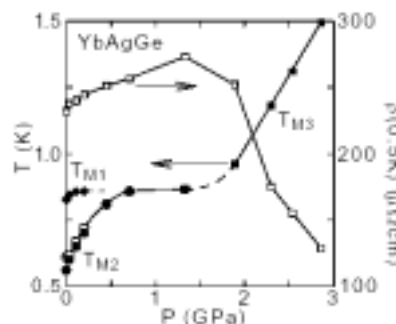


図 2 温度-圧力相図

[1] K. Umeo, et al. J. Phys. Soc. Jpn. **73**(3) (2004) in press.

BiNiO₃における圧力誘起金属絶縁体転移

京大化研^A、PRESTO^B

石渡晋太郎^A、東 正樹^{A,B}、高野 幹夫^A

高圧下で合成されるペロブスカイト型酸化物 BiNiO₃ は、三斜晶に歪んでおり絶縁体的振る舞いを示す。この物質は、放射光を用いた構造解析から、Bi は 3 価と 5 価に不均化し、Ni は 2 価になっていることが示唆されている。Bi の一部を La で置換すると、斜方晶になると同時に金属化するが、置換量が少ないと低温で絶縁体化する。金属相の Ni-O 間の結合長は、絶縁相のそれと比較すると著しく短いことから、この相転移は A サイトと B サイト間の電荷移動によるものであると推察される。つまり Bi から Ni へホールが移動することで金属化すると考えられる。La 置換系において、このようなメカニズムで Bi の不均化が解消されて金属化するのであれば、圧力によっても BiNiO₃ が同様な相転移を示すことが期待される。本研究では、キュービックアンビル型高圧発生装置を用いて、BiNiO₃ の常温高圧下での電気伝導性、及び結晶構造の変化を調べた。

2 端子法により測定した電気抵抗率は 3GPa 付近で 3 桁以上低下しており、高圧下で金属化していると考えられる。SPring8 の BL14B1 で行った高圧下 X 線回折実験によると、電気伝導性の変化に対応して 3GPa 近傍で常圧相よりも対称性の高いペロブスカイト構造へ変化することが示唆された。La 置換系との類推から、高温相は GdFeO₃ 型構造であると考えられるが、残念ながら装置の分解能等の問題で、高圧相の正確な構造を知ることはできなかった。しかしながら、メインピークの位置を圧力に対してプロットすると、やはり 3GPa を境にして高圧相と低圧相が存在していることが示唆された。BiNiO₃ は圧力によっても、La 置換系と同様に Bi イオンの不均化抑制と A サイトと B サイト間の電荷移動が誘起され、金属化すると考えられる。

正方晶 CeB₂C₂ の反強磁性秩序相における圧力効果

東大物性研、東北大理^A、東北大金研^B

鬼丸 孝博、榊原 俊郎、辺土 正人、上床 美也、小野寺秀也^A、山口泰 男^B

希土類正方晶化合物 RB₂C₂ は正方晶 LaB₂C₂ 型結晶構造 (空間群 *P4/mbm*) をもち、DyB₂C₂¹⁾ や HoB₂C₂²⁾ における反強四重極秩序転移など、非常に興味深い現象を引き起こす物質群である。このなかで、われわれは CeB₂C₂ に着目し、これまで研究を行ってきた。³⁾CeB₂C₂ は $T_N=7.3\text{K}$ の反強磁性体で、比熱のシャープな異常や磁化に跳びがみられることから、 T_N 一次転移であると考えられる。低温 ($T<2\text{K}$) での磁化の磁場変化においても大きなヒステリシスが観測されており、一次転移の直接的な証拠を示している。最近、CeB₂C₂ の Ce を Lu で希釈した系での研究が行われており、Lu 希釈 31% でスピングラス転移を示すことが分かっている。⁴⁾ また、単結晶を用いた中性子回折からは、 $\mathbf{k}=[\delta, \delta, \delta']$ ($\delta=0.161(2)$, $\delta'=0.100(2)$) で磁気反射が観測されており、磁気構造は長周期構造である。⁵⁾ これらのことから、CeB₂C₂ はいくつかの相互作用が競合している系であると考えられる。そこで、反強磁性秩序相における、圧力による磁氣的性質の変化について調べた。

今回クランプ式圧力セル (CuTi 製、CuBe 製) を用いて静水圧下での磁化測定を行い、反強磁性秩序相における大きな圧力効果を観測したので報告する。Fig.1 に $H \parallel [110]$, $T=4.2\text{K}$ における圧力下での磁化の磁場変化を示す。 $P=0$ では $H=0.78\text{T}$ 付近でメタ磁性転移を起こすが、加圧により転移磁場が急激に抑えられ、同時にヒステリシスは大きくなる。実際、 $P=1.98\text{GPa}$ における転移磁場は $H=0.09\text{T}$ で、 $P=0$ のときの約 12% にまで抑えられ、大きな圧力効果を示す。続いて、Fig.2 に圧力下での磁化率の温度変化 ($H \parallel [110]$, $H=0.05\text{T}$) を示す。 T_N は加圧とともに一度小さくなった後、 $P=1\text{GPa}$ 付近から次第に大きくなる。一方、磁化率は加圧とともに大きくなり $P=1.35\text{GPa}$ で $P=0$ のときの約 5 倍、 $P=1.98\text{GPa}$ で約 10 倍にまで増大し、やはり大きな圧力効果を示す。また、転移点直上では磁化率が発散へと近づく傾向がみられる。これは、加圧による反強磁性から強磁性への転移を示唆している。さらに、低温での磁化率が $P=0.8\text{GPa}$ くらいを境にして大きな跳びをみせることから、基底状態での磁気構造が圧力を変数とする一次転移を起こしていると考えられる。

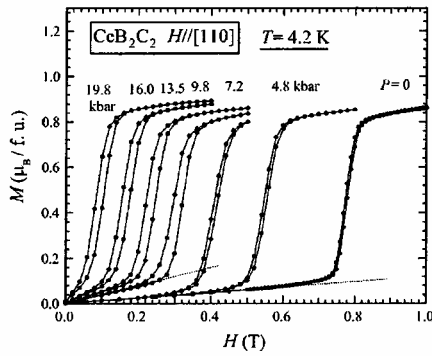


Fig. 1: CeB₂C₂ の H//[110], T=4.2 K における圧力下での磁化の磁場変化。

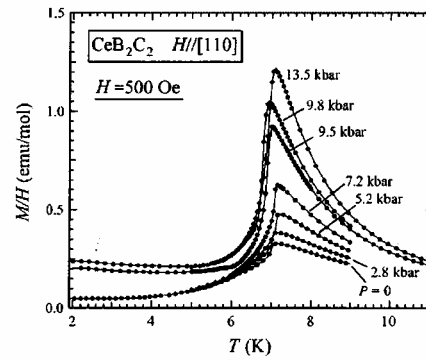


Fig. 2: CeB₂C₂ の H//[110] における圧力下での磁化率の温度変化。

(Ref.)

- 1) H. Yamauchi *et al.*: J.Phys. Sos. Jpn **68** (1999) 2057.
- 2) H. Onodera *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn **68** (1999) 2526.
- 3) H. Onodera *et al.*: J. Mag. Mag. Mat. **221** (2000) 293.
- 4) A. Tobo *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn **72** (2003) 3231.
- 5) K. Ohyama *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn **72** (2003) 3303.

TlCuCl₃ 及び KCuCl₃ の圧力誘起量子相転移

東工大理、^A東大物性研

後藤 健治、田中 秀数、藤澤 真士、小野 俊雄、上床 美也^A

Magnetic Properties under High Pressure in the Quantum Spin System TlCuCl₃ and KCuCl₃

K.Goto, H.Tanaka, M.Fujisawa, T.Ono, Y.Uwatoko^A

Tokyo Institute of Technology, AISSP. University of Tokyo

TlCuCl₃ と KCuCl₃ は同じ結晶構造の単斜晶で、磁性イオン Cu²⁺ を含むダイマー-Cu₂Cl₆ を持っており、それが **a** 軸方向に積層して二重鎖を形成している。基底状態はスピンシングレットでトリプレットとの間にギャップ Δがある^[1]。このギャップは Cu₂Cl₆ 内の強い反強磁性相互作用に起因するが、二重鎖と(10 $\bar{2}$)面に沿ってダイマー間相互作用があるためにギャップは **J** より小さくなる。このスピンギャップ系に磁場をかければ、 $H = H_g = \Delta/g\mu_B$ でギャップは消える。温度-磁場相図では、 $H = H_g$ で与えられる点が量子臨界点であり、 $H > H_g$ では低温で磁気秩序がおこる^[2]。

これらの物質に圧力をかけて、スピンギャップがどう変化するかを調べた。実験は SQUID 磁束計用の高圧セル^[3] を用いて行った。図 1 は KCuCl₃ に $P < 1$ GPa の圧力をかけての磁化過程である。圧力を上げていくと、ギャップ磁場 H_g が減少していく。さらに、 $P > 0.69$ GPa ではスピンフロップ転移が見えているので、ギャップが閉じて反強磁性秩序が生じていたことが分かる。これは圧力誘起磁気量子相転移である。また、ダイマー内の交換相互作用、ダイマー間の相互作用の和、**g** 値が圧力をかけていく過程でどのように変化していくのかについても議論する。

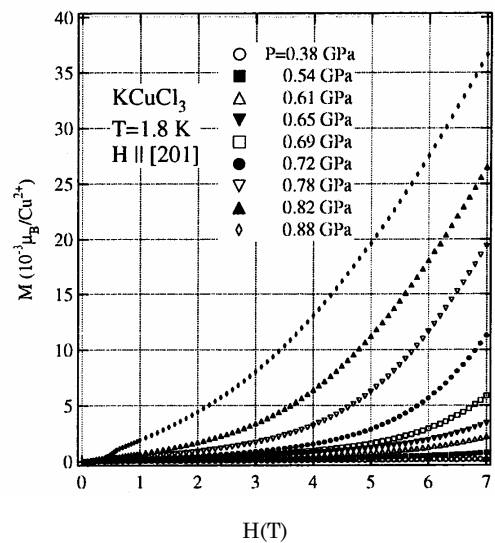


図 1 KCuCl₃ の加圧前後の磁化率の温度変化

- 1 A. Oosawa *et al.*, J. Phys. : Condens. Matter. **11** (1999) 265.
- 2 H. Tanaka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **70** (2001) 939.
- 3 Y.Uwatoko *et al.*, Rev. High Pressure Sci. Technol. **7** (1998) 1508.

散乱でみる CuGeO_3 と NaV_2O_5 のスピンドイナミクスの圧力効果

上智大理工 関根 智幸、田野倉淑子、池田 俊介、黒江 晴彦

CuGeO_3 と NaV_2O_5 のスピンドイナミクスを低温高圧下のラマン散乱で研究した。

CuGeO_3 は不純物ドーブによりスピンパイエルス (SP) 転移が抑制され、Mg の場合、常圧下では 2.3% 以上で SP 転移を起こさない。我々は 3.5% Mg ドーブした試料について研究した。0.21 GPa 以上で折り返しフォノン、SP ギャップ、磁気励起束縛状態の SP 状態に特有のピークを観測でき、SP 状態が復活することをわかった。図 1 は低周数領域のラマンスペクトルである。高圧下で約 $2\hbar\Delta_0$ エネルギーをもつ磁気励起束縛状態 (∇) と SP ギャップモード (\downarrow) が観測できる。ギャップエネルギー $\hbar\Delta_0$ は、純粋な試料および低濃度置換試料においては常圧下で SP 転移温度 (T_{SP}) に対して $\hbar\Delta_0/k_{\text{B}}T_{\text{SP}}=1.61$ の線に乗るが^[1]、Mg 3.5% の試料では非常に大きい値をとる。また、格子の歪みの秩序パラメータに比例する 369 cm^{-1} の折り返しフォノンの強度は、純粋な試料の 0.1~0.2 倍と非常に小さい。

スピンギャップが大きく、格子歪みの小さい復活した異常な SP 状態は、最近接 (J_{nn}) および第 2 近接 (J_{nnn}) 交換相互作用の比 $\alpha = J_{\text{nnn}}/J_{\text{nn}}$ が大きく、既に自発スピンギャップがあることで理解できる^[2]。

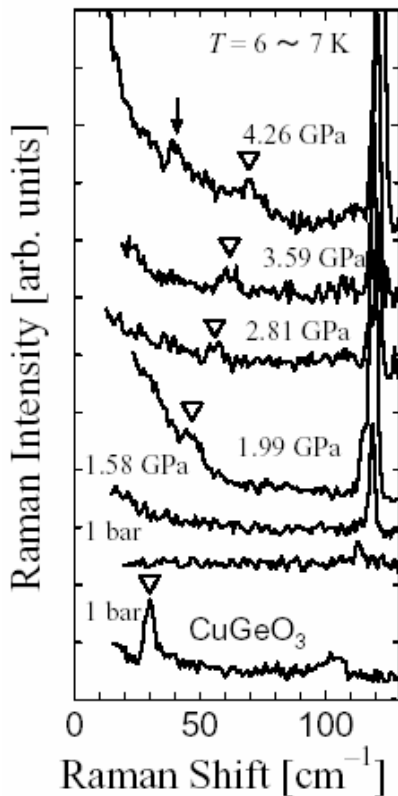


図 1 : CuGeO_3 のラマンスペクトル

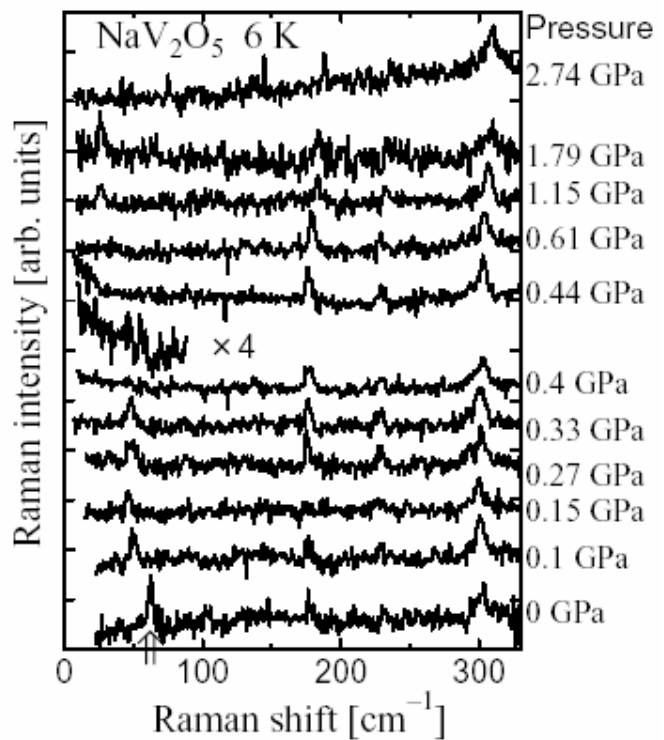


図 2 : NaV_2O_5 のラマンスペクトル

NaV₂O₅は常圧下で $T_C \sim 35\text{K}$ 以下において V^{4+} と V^{5+} が電荷整列を起こし、スピングャップを持ったスピン-重項基底状態になる。最近、低温高压下の X 線実験より c 軸方向の 4 倍の超周期構造から、複雑な変調構造「悪魔の華」をとることがわかってきた^[3]。我々は、低温高压下のラマン散乱よりこの磁気励起を調べた。図 2 に 6K での結果を示す。圧力を増加すると、磁気励起 (\uparrow) のエネルギーは小さくなり、0.61GPa 以上で消滅する。しかし 4 倍の超周期構造から 1 倍の周期になる相転移圧力、約 1GPa 以上になるとまた現われ、2.74GPa で再度消滅することがわかった。

- [1] T. Sekine *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **67**, 1440 (1998).
 [2] Y. Tanokura *et al.* Phys. Rev. B **68**, 054412 (2003).
 [3] K. Ohwada *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 086402 (2001).

擬一次元導体における超伝導と摂動論

京大理 佐々木創太郎、池田 浩章、山田耕 作

最近、 $\beta\text{-Na}_{0.33}\text{V}_2\text{O}_5$ において加圧下での超伝導転移が発見された。この物質は、常圧では高温で擬一次元的な電気伝導を示し、温度を下げていくと $T_{CO} \approx 135\text{K}$ で常磁性絶縁体電荷秩序相に転移する。またさらに温度を下げていくと $T_N \approx 25\text{K}$ で反強磁性絶縁体電荷秩序相に転移する。次に加圧していくとおよそ 8GPa で電荷秩序相に隣接して超伝導相が現れ、さらに加圧すると超伝導相は消失し金属になる。

この物質を念頭に置き、図 1 (b) のような擬一次元的な Fermi 面を持つ斥力 Hubbard model において転移温度と超伝導対称性を調べた結果について発表する。具体的には最もエネルギーの低い band のみを用い、on-site 斥力 U についての 3 次摂動によって Eliashberg 方程式

$$\lambda_{\max} \Delta(k) = -\frac{T}{N} \sum_{k'} |G(k')|^2 \Delta(k') V(k; k'), \quad (1)$$

を解くことで転移温度と超伝導対称性を調べた。その結果、filling が half-filled からずれると超伝導転移が期待されることがわかった。このとき一次元性が強く、filling が half-filled から離れるにしたがって spin-triplet state が spin-singlet state より安定になることがわかった。

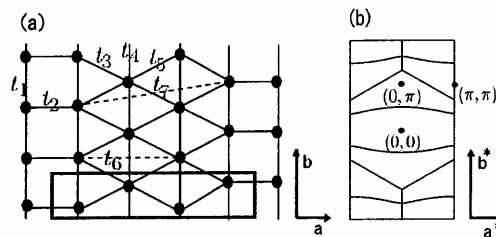


図 1 : (a)計算に用いた結晶格子(b)Fermi 面の一例

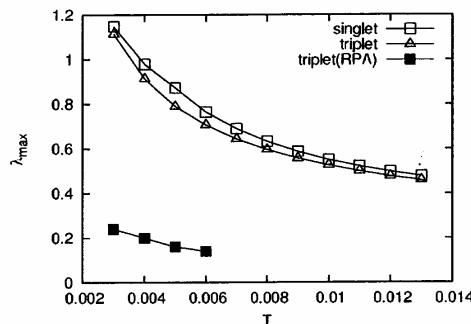


図 2 : 固有無の温度依存性の一例

鉄基ホイスラー型合金の圧力依存性

○ 福田 一紀 (島根大総理工)、野口 和浩 (新潟大自然科学研究科)、
山田 裕 (新潟大理)、松下 明行、名嘉 節 (NIMS)

Pressure effects in the Fe-based Heusler alloys

Kazunori Fukuda (Shimane University), Kazuhiro Noguchi,
Yuh Yamada (Niigata University), Akiyuki Matsushita and Takeshi Naka (NIMS)

近年、 Fe_2VAl をはじめとする鉄基ホイスラー型合金において、比抵抗の温度依存性が半導体的になること、低温で巨大磁気抵抗効果、大きなゼーバック係数が報告され注目を集めている。

そこで、我々は、 Fe_2VAl のVとAlをさまざまな元素に置換した Fe_2XM ($\text{X}=\text{V}, \text{Ti}$) ($\text{M}=\text{Al}, \text{Ga}, \text{Si}$)の圧力下での物性を調べることを目的とした。また、 Fe_2VGa と Fe_2VAl は単結晶を作製しその物性も調べた。

試料の作製方法としては $\text{Fe}, \text{V}, \text{Ti}, \text{Al}, \text{Ga}, \text{Si}$ の単体金属を各成分組成で秤量した後、アーク炉を用いてアルゴン雰囲気中で融解した。その後、 Fe_2VAl および Fe_2TiSn は真空中 880°C で50時間熱処理した後徐冷し、 Fe_2VSi は真空中 800°C で5日間熱処理した後徐冷し、 Fe_2VGa は真空中 800°C で3日間熱処理した後、徐冷した。また単結晶試料はテトラアーク炉を用いてチョコラルスキー法により作製した。

測定方法としては、電気抵抗の圧力依存性には、Ni-Cr-Al製クランプ式ピストン・シリンダー型圧力セルを用い、直流四端子法により3GPaまで測定した。

図1に多結晶 Fe_2VGa の圧力下での電気抵抗の温度依存性を示す。常圧では約50K付近で極大をとるような挙動を示した。これは全温度領域で半導体的であった Fe_2VAl とは違った振る舞いである。これは、この温度付近での磁気状態の変化に起因していると考えられる。また Fe_2VGa は圧力をかけていくと電気抵抗はすべての温度領域で上昇する傾向がみられた。 Fe_2VAl では170K付近を境に圧力効果が大きく異なっていたことから Fe_2VGa と Fe_2VAl は同様な擬ギャップ構造を有するもののそのギャップ構造及びフェルミレベルの位置が違うと考えられる。

図2に Fe_2VSi の圧力下での比抵抗の温度依存性を示す。圧力の増加に伴い構造相転位に伴う電気抵抗のアノマリーは低温側にシフトしていることがわかる。また加圧とともに電気抵抗の転移に伴う変化が小さくなっていることがわかる。

当日は、 Fe_2XM ($\text{X}=\text{V}, \text{Ti}$) ($\text{M}=\text{Al}, \text{Ga}, \text{Si}$)の圧力下での磁性および電気抵抗の温度依存性、熱膨張の測定の結果および $\text{Fe}_2\text{VGa}, \text{Fe}_2\text{VAl}$ の単結晶の物性を調べその電子構造について検討し報告する。

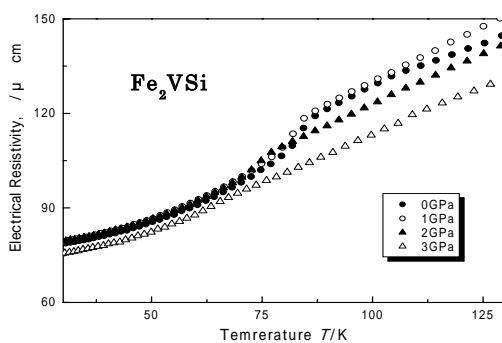


図1 Fe_2VGa 圧力下での電気抵抗の温度依存性

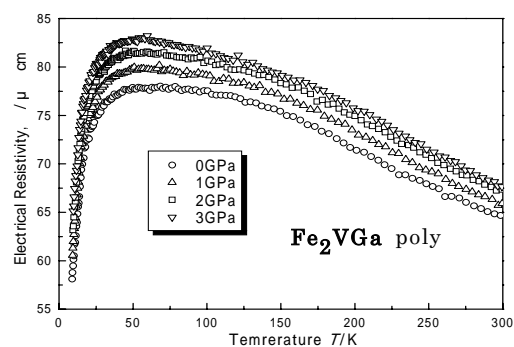


図2 Fe_2VSi の圧力下での電気抵抗の温度依存性

量子スピン系 NH_4CuCl_3 の圧力効果

東工大院理工、東工大極低温セ A

藤澤 真士、田中 秀数 A

量子スピン系物質 NH_4CuCl_3 の空間群は $P2_1/c$ である。磁性イオン $\text{Cu}^{2+}(S=1/2)$ を含む化学的ダイマー Cu_2Cl_6 が a 軸方向に積層し二重鎖を形成し、 bc 面内でみると単位胞の中央と角にその二重鎖が配置されており、その間に NH_4^+ イオンが挟まった構造をしている。 NH_4CuCl_3 のゼロ磁場の基底状態は磁氣的 (ギャップレス) であり、磁場を a 軸方向にかけたときの強磁場磁化過程から $H_{c1}(5.0\text{T}) < H < H_{c2}(12.8\text{T})$ および $H_{c3}(17.9\text{T}) < H < H_{c4}(24.7\text{T})$ の範囲でそれぞれ飽和磁化の 1/4、3/4 の磁化プラトーを持つ^[1]。この物質はスピンギャップを持たないが、磁化プラトーは一種の磁場中ギャップ状態とみなすことができるので、磁化プラトー状態の始まり (H_{c1} , H_{c3}) と終わり (H_{c2} , H_{c4}) の近傍をマグノン (またはマグノンのホール) のボース・アインシュタイン凝縮で記述が可能である^[2-3]。

今回は NH_4CuCl_3 の圧力下磁化測定を詳細に行ったのでその結果を報告する。測定には SQUID 磁束計用の圧力セル^[4]を用いて計測した。結果は図 1 である。印加磁場は a 軸と平行に $H=0.1\text{T}$ 、印加圧力は (a) $P=0.02\sim 1.94\text{kbar}$ (b) $2.18\sim 4.20\text{kbar}$ (c) $4.34\sim 6.02\text{kbar}$ である。圧力を 1.94kbar まであげていくと、 $T=5\text{K}$ 以下の磁化率は徐々に増大していく。これらの基底状態はギャップレスである。さらに 4.20kbar まで圧力を上げていくと磁化率は減少する。特に 4.20kbar では温度が下降するとともに磁化率は急激に減少しており、スピンギャップを持った系へ転移したことを示唆する結果となっている。さらに 6.02kbar まで加圧していくと、再び磁化率は増大する。 6.02kbar の磁化率の変化をみると、 4.3K において磁気秩序を示す折れ曲がり観測された。これらの結果は加圧により、基底状態がギャップレスからギャップ状態、そしてさらにギャップレス状態へと変化していることを示している。

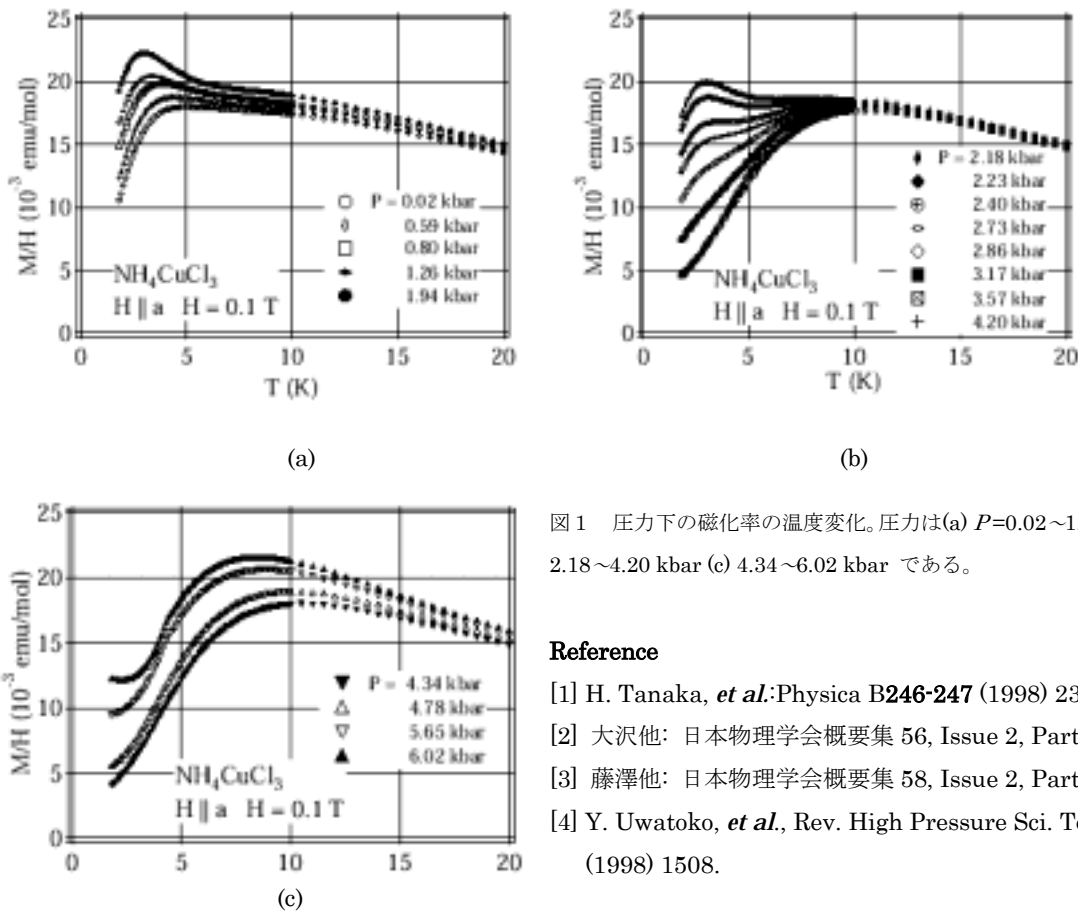


図1 圧力下の磁化率の温度変化。圧力は(a) $P=0.02\sim 1.94\text{kbar}$, (b) for $2.18\sim 4.20\text{kbar}$ (c) $4.34\sim 6.02\text{kbar}$ である。

Reference

- [1] H. Tanaka, *et al.*: Physica B **246-247** (1998) 230.
- [2] 大沢他: 日本物理学会概要集 56, Issue 2, Part3 (2001) 352
- [3] 藤澤他: 日本物理学会概要集 58, Issue 2, Part3 (2003) 422.
- [4] Y. Uwatoko, *et al.*, Rev. High Pressure Sci. Technol. **7** (1998) 1508.

(Ba,K)BiO₃における圧力誘起超伝導の探索

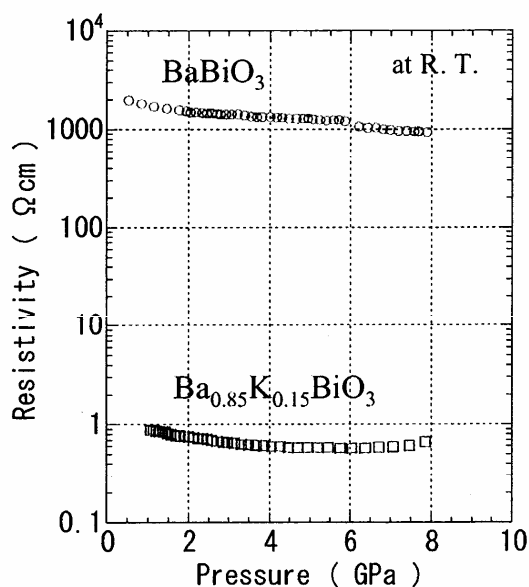
東北大工、東大物性研^A、埼玉大理^B

加藤 雅恒、今井 良宗、野地 尚、小池 洋二、辺土 正人^A、上床 美也^A、毛利 信男^B

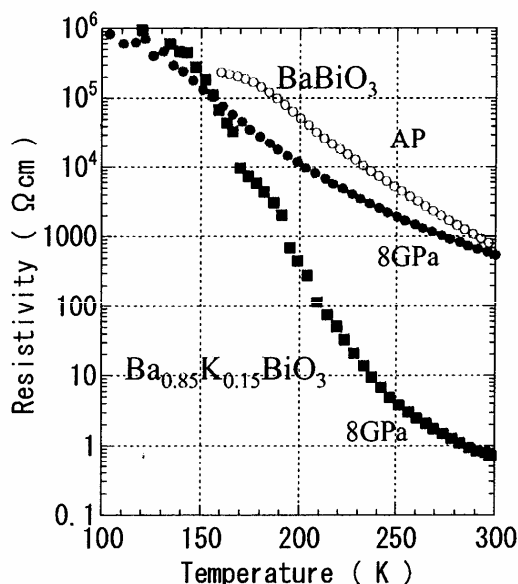
ペロブスカイト構造を持つ BaBiO₃ は、Bi³⁺ と Bi⁵⁺ という混合原子価状態を有する CDW 絶縁体である。Ba²⁺ の一部を K⁺ で置換し、ホールをドーブした Ba_{1-x}K_xBiO₃ は、x の増加と共に CDW は抑制され、金属中絶縁体転移を起こし、0.35 ≤ x ≤ 0.50 で超伝導 (T_c^{max} ~ 30K) を示す。我々は、絶縁体領域にある Ba_{1-x}K_xBiO₃ に圧力を印加し、Bi-O-Bi 間距離を小さくすることにより、transfer energy の利得が CDW の起源であるイオン化エネルギーの利得を上回り、金属化するのではないかと考えた。超伝導が出現した場合、フェルミ面付近の状態密度から推測すると、30K 以上の T_c が期待される。

そこで、絶縁体領域にある多結晶 BaBiO₃ と単結晶 Ba_{1-x}K_xBiO₃ (x=0.15) に対して、静水圧力を印加し、電気抵抗率の測定を行った。単結晶は、電気化学法を用いて育成した。測定は、キューピックアンビル圧力発生装置を用いて行なった。

測定結果を下図に示す。圧力を印加すると、電気抵抗率は、わずかに減少するが、ほとんど変化は見られない。また、いずれの試料においても、電気抵抗率の温度依存性は、半導体的であり、超伝導転移は確認できなかった。この原因は、圧力印加に伴い BiO₆ 八面体の傾きが增大して CDW が安定化したため、もしくは、圧力が不足しているためと考えられる。



室温での電気抵抗率の圧力依存性。



圧力下での電気抵抗率の温度依存性。

産総研強相関電子技術研究センターにおける圧力装置の現状

産総研強相関電子技術研究センター 寺倉千恵子、竹下 直、高木 英典、十倉 好紀

有機化合物における圧力下実験の華々しく豊富な成果を鑑みると、発生可能な圧力領域と、対象となる試料の「堅さ」が良いマッチングをしていたことに気がつく。一方、我々が日頃取り扱う物質はマンガン化合物など比較的堅いものが多く、発生可能な圧力領域を広げなければ、高圧力実験としてはもの足りないものになることが予想される。また、様々な試料に敏速に対応して電気抵抗や帯磁率の測定を行う必要があるため、発生可能圧力の高さをクリアした上で、汎用かつ確実に測定できる装置であることが要求された。これらを考慮して、我々は次のような装置を導入している。

1. キュービックアンビル装置

圧力は 1.5GPa から 10GPa までをカバーし、2K から 300K までの温度範囲で各種測定が可能な装置。圧力の再現性に優れており、我々の中ではリファレンス的な装置としての役目も担う。市販品。

2. 改良型ブリッジマン装置

擬似静水圧 10GPa 程度の最大発生圧力と、キュービックアンビル装置ではカバーできない複合極端条件下（磁場中、希釈冷凍機温度）での測定を実現するための装置。現在開発中。

3. MPMS 用ピストンシリンダー装置

最大 1.5GPa までの磁化測定に利用。精密かつ簡便な測定が可能。市販品。

4. MPMS 用一軸圧力装置

体積効果だけでなく、結晶の次元性を直接操作する異方的な圧力効果を簡便に得られるように開発。市販化された。

このような装置を駆使し、ほぼ当初の目標である 10GPa 程度までの圧力をカバーする複合極限環境が実現することが出来た。しかし、少々凝った装置に偏ってしまっており、低い圧力領域での transport 測定が出来ない状況になっている。最終的にこの領域もカバーできるように、小型の常時加圧タイプのピストンシリンダー型装置の導入/開発を検討している。

今後はキュービックアンビル装置の最大発生圧力の向上、改良型ブリッジマン装置の本格的な使用、などを目標に、装置の整備を行っていく所存である。また、装置開発の迅速化を図るためにも、独自に進めている装置の開発に関しては、今後情報を出来るだけオープンにし、ユーザーを増やすことを考えていきたい。

中性子散乱によるスピングャップ系 TlCuCl_3 の圧力誘起相転移の研究

原研先端研、東工大理 A、東工大極低温セ B

大沢 明、加倉井和久、藤澤 真士 A、長壁 豊隆、中村 充孝、武田 全康、下条 豊、田中 秀数 B

TlCuCl_3 はこれまでに行われてきた磁気測定の結果から基底状態がスピン一重項で励起状態との間に有限なエネルギーギャップ $\Delta=7.7$ K を持つスピングャップ系であることがわかっている。この系は基底状態がスピン一重項なので、零磁場では磁気秩序化しないが、最近この物質に $P=0.4$ GPa 以上の静水圧をかけると零磁場において反強磁性秩序を示す相転移を起こす事が磁化測定から観測された^[1]。今回、我々はこの圧力誘起相転移の磁気構造を調べるために中性子弾性散乱実験を行った。実験は日本原子力研究所三号炉に設置してある 2G TAS-1 三軸分光器を用いて行い、圧力としてマクワン型圧力セル^[2]（圧力媒体はフロリナート FC70 及び FC77 を 1:1 で混合した物）を使用し、 $P=1.48$ GPa の静水圧をかけた。

その結果、図 1 に示すように $T_N=16.9$ K 以下において $Q=(h; 0; l)$ (h は整数、 l は奇数) に対応する波数で磁気ブラッグ散乱を観測した。この波数は零磁場、常圧下ではスピングャップに対応する最小エネルギー励起を示す波数なので、この圧力誘起相転移は圧力印加によってスピングャップがつぶされ、基底状態がスピングャップ状態から磁気秩序状態へと移ったためによるものだと言うことが分かる。また磁気ブラッグ散乱強度の比から決定された磁気構造が図 2 に示されており、磁気モーメントの角度はそれぞれ $T=12.2$ K で $\alpha=42.6^\circ \pm 1.4^\circ$ 及び $\Theta=90.0^\circ \pm 9.0^\circ$ 、 $T=4.0$ K で $\beta=49.5^\circ \pm 2.4^\circ$ 及び $\Theta=58.0^\circ \pm 3.4^\circ$ と決定された。これは T_N 以下で一度磁気モーメントが $a-c$ 面内で秩序化し、さらに低温で b 軸方向に向きを変える事を示唆している。しかしながら図 1 に示されている磁気ブラッグ散乱ピーク強度の温度変化を見ると、 T_N 以下でそれを示唆するような異常は特に見られない。

また、この系ではすでに TlCuCl_3 における磁場誘起相転移、 $\text{Tl}(\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x)\text{Cl}_3$ における不純物誘起相転移が観測されており、それらの磁気構造は中性子弾性散乱実験から共に図 2 の構造で磁気モーメントの角度は $H \parallel b$ の磁場誘起磁気秩序相では $\alpha=39^\circ$ 及び $\Theta=90^\circ$ ^[3]、 Mg が 3% ドープされた系の不純物誘起反強磁性秩序相では $\alpha=34.0^\circ \pm 4.7^\circ$ 及び $\Theta=90^\circ$ ^[4] と決定されている。今回得られた圧力誘起磁気秩序相の磁気構造を見ると $T=12.2$ K で得られた磁気構造はこれまでに観測された二つの相の磁気構造とほぼ同じである事がわかる。当日は磁気モーメントの角度変化をより直接的に観測するために行った偏極中性子弾性散乱実験についても発表する予定である。

- [1] H. Tanaka *et al.*: Physica B 329-333 (2003) 697.
 [2] D. B. McWhan *et al.*: Phys. Rev. B 20 (1979) 4612.
 [3] H. Tanaka *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. 70 (2001) 939.
 [4] A. Oosawa *et al.*: Phys. Rev. B 67 (2003) 184424.

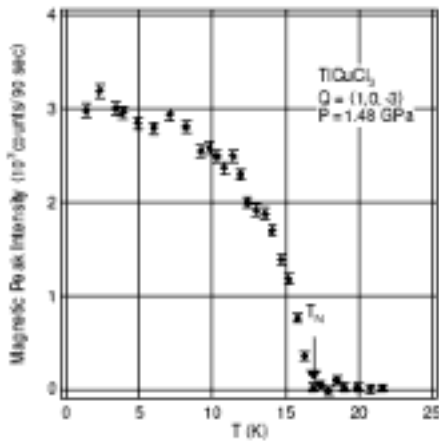


図 1 : $Q = (1; 0; -3)$ における磁気ブラッグ散乱ピーク強度の温度変化

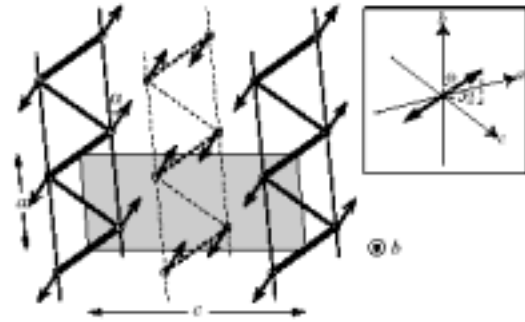


図 2 : 圧力誘起磁気秩序相における磁気構造を $a-c$ 面内に射影した図

第一原理分子動力学法による異方的圧縮と格子異常

物質・材料研究機構 計算材料科学研究センター 小林 一昭、新井 正男、佐々木泰造

概要：これまで第一原理分子動力学手法を使って、六方晶物質に対し様々な圧縮条件下（等方的、 c 軸圧縮、 a 、 b 軸圧縮）での安定構造とその電子状態の変化を研究してきた^{[1][2][3]}。対象とした物質は、LiBC, HBC, MgB(h-BN)などである。HBC, MgB(h-BN)は仮想的な物質で実在しないが、LiBC は実際に存在する物質である^[4]。計算の結果、異方的圧縮に対して、これら 3つの物質は、ポアソン比が負になる（または相当する）挙動を示すことが判明した。最初に計算で格子異常が見つかったのが LiBC^[1]で、HBC^[2]と共に a, b 軸を圧縮すると c 軸の格子定数が伸びずに縮む計算結果が得られた。更に仮想的な物質であるが、MgB(h-BN、六方晶窒化ホウ素構造)において、 c 軸圧縮に対し、 $a(b)$ 軸方向の格子定数が伸びずに縮むことが見出された^[3]。特に、LiBC に関しては複数の手法、様々な計算条件に関する検証を行ない、計算の上でこの格子異常がほぼ間違いなく起こることを確認している。但し、異方的圧縮（50 GPa に対し）による格子の縮みは、0.01Å のオーダーで非常に小さな値である。本講演では、これらの計算結果と、他の物質で同様な挙動がないかの探索及び、このような格子異常を示す原因について考察、議論する。計算手法は、広い意味でのカー・パリネロ法^[5]で、原子間に働く力（ヘルマン・フラインマン力）とストレス^[6]を用いて、系の内部構造及び単位胞の称性は保った状態で格子パラメーター（格子定数、 c/a 比、原子位置など）を最適化する。従って、圧縮による構造の相転移などは考慮されていない。擬ポテンシャルは、最適化擬ポテンシャル^{[7][8]}を使用している。計算条件は基本的に平面波のエネルギーカットフ: 81 Ry、 k 点数: 95 点(259 点) / (iBZ)である。

- [1] K. Kobayashi and M. Arai, J. Phys. Soc. Jpn. 72 (2003) 217.
 [2] K. Kobayashi, M. Arai and T. Sasaki, in Proceedings (Trans. MRS-J) of IUMRS-ICAM2003, 投稿中.
 [3] K. Kobayashi and M. Arai, MATERIALS TRANSACTIONS, 投稿中.
 [4] M. Woerle, R. Nesper, G. Mair, M. Schwarz and H. G. von Schnering, Z. Anorg. Allg. Chem. 621 (1995) 1153.

- [5] R. Car and M. Parrinello, Phys. Rev. Lett. 55 (1985) 2471.
 [6] O. H. Nielsen and R. Martin, Phys. Rev. B32 (1985) 3792.
 [7] N. Troullier and J. L. Martins, Phys. Rev. B43 (1991) 1993.
 [8] K. Kobayashi, MATERIALS TRANSACTIONS, Vol. 42, No. 11 (2001) 2153.

参考ウェブページ [a]"SANZEN", URL: <http://www.nims.go.jp/cmssc/fps2/INFO/sanzen.html>

[b] URL: <http://aml.nims.go.jp/staff/kobayak/>

MP35N を用いた μ SR 用圧力容器の開発

埼玉大理 佐藤 一彦、花岡 篤志、毛利 信男
 高エネ物構研 髭本 亘、幸田 章宏、西山 樟生

ミュオンスピン回転・緩和法 (μ SR) は加速器により加速された陽子をベリリウムなどの標的に当て発生させたパイオンが崩壊して出来るミュオンを試料に打ち込み、その偏極度の時間変化を調べることで物質の局所的な内部磁場の大きさや揺らぎなどに関する知見を得る実験手法である。0.1G 程度の微少な磁場も検出可能であること、零磁場で測定が可能であること、中性子散乱と NMR の中間の測定時間領域を有することなど独特な特徴を有しており、多くの物質についてユニークなデータを提供している。しかしながら、高圧下の実験では運動量可変の崩壊ミュオンを用いなければならないことなどの理由により、これまでにほんの数例の実験報告があるのみである。今回我々は Ni-Co-Cr-Mo 合金 (MP35N) を用いて新たな μ SR 用圧力容器を作成したので、その特性について報告する。

図 1 に作成した圧力容器の写真を示す。外径約 33mm を有する通常のクランプ型ピストンシリンダー容器であるが、信号強度を稼ぐために試料空間が直径 10mm と大きく取られており、飛来したミュオンが容器壁を突き抜け試料に到達できるように容器の厚さは 7.65mm となっている。試料に到達したミュオンの割合を調べるために、明確な回転信号が見える Ni を圧力容器に入れ μ SR 信号を見た結果を図 2 及び図 3 に示す。ミュオンの運動量は $100\text{MeV}/c$ である。1 μ s 以下の時間領域 (図 2) では Ni に静止したミュオンからの回転信号が明確に見られ、1 マイクロ秒以上では MP35N に静止したミュオンからの緩和信号が支配的となる。両者のアシンメトリーの大きさを比較することにより試料と圧力容器の各々に静止したミュオンの数はほぼ 1 : 1 であることが分かった。1 マイクロ秒以下の減少であれば充分 μ SR 実験が可能であり、本圧力容器を用いて CeRh₂Si₂ などの物質において、高圧 μ SR 実験が成功している^[1]。

[1] W.Higemoto *et al.*: Physica B329-333(2003)601.

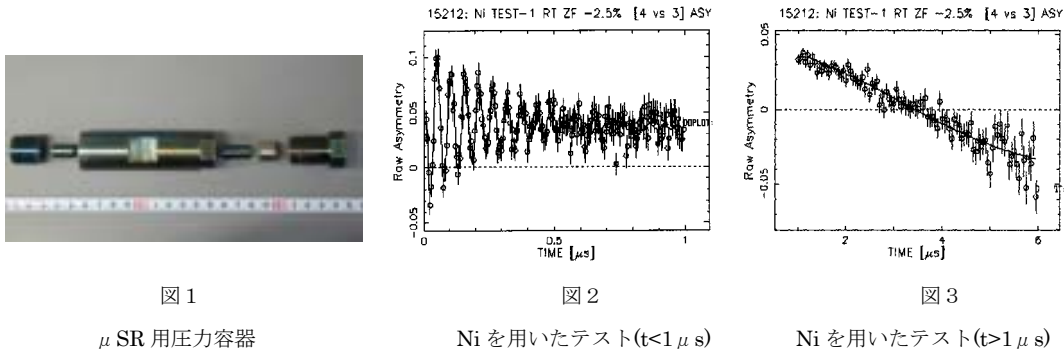


図 1

μ SR 用圧力容器

図 2

Ni を用いたテスト ($t < 1 \mu$ s)

図 3

Ni を用いたテスト ($t > 1 \mu$ s)

重い電子系における圧力誘起超伝導の機構

姫工大院理、京大院理^A 深澤 洋乃、山田 耕作^A

● CeIn₃の超伝導発現機構

CeIn₃^[1]の圧力誘起超伝導について研究を行なった。Ceの4f電子が寄与する3次元的なフェルミ面^[2]と、4f電子に働く電子相関を考慮したモデルを考え、摂動論で電子間斥力の効果を取り入れて超伝導機構を調べた。

結果として、フェルミ面から $Q=(\pi, \pi, \pi)$ 近傍の3次元的な反強磁性揺らぎが導かれ、これが主な起源となってd波超伝導が導かれることが分かった。超伝導対称性としては $d(x^2-y^2)$ 及び $d(3z^2-r^2)$ 波対称性が有利であった。又、同じCe系物質で2次元系のCeRhIn₅と3次元系CeIn₃の転移温度を計算した結果、実験での超伝導転移温度 $T_c=0.2K$ に近い値を得た。^[3]

● 強磁性下超伝導の理論

超伝導と強磁性は本来共存しにくいと考えられるが、重い電子系UGe₂^[4]において強磁性と共存^[5]した超伝導が発見されていることから、特別な状況下では共存することがあると考えられる。我々は、三重項超伝導について常磁性から強磁性の強さが強くなっていく際の超伝導の振る舞いを求め、強磁性と超伝導の関係を理論的に調べた。

モデルとしてMajority bandとMinority bandを考え、両バンドの電子に働く電子間斥力の効果を摂動論で取り入れて、三重項超伝導を議論した。両バンドの電子数を変えることで磁化の強さを変化させ、その際の超伝導転移温度の振る舞いを調べた。

結果として、常磁性から強磁性への超伝導転移温度の変化は、電子密度、フェルミ面の状況に依存することが分かった。講演では、常磁性よりも強磁性において高い転移温度が得られる場合の、Majority bandとMinority bandの電子状態を示し、UGe₂のバンド計算の結果と比較する。

[1] N. D. Mathur *et al.*, Nature **394**, 39 (1998)

[2] K. Betsuyaku, Dr. Thesis, Osaka University (1999), H. Harima, private communication.

[4] H. Fukazawa K. Yamada, J. Phys. Soc. Jpn **72**, 2449 (2003)

[3] S. S. Saxena *et al.*, Nature **406**, 587 (2000).

[5] A. Huxley *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 144519 (2001).

Co₂SiO₄スピネルの高圧合成とその磁性

京大化研¹、日本学術振興会²、JST-PRESTO³、JAERI⁴

齊藤 高志^{1,2}、東 正樹^{1,3}、高野 幹夫¹、加藤 健一⁴

High Pressure Synthesis and the Magnetism of Co₂SiO₄ Spinel.

Kyoto Univ. Inst. Chem. Res¹., JSPS², JST-PRESTO³, JAERI⁴

Takashi SAITO^{1,2}, Masaki AZUMA^{1,3}, Mikio TAKANO¹ and Kenichi KATO⁴

スピネル型化合物AB₂O₄はBサイトに着目すると頂点共有した四面体からなる、いわゆるパイロクロア格子をしており、LiV₂O₄におけるHeavy Fermion的挙動やAlV₂O₄における電荷不均化など、Bサイトにのみ磁性イオンを含むスピネル型化合物において近年興味深い現象が報告されている。Aサイトに入る非磁性4価陽イオンとしてはGe⁴⁺やSi⁴⁺などが考えられ、Si⁴⁺を含むものとしてFe₂SiO₄、Co₂SiO₄、Ni₂SiO₄などが鉱物として天然にも存在する事が知られているものの、これらは合成に高圧を要するため、その物性に関する報告例は少ない。本研究ではCo²⁺スピンの3次元フラストレーション効果が期待されるCo₂SiO₄スピネルを高圧合成法によって合成し、その磁性の研究を行った。合成はキュービク

アンビル型高圧発生装置を用いて行った。 $\text{Co}_3\text{O}_4, \text{SiO}_2, \text{Si}$ を Au カプセルに封入し、高温・高圧処理 (8GPa, 700°C) によって単相の試料を得た。磁化率や磁化過程の測定から、この化合物は磁気異方性の強い Co^{2+} がスピン 3/2 を持っており、それらが高温側では強磁性相互作用を及ぼし合っているが、約 15K で反強磁性長距離秩序するものと考えられる。また比熱の測定から、転移より高温において短距離磁気秩序が発達していると考えられる。

Co-グラニューラー薄膜における高次トンネル効果の圧力制御

九大理、東北大金研 A、東大物性研 B

加治 志織、巨海 玄道、三谷 誠司 A、高梨 弘毅 A、辺土 正人 B、上床 美也 B

Co-グラニューラー薄膜は磁性金属粒子が絶縁体の Al 酸化物によって隔たれた構造を持つ金属-非金属グラニューラー物質のひとつで、大きなトンネル型磁気抵抗効果 (Tunnel Magnetoresistance: TMR) を示す。また、低温になると、クーロンブロッケイドの効果が顕著に現れ、高次のトンネル効果により TMR が増大するという実験結果も知られている^[1]。我々はこの物質において電子物性と構造パラメータは密接な関係をもっていることに着目し、高圧下で電気・磁気抵抗測定を行ってきた。その結果、電気特性及びその温度依存性が圧力をかけることにより大きく変化し^[2]、さらに $T=4.2\text{ K}$ において TMR が圧力の印加によって 3GPa まで増大するという結果を得た^[3]。今回更に圧力の効果を明らかにするために 8GPa までの圧力範囲で実験を行った。

Fig.1 に高圧下での電気抵抗率の温度依存を、Fig.2 に室温、77K および 4.2K における磁気抵抗の圧力変化をしめす。圧力の増加に伴い抵抗率の温度依存は大きく変化し、半導体的な伝導から金属的な振る舞いへ変化した。一方、磁気抵抗の圧力効果は室温と 77K では加圧にともない、単調に減少するのに対し、4.2K では 4GPa まで MR は増大し、その後減少に転じることが分かった。

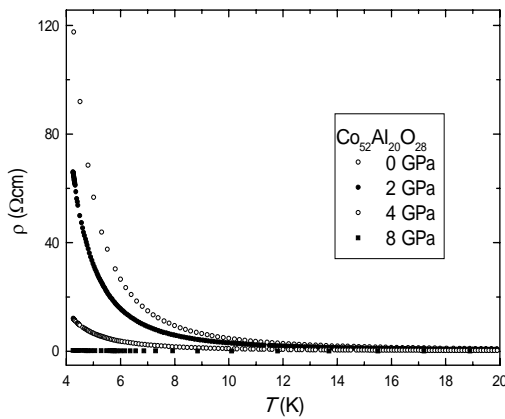


Fig.1 高圧下での電気抵抗率の温度依存

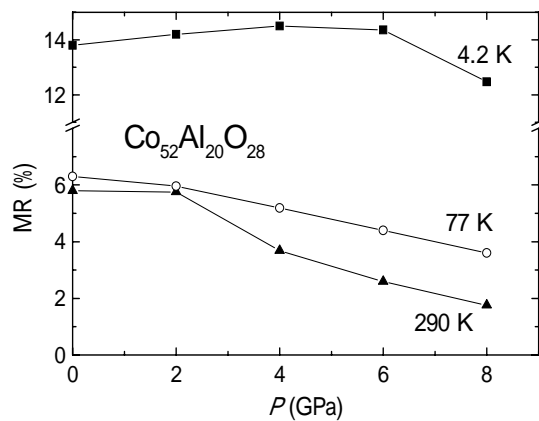


Fig.2 磁気抵抗の圧力変化

Reference

- [1] S.Mitani *et al.*: Phys.Rev.Lett., **81**, (1998), 13.
- [2] S. Kaji *et al.*: Trans. Magn. Soc. Japan, **2**, (2002), 53-55.
- [3] S. Kaji *et al.*: Phys. Rev. B, **68**, (2003), 054429.

MnPS₃の格子定数の圧力依存性

日大理工、東大物性研^A

増淵 俊仁、高橋由美子、高瀬 浩一、高野良糸己、上床 美也^A、小山 和子^A、関沢 和子

1. はじめに

遷移金属リントリカルコゲナイド MPX₃ (M: 3d 遷移金属, X: カルコゲン元素) は、CdCl₂型の二次元の層状化合物で、M が磁気モーメントを持つことが特徴的である。層間は弱い van der Waals 力で結びついているために圧力によって層間隔が大きく変化し、そのため層間の相互作用も変化する事が知られている。今回は T_N の圧力依存性を調べる前段階として、上床研究室の高圧 X 線装置を用いる事により、格子定数の圧力依存性、温度依存性を調べた。

2. 高圧 線回折

高圧 X 線回折は東京大学物性研究所の上床研究室の協力を得て行った。圧力媒体にはエタノールとメタノールの混合溶液を用い、圧力の較正は Ruby 蛍光ソフト法を用いた。線源は Mo を用い、圧力は 1、2、3、4、4.5GPa をかけた。温度は 300、250、180、130、85、75、10K と変化させて測定した。その結果、イメージングプレートに得られた回折像を 2θ 変換することで、回折プロファイルを得た。

3. 結果と議論

測定の結果、圧力の増大とともに層間が弱い van der Waals 力で結びついていることを反映して c 軸が最大の減少をした。また、圧力をかけた状態での温度変化測定から、3GPa を超えない範囲では格子膨張程度の変化を見せたが、3GPa を超え、且つ 75K 以下では格子定数が僅かに増大した。これは磁気弾性効果によるものと考えられる。すなわち、圧力による格子定数の変化が、この系の磁氣的性質をかなり変えると考えられる。

低温、高圧下の粉末X線回折測定装置

東京大学 物性研究所 小山 和子、上床 美也

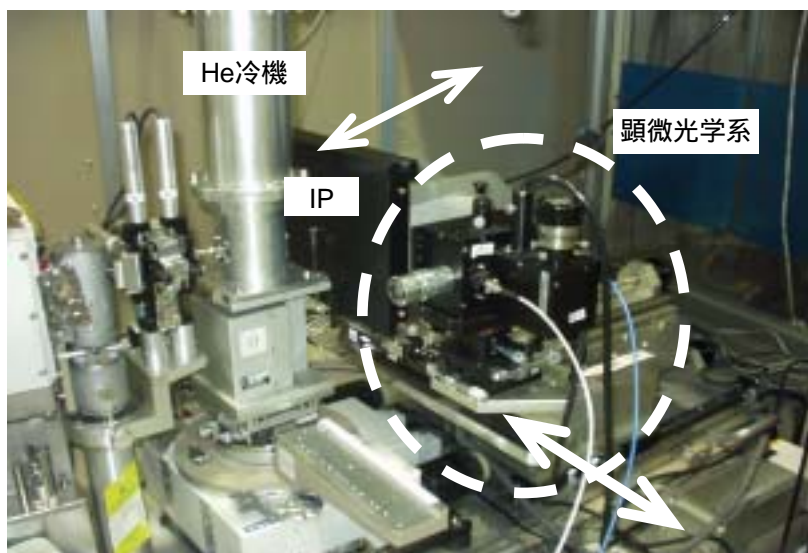


図 1

東京大学物性研究所上床研究室における、低温高圧粉末X線回折装置の概要を紹介する(図1参照)。

粉末X線回折装置は、Mo または Cu のローターターゲット、デバイーシェラー光学系 (株式会社 RINT2500) で、回折線の記録にはイメージングプレート (IP) を用いている。ゴニオセンタには、マイラ窓付きの GM ヘリウム冷凍機を取り付け、約 4K ~ 300K の温度領域で測定可能である。冷凍機の中にガス膜駆動式のダイヤモンドアンビルセルを取り付けることができ、これまでに最高 300Gpa まで加圧することができた。

圧力の見積もりにはルビー蛍光法を用いており、蛍光測定および試料空間の画像モニタのための顕微光学系も組み込まれている。

この光学系と IP とは、交互にスライドさせて試料前に移動することができる。そのため、ルビー蛍光スペクトルをモニタしながらの試料の加圧と、粉末 X 線回折測定の繰り返しという一連の作業を簡便に行うことができる。

実際にこの装置で得られた結果を、図 2 および図 3 に示す。

試料は $\text{Ce}(\text{Ru}_{0.85}\text{Rh}_{0.15})_2\text{Si}_2$ で、4.4K、1.1GPa において得られた IP 画像が図 2 をもとに角度変換して得られた回折プロファイルが図 3 である。このようなデータから、この物質の体積弾性率の温度変化を求めることができた。

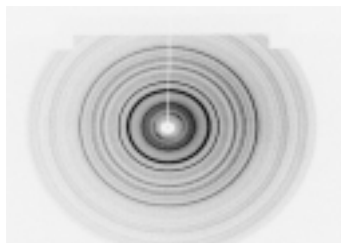


図 2

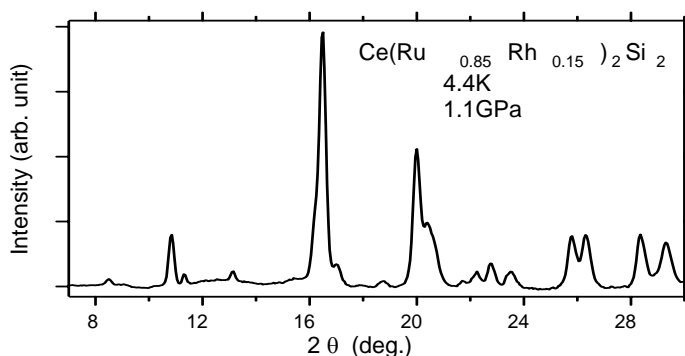


図 3

高純度合成ダイヤモンドによる超高压発生

阪大極限セ A、阪大院基工 B、住友電工マテ研 C

中本 有紀 A、松岡 岳洋 B、角谷 均 A、C、清水 克哉 A、美田 佳三 B、小林 融弘 B

はじめに

ダイヤモンドは、物質中最も高い硬度、圧縮強度を有し、紫外から遠赤外の広い領域の光や X 線に対して透明であることから、超高压発生用 Diamond Anvil Cell (DAC) のアンビルとして、高压科学の研究分野で広く利用されている。この用途に通常用いられる天然ダイヤモンドは、不純物や内部歪を多く含む。これらは、光の吸収やルミネッセンスの原因となってルビー測光や分光測定に影響を及ぼす他、超高压発生時に破壊の起点となり、特に 100GPa を超える超高压の安定発生を困難にする。これに対して、不純物を制御して、一定の条件下で安定成長させた高純度合成 IIa 型ダイヤモンドは、欠陥や内部歪みが少なく、光学特性に優れる¹⁾とともに、極限的超々高压力の安定発生が期待できる。

われわれは、従来にない超高压の安定発生の可能性を追求すべく、この高純度 IIa 型ダイヤモンドをアンビルとして超高压発生実験を実施、同時に超高压下でのアンビル内の圧力分布や変形状態を評価して、アンビル形状の改良、最適化を試みる。

実験方法

高純度合成 IIa 型ダイヤモンド結晶から直径 3mm、高さ 2mm、キュレット径 300 μm ^①および 50-300 μm (bevel)^②のアンビルを製作した。ガスケット材としてレニウムを用い、上記ダイヤモンドアンビルによる DAC で超高压を発生させた。ダイヤモンドアンビル内およびキュレット面上の圧力分布はダイヤモンドの一次ラマンスペクトルのシフト量から見積もった。ラマンスペクトルの測定は、Ar+レーザーの 514.5nm の発振線を使用し、後方散乱配置で測定を行った。

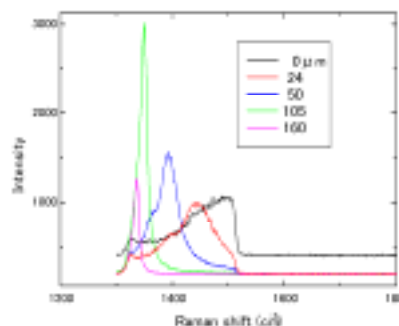


Fig. 1 Depth dependence of Raman spectra of diamond-anvil under high-pressure.

結果

まず①のキュレット径 $300\ \mu\text{m}$ のダイヤモンドアンビルで中心圧力 160GPa まで加圧した。顕微鏡下では、ダイヤモンドのキュレットの中心から離れると焦点が合わないことからキュレット面がかなり変形していることがわかる。Fig.1 に中心圧力 110GPa の時のアンビルのキュレット面上で測定したラマンスペクトルを示す。中心から離れるにしたがってラマンピークが低波数側にシフトし、圧力が減衰している状況がわかる。このピークシフト量から圧力を算出した結果を、深さ方向のデータと合わせて Fig.2 に示す。キュレット面ではほぼ中心を対称になだらかに減少していく傾向があり、一方深さ方向では急激に減少していることがわかる。また、X線の透過強度測定からは中心部分がダイヤのエッジ部分より数 μm のオーダーで凹んでいることがわかった。現在、②の $50\text{-}300\ \mu\text{m}$ のベベルドアンビルを用いて超高压を発生させ、同様の測定を行っている。また、これらの圧力分布、変形データを基に有限要素法による応力変形シミュレーションを実施して、ダイヤモンドアンビル形状の最適化と発生圧力限界の追求を行う。

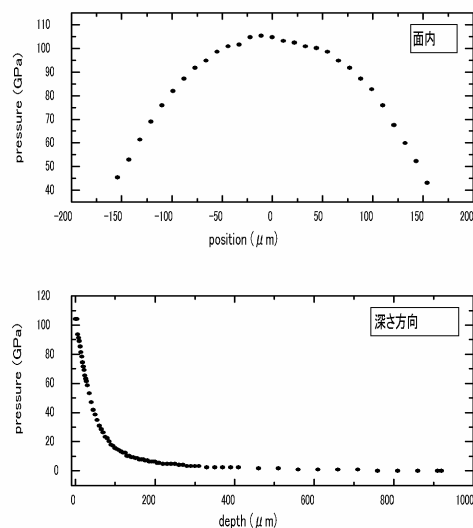


Fig. 2 Pressure distribution of diamond anvil under high pressure.

Ce₂RhSi₃ の圧力下における電気抵抗

東大物性研^A、Tata Inst. of Fundamental Research^B、埼玉大理^C

中野 智仁^A、辺土 正人^A、床美 也^A、K. Sengupta^B、E.V. Sampathkumaran^{AB}、毛利 信男^C

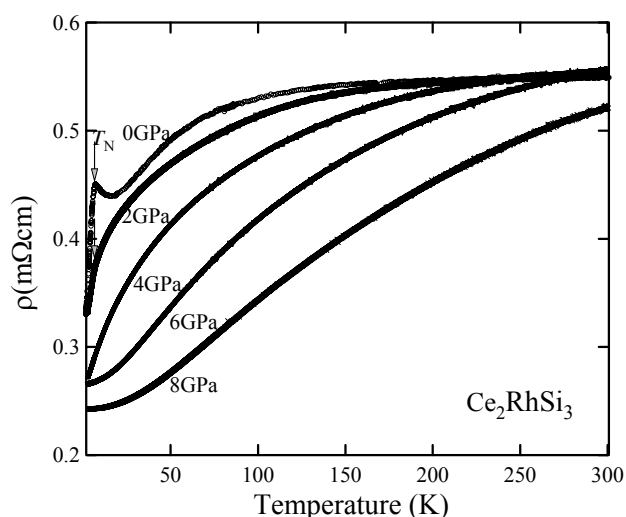
Resistivity of Ce₂RhSi₃ under high pressure

ISSP, Univ. of Tokyo^A, Tata Inst. of Fundamental Research^B, Saitama Univ.^C

T. Nakano^A, M. Hedo^A, Y. Uwatoko^A, K. Sengupta^B, E.V. Sampathkumaran^{AB}, N. Mori^C

Ce₂RhSi₃ は六方晶 AlB₂-type の結晶構造を持ち、 $T_N=7\text{K}$ 以下で反強磁性秩序を示す^[1]。この物質系に対し Sampathkumaran は Ce サイトを La および Y 置換することによる Chemical pressure 効果の研究を行っており、彼らにより Chemical pressure 効果による Kondo lattice から Single ion Kondo effect への変化が報告されている。しかし未だ静水圧下での報告はなされていない。そこで我々は Ce₂RhSi₃ に対して静水圧下の電気抵抗測定を行うことにより純粋な圧力効果によってこの系の物性の詳細を明らかにすることを目的として実験を行った。

試料は Tata Inst. of Fundamental Research でアーク溶解された多結晶 Ce₂RhSi₃ 試料を用いた。圧力中における電気抵抗測定はキュービックアンビルを用い直流 4 端子法によって行った。電気抵抗測定の結果を図に示す。 $P=0\text{GPa}$ における電気抵抗は 150K 以下で徐々に減少し、 15K 以下で近藤効果の影響と考えられる上昇を示す。さらに $T_N=7\text{K}$ で反強磁性秩序に伴った減少を示す。一方、 $P\geq 2\text{GPa}$ の静水圧を加えることにより 15K 以



下で観測された電気抵抗の上昇は消失する。また T_N は低温側にシフトし、 $P \geq 4$ GPa に対しては観測されなかった。量子臨界点近傍と考えられる $P = 4$ GPa では線形的、より高压の $P \geq 6$ GPa に対しては $\rho \sim T^2$ の温度依存性が低温で観測された。

- [1] I. Das *et al.* J. Magn. Magn. Mater. 137 (1994) L239-L242
 [2] K. Sengupta *et al.*, Proceeding of Solid Physics Symposium, India 2003

Ce₂RhIn₈ の圧力効果

東大物性研、物材機構^A、横国大院工^B、名工大工^C
 小枝 真仁、藤原 哲也、辺土 正人、上床 美也、松本 武彦^A、
 梅原 出^B、富岡 史明^B、陳 根富^C、大原 繁男^C、坂本 功^C

Electrical resistivity of Ce₂RhIn₈ under high pressure II

ISSP, Univ. of Tokyo, NIMS^A, Yokohama National University^B, Nagoya Institute of Technology^C
 M.Koeda, T.Fujiwara, M.Hedo, Y.Uwatoko, T.Matsumoto^A,
 I.Umehara^B, F.Tomioka^B, G.F.Chen^C, S.Ohara^C, I.Sakamoto^C

重い電子系物質 Ce₂RhIn₈ は常圧下において $T_N = 2.8$ K の反強磁性体であるが、圧力下で超伝導を示す物質であると報告されている^[1]。今回測定を行った試料は常圧下で 0.3K までゼロ抵抗を示さないが、0.5K で急激な電気抵抗率の減少 (図 1) を示す。この試料についてその圧力効果を測定した。圧力発生には、NiCrAl 合金と CuBe 合金を組み合わせたハイブリッド・ピストンシリンダー型圧力容器を用い、³He 冷凍機を組み合わせると約 0.3K までの温度範囲で測定した。図 1 に各圧力下における電気抵抗の温度依存性を示す。P=0.5GPa 以上の圧力下でゼロ抵抗が現れ、2.1GPa 以上の圧力では、文献^[1]と同様なシャープな超伝導転移が見られた。図 2 には今回の測定で最大の超伝導転移 ($T_c = 2.1$ K) を示した P=2.3GPa における、各磁場下での電気抵抗率の温度依存性を示す。磁場を加えると 9T で超伝導は消失した。この試料の測定結果は、文献^[1]やこれまでの我々による測定結果と異なっており、 T_N 以下の温度で起こる物性に試料依存性が大きいという結果が得られた。

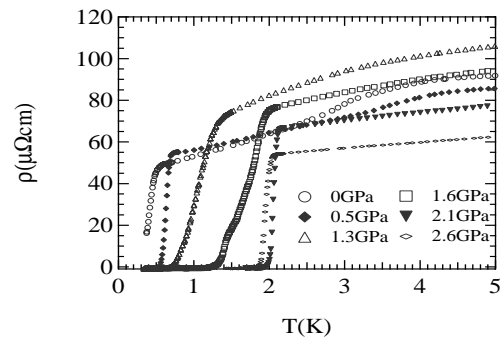


図 1

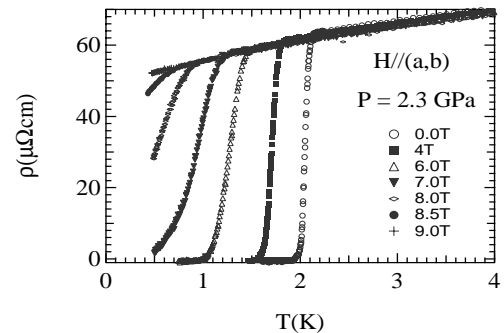


図 2

- [1] M. Nicklas *et. Al.*, Phys. Rev. B 67, 020506(R) (2003)

YbMn₂Ge₂ の圧力誘起相転移

東京大学物性研究所 藤原 哲也

Mn 原子が 2 次元配列した体心正方晶構造を有する RMn₂Ge₂ 系化合物の磁性は Mn 間の交換結合 J_{Mn-Mn} により特徴付けられる。我々は、最近、RMn₂Ge₂ 系化合物の一つである YbMn₂Ge₂ が温度変化に伴って、AFM I 相 (163 K $< T < T_{N1}$ ~ 405 K) と AFM II 相 ($T < T_{N2} = 163$ K) の二種類の反強磁性を示す事を明らかにすると同時に、AFM II 相 (低温相) において、

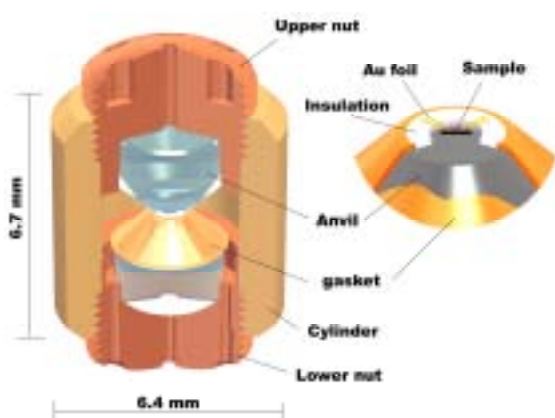
相反する性質を持つ2種類の磁氣的相互作用（例えば、強磁性と反強磁性）が競合している事を示唆する特異な振舞いを見出した^[1]。さらに、外部静水圧力下において、本系の磁性は劇的に変化する事を明らかにした^[2]。つまり、常圧下では163Kであったネール点 T_{N2} が、1.0 GPa の圧力下では270Kにまで上昇し、さらに加圧した2.0 GPa においては、112 K にまで押し下げられた。この時、AFM I相(高温相)のネール点 T_{N1} は、 T_{N2} が最大を示す~1.25 GPa において、最小(~370K)となった。また、~1.25GPa の上下の圧力領域で、系の示す磁氣的な振舞いは豹変した。これらの結果は、AFM I 相とAFM II 相が競合関係にあり、~1.25 GPa において磁気構造の変化を伴った相転移が誘起された事を示唆している。このような異常な反強磁性状態や圧力効果は、他の3価のR原子から成る RMn_2Ge_2 化合物においては、一切、見出されていない事から、その起源は、Yb のイオン状態に深く関与していると思われる。そこで、Yb L_{III} 端近傍におけるX線吸収スペクトルの測定を室温、高圧力下において行ったところ、1.25 GPa 付近でYb イオンの価数が常圧における+2.4 価から不連続に+3 価に近い状態に変化している事実を突き止めた。この事は、Yb イオンの価数転移が Mn モーメント間の磁氣的相互作用に多大な影響を及ぼしている事を示している。

[1] T. Fujiwara et al., Physica B, 312-313 (2002) 864.

[2] T. Fujiwara et al., Acta Physica Polonica B, 34 (2003) 1541.

電気抵抗測定用小型 DAC の技術開発

東大物性研^A、NHMFL^B 狩野 みか^A、栗田 伸之^A、小山 和子^A、辺土 正人^A、上床 美也^A、S.W. Tozer^B



これまで我々のグループはキュービックアンビル型高圧発生装置を用いた測定で β' - $(BEDT-TTF)_2ICl_2$ が約8GPaの超高压下で $T_c=14.2K$ の超伝導体であることを報告してきた^[1]。超伝導状態の発現機構を明らかにするためには電気抵抗の磁場依存性を測定することが不可欠である。そこで我々は小型ダイヤモンドアンビルセル (DAC) の技術開発を行ってきたので報告する。

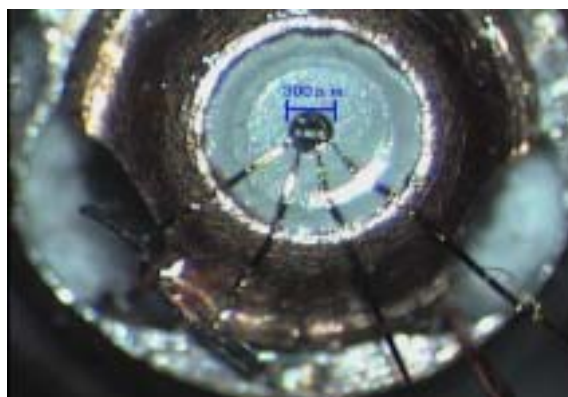
今回開発を行った DAC はターンバックル式と呼ばれ NHMFL の S.W. Tozer 博士との共同開発である。ダイヤを固定している Upper nut と Lower nut がそれぞれ右ネジと左ネジになっており、Cylinder を回転させることによりそれぞれのダイヤが平行を保ったまま近づくとという仕組みになっている。ダイヤの間に穴(サンプルスペース)を開けたガスケットを挟み、試料をセットし、油圧プレスで押しながら Cylinder を回転させサンプルスペースに高圧をかける。圧力のモニターはルビー蛍光の圧力シフトで行っている。

サンプルスペース)を開けたガスケットを挟み、試料をセットし、油圧プレスで押しながら Cylinder を回転させサンプルスペースに高圧をかける。圧力のモニターはルビー蛍光の圧力シフトで行っている。



端子付け

- ・サンプルサイズ=180x70x40 μm
- ・コンタクト=カーボンペースト



セッティングの様子

[1]H. Taniguchi et. al., JPSJ 72 (2002) 468

リエントラント圧力誘起超伝導体 ZrTe₃

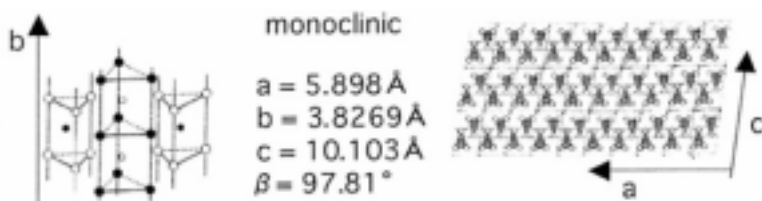
北大院工 四方 亮輔、稲垣 克彦、丹田 聡、山谷 和彦
東大物性研 Melike Abliz、辺土 正人、上床 美也

ZrTe₃は常圧でCDW転移(63K)と超伝導転移(2K)を起こす低次元導体である。1GPa までの圧力効果は他の CDW・超伝導共存系と異なり、超伝導転移温度は加圧とともに1.5K 以下まで低下し、CDW 転移温度は110K まで上昇することが報告されている。

今回我々は、ZrTe₃の電気伝導を2GPa から11GPa の圧力範囲で測定した。その結果、一度は消えていた超伝導相が5GPa 付近から再び現れてくることを発見した。この高圧下超伝導の性質ならびに CDW との関係の解明が今後の課題である。

1. ZrTe₃について (常圧下での緒性質)

結晶構造

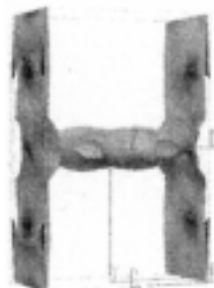


CDW

ZrTe₃の抵抗率は $\rho_a : \rho_b : \rho_c \approx 1:1:10$ と二次元的な異方性を示す。フェルミ面(右図)は板状の部分とひょうたん状の部分によって形成され、一次元性と三次元性を併せもった形状になっている。この形状を反映して、ZrTe₃ではCDW転移が生じる。ただしこの転移で消滅するフェルミ面は板状の部分であり、ひょうたん状の部分はそのまま残る。

ネスティングベクトル(電子線回折)

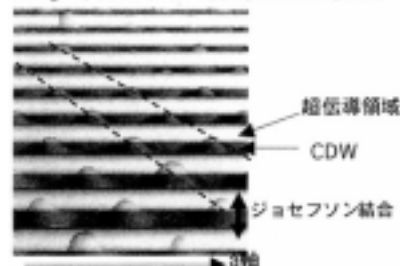
$$Q \approx 0.93a^* + 0.33c^* \approx (1/14, 0, 1/3)$$



超伝導

ZrTe₃の超伝導はマイナー効果が非常に小さい。また超伝導ゆらぎに異方性があり、a軸方向の転移にくらべb軸方向の転移ゆらぎが小さい。これらのことから下図のように「超伝導領域がフィラメント状に存在し、フィラメント間がジョセフソン結合している」というモデルが提案されている。

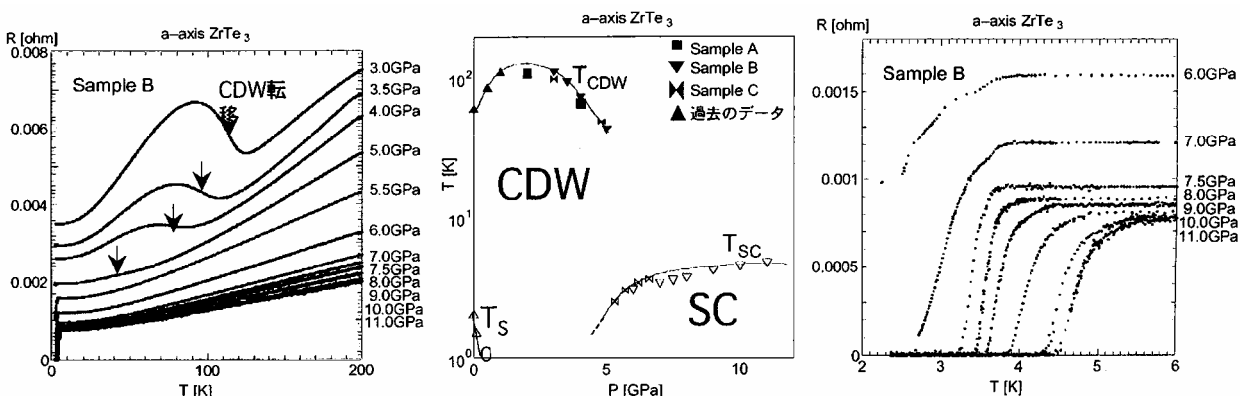
ZrTe₃フィラメンタリー超伝導とCDWの模式図



超伝導フィラメント方向

2. 実験結果 (2GPa-11GPa)

キュービック・アンビルを用いて、定加重により2GPa から11GPa の圧力範囲でZrTe₃の電気抵抗の温度変化を測定した。



発見：

1. P~4.8GPa で超伝導(onset)出現
2. 超伝導出現後 P~5GPa でCDW 消滅



今後の課題：

1. 高圧下超伝導性質の解明
2. 高圧下超伝導 CDW の競合・共存関係

Bi, Pb-3d 遷移金属ペロブスカイト

京大化研、JST-PRESTO ○東 正樹

京大化研 新高 誠司、石渡晋太郎、山田 幾也、高野 幹夫

Bi, Pb-3d transition metal perovskites

Masaki Azuma (Kyoto Univ., JST-PRESTO)

Seiji Niitaka, Shintaro Ishiwata, Ikuya Yamada and Mikio Takano (Nihon Univ.)

1. はじめに

磁性と強誘電性を併せ持つ化合物は、その相関を利用したセンサー材料やメモリ材料として、高い応用価値を持つ。しかし、現実の磁性強誘電体はまれである。これは、強誘電性が反転対称性を持たない構造がもたらす性質であるのに対し、磁性を持つ遷移金属酸化物では、一般に反転対称のあるヤーンテラー歪みが起こっているからである。ところがビスマスや鉛を含むペロブスカイトでは、6s 孤立電子対の存在のために反転対称を破るような局所的な歪みが起こりやすく、実際 BiFeO_3 は反強磁性強誘電体である事が知られている。

Bi-3d 遷移金属の探索は 1960 年代に盛んに行われ、 BiMO_3 として、 $M = \text{Sc, Cr, Mn, Co, Ni}$ が高圧下で合成できると報告された。しかし何分昔のことで、構造解析や誘電率の測定はなされていなかった。この中で BiMnO_3 は 1999 年に中性子回折による構造解析が行われ、さらに最近粉末試料を用いた測定によって強磁性強誘電体であることが確認された。我々は残りの BiCrO_3 、 BiCoO_3 、 BiNiO_3 についても放射光 X 線回折による構造解析と物性測定を行ったので、報告する。

2. 実験方法

試料はいずれもキュービックアンビル型高圧発生装置を用いて合成した。得られた試料について、SPring-8 の BL02B2 に設置された大型デバイセラーカメラで粉末回折パターンを測定し、Rietveld 法による構造精密化を行った。また、SQUID による磁化と、LCR メータを用いた誘電率の温度変化も測定した。

3. 結果と考察

BiCrO_3 は BiMnO_3 と同じく $C2$ の対称性を持つペロブスカイト構造であった。構造から b 軸方向に自発分極が起こっていると期待される。実際誘電率は 440K で発散し、この酸化物が強誘電体であることがわかった。 T_c 以上では、斜方晶の GdFeO_3 型構造へと転移する。磁性は $T_N=116\text{K}$ の反強磁性で、反転対称の無い構造を反映して、スピンキャンティングによる弱強磁性が観測された。

BiCoO_3 は $P4mm$ の対称性を持つ、 PbTiO_3 と同型の結晶構造であった。構造からは強誘電体であることが期待されたが、残念ながら金属伝導を示した。現在元素置換による絶縁体化を試みている。

BiNiO_3 は反転中心を持つ P-1 空間群で、ユニットセルは GdFeO_3 と同じ、ペロブスカイトの $\sqrt{2}a \times \sqrt{2}a \times 2a$ であった。ここには Bi サイトが二つあるのだが、ボンドバレンスサムの計算から、これらが 3 価と 5 価に不均化している事がわかった。すなわち酸化状態は $\text{Bi}^{3+}\text{Ni}^{3+}\text{O}_3$ ではなく、 $\text{Bi}^{3+1/2}\text{Ni}^{5+1/2}\text{O}_3$ である。これを反映して、系はスピン 1 の局在モーメントを持つ反強磁性絶縁体であった。この電荷不均化は、Bi を一部 La で置換することで融解する。 $\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x\text{NiO}_3$ として、 $0.05 < x < 0.15$ の試料は組成に応じた温度で金属—絶縁体転移を示した。金属相の構造は GdFeO_3 型で、ここでは Bi がすべて 3+ になるため、Ni への電荷移動が起こり、 Ni^{3+} による金属伝導が実現していると考えられる。 $\text{Bi}_{0.8}\text{La}_{0.2}\text{NiO}_3$ は 5K まで金属伝導と斜方晶の構造を保持した。また、同様の構造変化を伴う絶縁体—金属転移は、 BiNiO_3 に圧力を印可することでも生じた。

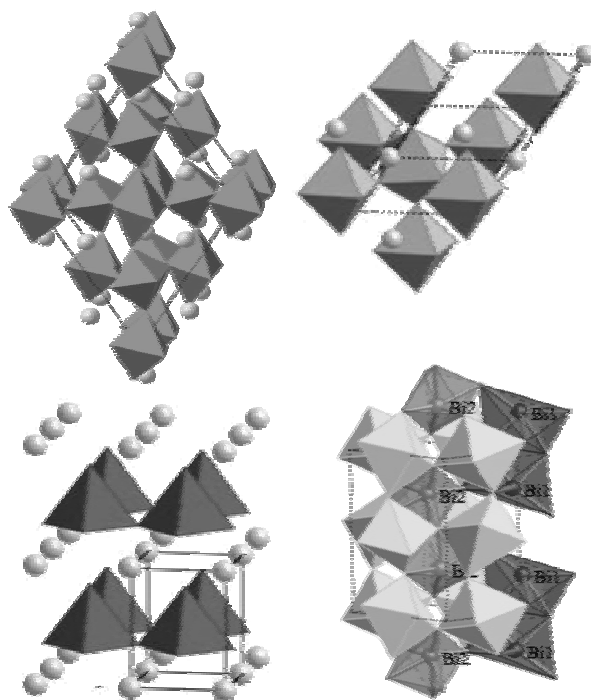


Fig.1. Crystal structures of BiCrO_3 and BiMnO_3 (a), BiFeO_3 (b), BiCoO_3 (c) and BiNiO_3 (d)

高圧下融液徐冷却法による GaN 単結晶合成

日本原子力研究所 放射光科学研究センター 内海 渉
utsumi@spring8.or.jp

現在、GaN 系デバイスはサファイアなどの異種結晶基板上に成膜されているために、多くの転位が発生しその性能向上を阻害している。ホモエピタキシャル成長を可能とする GaN 基板が切望されているが、高温で GaN が Ga と N₂ に分解してしまい、融液の徐冷による標準的な単結晶育成法が利用できないため、大型単結晶 GaN 育成には困難を伴う。気相成長法や、フラックス法、高圧窒素ガス溶浸などの種々の手法による峻烈な開発競争が繰り返されている。

今回我々は、SPRING-8 放射光を用いた高温高圧下その場観察実験によって、GaN が 6GPa 以上の高圧下では分解することなく、一致溶融 (congruent melting) し、その融液は温度を下げることによって可逆的に GaN 結晶に戻ることを明らかにした。この事実は、高圧下で GaN 組成の融液を徐冷することによって単結晶 GaN を得る新しい合成手法へと導くものである。実際に、この手法により透明な GaN 単結晶が得られ、ラマン散乱や単結晶 X 線振動写真などのキャラクターレーションの結果、非常に結晶性の良い試料であることが示唆されている。この手法は、育成時間が比較的短時間であり、異種元素の置換や添加が容易であるという特長をもつ。放射光実験によって得られた GaN の圧力温度相図ならびに単結晶合成の展望について紹介する。

参考文献：

W.Utsumi, H.Saitoh, H.Kaneko, T.Watanuki, K.Aoki and O.Shimomura: Nature Materials **2** (2003)735-738

希土類カルコゲナイド、プニクタイトにおける物理的圧力と化学的圧力

東北大学極低温科学センター 落合 明

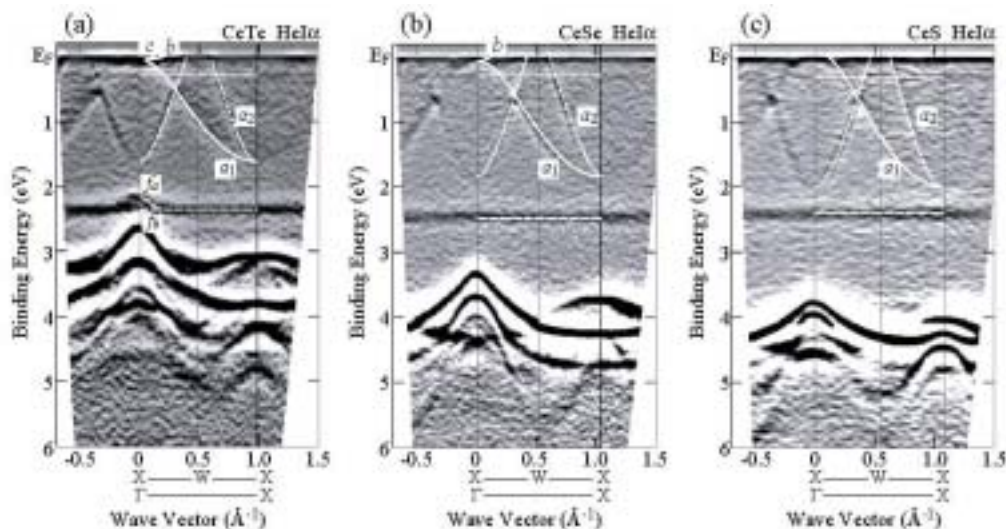
元素置換による化学的圧力と物理的圧力は、物性研究では同等の効果と見なされることが多く、測定手法との相性により相補的に活用されてきた。両者とも、格子定数を変化させる点では同様な効果を持つが、局所的なひずみを引き起こす化学的圧力と、一様な圧縮を行う物理的圧力では大きな違いがある。さらに、部分的な置換でなく、全置換した系でも、本質的な差異が生じる場合があり、希土類カルコゲナイド、プニクタイトでの、カルコゲン或はプニクトゲンの置換による化学的圧力はその例である。

一般に、強相関 Ce 化合物の物性は、所謂ドニアックの相図による近藤効果と RKKY 相互作用の競合で理解されている。この過程は、圧力の印加により再現できる。下表に、強相関 Ce 化合物の典型物質と考えられる Ce モノカルコゲナイド (CeX: X = S, Se, Te) の磁氣的性質を示す。

	a (Å)	T_N (K)	磁気モーメント (μ_B)
CeTe	6.369	2.2	0.30
CeSe	5.990	5.4	0.56
CeS	5.777	8.4	0.57

CeTe から CeS に向かって格子定数が減少しており、これは化学的圧力を印加したことに対応する。この時、磁気転移温度 (T_N) は化学的圧力の増加とともに増加している。化学的圧力を物理的圧力と同等に考えるなら、これは近藤効果より RKKY 相互作用が支配的な領域に CeX があることを示唆している。しかしながら、磁気秩序状態の磁気モーメントはそれとはまったく逆に、化学的圧力が小さいはずの CeTe で最も減衰している。このような矛盾は、化学的圧力と物理的圧力がエネルギーバンドにより異なった方向に作用することから理解できる。

下図に、東北大学・高橋グループと共同で行った CeX の角度分解光電子分光の結果を示す。物理的圧力と同様に d -バンド ($E_B < 2\text{eV}$ のバンド) は格子定数の減少と共に広がる (CeS で最も広い)。しかし、 p -バンド ($E_B > 2.5\text{eV}$ のバンド) は $CeTe$ で最も広くなり f -レベル ($E_B \sim 2.3\text{eV}$) に近づくため $CeTe$ で最も p - f 混成が強くなる。さらに、価電子バンドの変化は伝導バンドの変化より大きいので、 $CeTe$ で p - d 混成が最も強いと考えられる。結局、 p -バンドを介在にした d - f 混成が期待され、それは $CeTe$ で最も強くなる。つまり、化学的圧力が最も弱い $CeTe$ で近藤効果が最も強く働くことになる。



新しいピストンシリンダーを用いた強磁場 ESR システムの開発

神戸大分子フォトセ^A, 神戸大自然^B, 神戸大 VBL^C, 東大物性研^D
 太田 仁^A, 櫻井 敬博^B, 稲垣 祐次^C, 大久保 晋^A, 上床 美也^D

近年圧力下での物性測定はますます盛んになっており、帯磁率、電気抵抗等のマクロな物理量と圧力との関係を調べることは、物性研究上欠くことの出来ないものになっている。一方、圧力によって発現するマクロな物性変化を、微視的観点から解明することは非常に意義深く、圧力下での強磁場 ESR 測定はその有効な手段の一つである。我々はこれまでに CuBe 製のピストンシリンダー型圧力セルを組み込んだパルス強磁場 ESR システムの開発を行ってきた。開発されたシステムの測定領域は、最大磁場 16 T、周波数領域 70 ~ 460 GHz、温度領域 1.7 ~ 60 K、最大発生圧力 3.5 kbar である^[1]。圧力セルの最大の特徴は、ミリ波・サブミリ波領域の電磁波が透過するように内部のプラグ等の部品を全てサファイア製にした点である。既にいくつかの磁性体に対して同システムによる測定を行い、圧力による系の状態変化を ESR の観点から見出してきた。またルビー ($Al_2O_3:Cr^{3+}$) の圧力に伴う共鳴磁場のシフトを利用した、ESR 測定独自の圧力較正方法を見出した。

現在の圧力セルの問題点としてはまず、発生圧力が低いという点、サファイア部品が加圧時に比較的割れやすいという点が挙げられる。またパルス磁場下では磁場発生時に、シリンダー上にエディカレントが発生する。これはしばしば試料空間での磁場遮蔽効果、ヒーティング効果をもたらすため出来るだけエディカレントの発生を軽減させる必要がある。発生圧力は内外径比を大きくすることが最も容易な解決策であるが、電磁波の透過度、試料空間の大きさという観点からは、内外径は現状の圧力セルと同じであることが望ましい。そこでこれらの問題を解決するために、内外径を現状のままとし、シリン

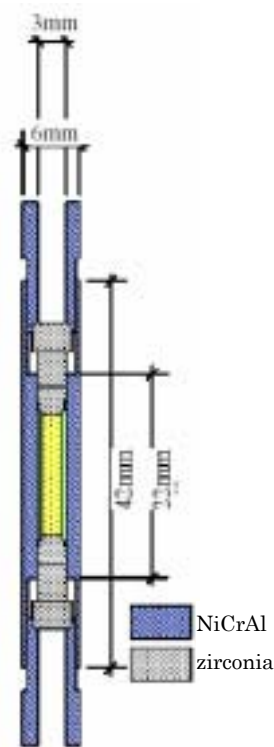


図. NiCrAl、ジルコニアを用いた新型圧力セル

ダー材料として NiCrAl、プラグ材料としてジルコニアを用いた新たな設計による圧力セルの作製を行った(図)。NiCrAl は CuBe に比べより硬いので、内外径が同じであっても最大発生圧力の増大が期待される。更にセルの設計を内部部品が壊れにくくなるように工夫した。これらにより現状の圧力セルに比べ、より安定的に、かつ高い圧力が得られると期待される。エディカレントに関しては、NiCrAl の抵抗は CuBe に比べて大きいと考えられるので、その発生は抑えられると期待される。当日の講演では、新型圧力セルの性能評価等について詳細に報告する。

[1] H. Ohta, *et al.* Physica B **294-295** (2001) 624.

静水圧、軸性圧力下の dHvA 効果

東北大学極低温科学センター 青木 晴善、木村 憲彰、遠藤 元気、
重岡 千尋、皆川 真、一色 俊之、落合 明、小松原武美
物質材料研究機構 寺嶋 太一、宇治 進也、松本 武彦
ケンブリッジ大学 G.G.Lonzarich

我々はこれまで静水圧、軸性圧力下でのドハース・ファン・アルフェン (dHvA) 効果の開発を進めてきた。dHvA 効果の観測には強磁場、極低温に加えて静水圧性の高い静水圧力、均質な軸性圧力の印加が重要である。現在では十分な試料スペースを確保してピストンシリンダーで 30kbar 程度の静水圧力、4kbar 程度の軸性圧力の印加が可能である。

本セミナーでは、最近の高圧下の dHvA 効果の研究の中から、UGe₂ および ZrZn₂ の高圧下の dHvA 効果と二つの物質の相図について述べる。UGe₂ には二つの磁気状態 FM1、FM2 があり、それらの状態の温度-圧力-磁場相図は模式的に図 1 のように示すことができる。UGe₂ の超伝導は磁気転移が消失する Pc 近傍ではなく、Px 近傍で出現する。磁場を容易軸方向に加えた場合ではメタ磁性転移 Bx, Bm が出現する。この相図内の電子状態を dHvA 効果で見ると、磁場を困難軸に加えた場合では Pc を越えると大きなフェルミ面が変化が起こる。一方、有効質量は Px 近傍で急激に増大し、Pc 近傍での変化は小さい。

最近、ZrZn₂ についても磁気転移以下での超伝導出現が報告されている。超伝導は常圧から観測でき、Pc 近傍で消失する。dHvA 効果を調べてみると、周波数や有効質量の圧力変化は連続的であり、UGe₂ のときのような顕著な変化はない。しかし、アップスピンとダウンスピンの電子からの周波数差、すなわち Exchange Splitting の大きさの磁場変化を詳細に調べてみると、その振る舞いは二つの磁気状態 FM1、FM2 間のクロスオーバーが起きているとすると良く理解できる。常圧下での磁化測定の結果も dHvA 効果から求めたクロスオーバーの振る舞いとよく一致する。また、これらや超伝導の振る舞いは ZrZn₂ が Px の位置が負圧側にある図 2 のような UGe₂ とよく似た相図を持っているとすると、理解が可能である。

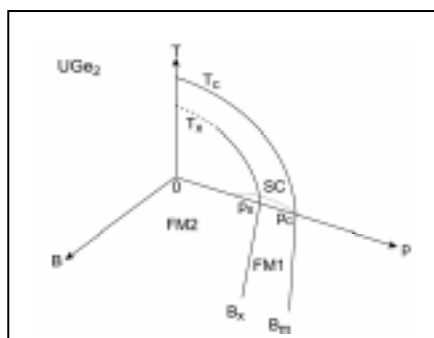


図 1

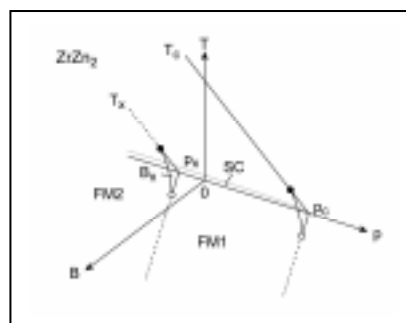


図 2

重い電子系の高圧下のドハース・ファンアルフェン効果

大阪大学大学院理学研究科 大貫 惇睦

ドハース・ファンアルフェン (dHvA) 効果は通常磁場変調法で検出する。金属製の圧力セルに変調磁場が加わると、常圧での dHvA 効果では問題とならなかった渦電流による発熱が大きな問題となる。常圧で 30mK に到達して行っていた dHvA 実験は Cu-Be 製の圧力セルでは最低到達温度は約 130mK となる。圧力セルの材料を電気抵抗が Cu-Be に比べて約 20 倍大きい MP35N に変更すると 80mK に下がる。ここで、dHvA の検出電圧 V_{osc} は変調周波数 f に比例するので、周波数を大きくすれば信号は大きくなる。液体ヘリウム $3(^3\text{He})$ での実験では $f=200\text{Hz}$ が一般的である。しかし、希釈冷凍機では $f=11\text{Hz}$ と小さくせざるを得ない。ここに圧力セルが希釈冷凍機の中に入ると $f=3.5\text{Hz}$ と更に 1 桁小さくする必要がある。したがって、dHvA の検出電圧は非常に小さく、実験は簡単でない。このような条件下で私達はこれまで CeRh_2Si_2 , UGe_2 , CeCoIn_5 , CeRhIn_5 , CeIn_3 について約 3GPa までの圧力下での実験を行ってきた。特に CeRh_2Si_2 や UGe_2 では磁気秩序温度がゼロになる臨界圧力 P_c を境にして、フェルミ面が 1 次の相転移で変わることが明らかになった。圧力で電子状態を劇的に変えられることが実験的に示され、電子状態の実験的研究に極めて有効であることが分かり、現在研究を推進している。

微小磁性体におけるトンネル型電気伝導と磁気抵抗の圧力効果

—高圧下の量子物性—

九州大学大学院理学研究院、理学府* 巨海 玄道、加治 志織*
東北大学金属材料研究所 高梨 弘毅、三谷 誠司

私達のグループはこれまで金属人工格子の巨大磁気抵抗 (GMR) を高圧下で測定することにより、これらの物質におけるいわゆるスピン依存の圧力変化の様相について研究を重ねてきた。最近も京都大学や東北大学の研究グループと協力することにより、更に興味ある成果を得ている。結果を一口にまとめて言えば、高圧下で殆どの人工格子の GMR は減少することである^[1]。これらは当然量子力学の支配する世界における現象である。しかしより量子力学に直接的に結びつくような現象において圧力の効果はどのようなものか、即ち直接量子力学に圧力をかけることができるのかについては興味があるところである。トンネル効果は純粋に量子効果でありそれをベースとする現象の観測を通じて「高圧下の量子物性」研究が可能になると期待される。このような視点から最近我々は微小磁性体におけるトンネル効果が圧力によってどのような変化を受けるかについて実験をはじめた。

Co-Al-O は非晶質アルミナの中にナノスケールの Co のクラスターが分布した構造を持つ微小磁性体である。この物質中での伝導はトンネル効果によっており、特徴的な電気伝導 (あるいは抵抗) の温度変化が観測されるばかりでなく、大きな磁気抵抗効果 (トンネル型磁気抵抗効果: TMR) を示す。低温においてこの TMR はクーロンブロッケイドと高次のトンネル効果により、大きく強調されることが明らかにされている。このような興味ある輸送現象を示す物質で圧力はいかなる作用を及ぼすのだろうか。実験結果の例を図 1 に磁気抵抗効果の圧力変化として示す。人工格子では観察されることがほとんどなかった圧力による TMR の強調効果が見られる。このような面白い結果については高次のトンネル効果を仮定すると定性的に理解できることを最近我々は示すことができた^[2]。この他本学において展開されている特色ある高圧下の科学の研究成果についても簡単に触れてみたい。

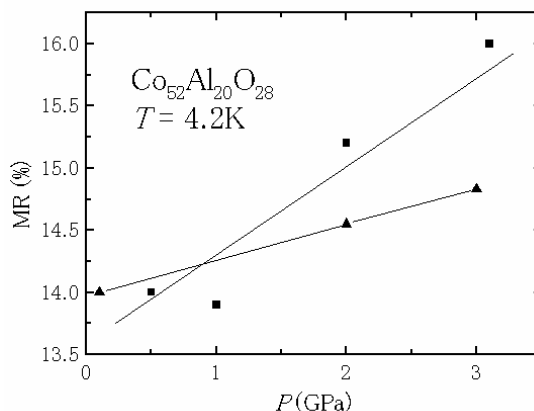


図 1 磁気抵抗効果の圧力変化

Reference

- [1] G. Oomi *et al.*, Physica B, **239**, (1997), 19.
[2] S. Kaji *et al.*, Phys. Rev. B, **68**, (2003), 054429.

ベータバナジウムブロンズにおける電荷秩序と圧力誘起超伝導

東大物性研 上田 寛

一般式 $\beta\text{-A}_{1/3}\text{V}_2\text{O}_5$ と表されるベータバナジウムブロンズは特徴的な V_2O_5 フレームワークとそれがつくるトンネル内のサイトを占める A イオンより成る単斜晶構造を持つ。 V_2O_5 フレームワークは稜および頂点共有の $\text{V}\text{-O}$ 多面体より構成される。結晶学的には3種類の V サイトがあり、それぞれ稜共有の VO_6 八面体よりなるジグザグ鎖、頂点共有の VO_6 八面体よりなる梯子鎖、稜共有の VO_5 ピラミッドよりなるジグザグ鎖を形成している。 A カチオンとして $\text{A}^+ = \text{Li}, \text{Na}, \text{Ag}$ および $\text{A}^{2+} = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Pb}$ の物質が合成されている。 A 原子はイオン化して V_2O_5 フレームワークに電子を供与する結果、 V 原子の形式電荷は A^+ の場合 $\text{V}^{4+}/\text{V}^{5+} = 1/5$ 、 A^{2+} の場合 $\text{V}^{4+}/\text{V}^{5+} = 2/4$ となる。ここで、 V^{4+} の電子配置は $3d^1$ で V^{5+} は $3d^0$ である。ベータバナジウムブロンズは、結晶構造を反映して鎖方向に金属伝導を示す擬1次元伝導体である。 $\text{A} = \text{Pb}$ を除く物質はすべて電荷秩序を伴う金属—絶縁体転移を示し、低温絶縁体相の基底状態は A^+ 物質では反強磁性、 A^{2+} 物質ではスピン・ギャップである。以前 $\beta\text{-Na}_{1/3}\text{V}_2\text{O}_5$ において、加圧により電荷秩序が抑えられ、 $T_c = 9\text{ K}$, 8 GPa で超伝導相が電荷秩序相に隣接して現われることを初めて見出した。その後、残りの物質についても圧力誘起超伝導の有無を調べたところ、これまでに、 A^{2+} 物質では電荷秩序相は抑えられるが超伝導は観測されないことが判明した。最近、 $\beta\text{-Ag}_{1/3}\text{V}_2\text{O}_5$ において $T_c = 7\text{ K}$, 7 GPa で $\beta\text{-Na}_{1/3}\text{V}_2\text{O}_5$ 同様超伝導相が電荷秩序相に隣接して現われることを見出した。より詳しい観測により常圧下での電荷秩序転移は二次転移的であるが、高圧下での電荷秩序—超伝導転移は一次転移的であることが判明した。 $\text{A}^+ = \text{Li}$ の物質についての高圧下での実験が残っているが、これまでのところ、超伝導は A^+ 物質においてのみ観測され、このことは超伝導に最適なドーピングレベルの存在を物語っている。一方、 A^+ 物質の基底状態は反強磁性であることから、電荷揺らぎに加えて反強磁性揺らぎも超伝導発現に重要な役割を果たしているかもしれない。

Charge Ordering and Superconductivity

H.Fukuyama (IMR, Tohoku)

“Charge Ordering(CO)” itself is not a new subject, not to speak of the Anderson’s proposal to magnetites (Fe_3O_4) many years ago. However this CO or Charge Disproportionation (CD) has attracted much attention recently because of its unique features revealed in various experiments in transition metal oxides and molecular solids. Especially in molecular solids there are many examples by now;

- (1) DCNQI_2Cu : The sharp and huge metal-insulator transition is understood as a result of cooperation phenomenon between charge ordering in Cu sites as $\text{Cu}^+ : \text{Cu}^+ : \text{Cu}^{2+}$ and the Peierls transition of the π -electrons on DCNQI molecules.
- (2) TM_2X : CO in this family, which was originally suggested by the NMR experiments and then confirmed by the straightforward calculations, is stabilized even in the presence of finite dimerization. The existence of CO is very natural in retrospect but has never been anticipated before. The theoretical finding has led to the discovery of the transition to the ferroelectric state observed by the measurement of the dielectric constant at very low frequency. All these have resulted in the modification of the Jerome’s phase diagram believed since early 80’s.
- (3) DCNQI_2Ag : Without dimerization, this family is an ideal “1/4-filled” system having the CO state, whose stability

is sensitively dependent on the external pressure. Near the suppression of CO state, the resistivity is found to be in proportion to T^3 indicating the existence of a possible new type of electron liquids in the vicinity of CO state.

- (4) There are now already several examples of the onset of superconducting states in the vicinity of CO states. Actually superconductivity seems to be stabilized in the CO state, i.e. CO and superconductivity are not exclusive, as far as the experimental data of resistivity is taken literally. If this is the case, the driving mechanisms will be very intricate and interesting since CO should accompany both charge and spin fluctuations with large amplitudes.

See related references: H.Seo,C.Hotta and H.Fukuyama “Toward Systematic Understanding of Diversity of Electronic Properties in Low-Dimensional Molecular Solids” submitted to Chemical Reviews “Molecular Conductors”.

圧力下の比熱測定を試み

横浜国大・工学研究院 梅原 出、富岡 史明
東大・物性研 藤原 哲也、辺土 正人、上床 美也

市販のスクイッド磁力計での磁化測定と比熱測定が行える、小型のピストン・シリンダー圧力セルの開発を行ってきた。現状のセルについて報告したい。これまで、テフロン製のサンプルセルと銅製のシール・リングをもちいて圧力のシールを行ってきた。テフロンは、比熱が大きな圧力依存性をもつことから、比熱測定には適しないことが指摘されており、高圧下での比熱測定を志す研究者にとっては、重要な案件であったと思われる。そこで、銅製のサンプルセルで圧力のシールをおこなうことを試みた。図1にあげたのは、セルの概念図である。これで、低温で約1.5GPaの圧力の発生に成功した。圧力媒体は、フロリナート70と77の1:1の混合液をもちい、圧力の較正は、Snの圧力下での超伝導転移の変化をスクイッド磁力計で観測しておこなっている。

このセルをもちいて重い電子系の圧力誘起超伝導体として研究がすすみつつある Ce_2RhIn_8 の圧力下での比熱測定をはじめた (図2)。この研究の現状についても報告したい。

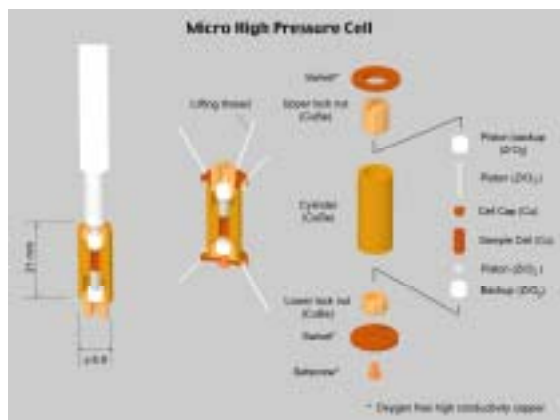


図1 銅製サンプルセルをもちいた圧力セル

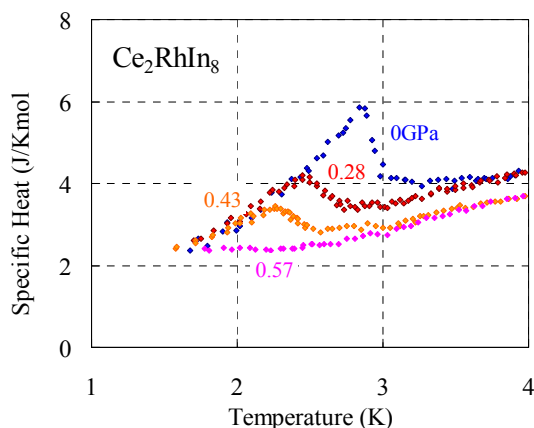


図2 Ce_2RhIn_8 の比熱

圧力が咲かせた“悪魔の花” —NaV₂O₅の電荷秩序— "Devil's Flower" Blooming in NaV₂O₅ under Pressure

東大物性研 藤井 保彦 Y. Fujii (ISSP)

The quarter-filled spin-ladder compound NaV₂O₅ undergoes a novel phase transition at $T_c=35\text{K}$ associated with its spin, charge and lattice system. Its orthorhombic phase (Pmmn) above T_c has a charge-disordered state as nominally represented as V^{4.5+}. We performed extensive neutron and x-ray scattering studies on ISSP-owned triple-axis neutron spectrometers at JRR-3M (Tokai) and four-circle x-ray diffractometers at Photon Factory (KEK), respectively. Below T_c we discovered the cooperative occurrence of atomic displacements^[1] and the charge-ordering as V⁴⁺ and V⁵⁺ ^[2] both modulated with $\mathbf{q}=(1/2, 1/2, 1/4)$, and the spin-gap formation at $\mathbf{q}=(1, 1/2, 0)$ ^[1,3]. For last several years, however, no conclusive structure of the low-temperature phase has been obtained. Very recently Sawa et al. ^[4] succeeded in a very precise structure analysis claiming a monoclinic symmetry and observed a concomitant monoclinic splitting of Bragg reflections by synchrotron x-rays. We have also carried out an anomalous scattering experiment across the K-edge of V ions (V⁴⁺ and V⁵⁺) to fully determine a charge-ordering pattern by using such a monoclinic single domain crystal. We have been led to the conclusion that the layer-stacking sequence along the c-axis is the so-called AAA'A' type instead of the previous ABA'B' type^[4].

Our high-momentum resolution synchrotron x-ray scattering experiments under high pressure further revealed unexpectedly interesting features of this compound. The atomic displacement pattern characterized by a wave number vector $\mathbf{q}=(1/2, 1/2, q_c)$ varies systematically as functions of temperature and pressure. Thus obtained T-P phase diagram with respect to q_c ^[5] has many higher-order commensurate phases and it resembles "devil's flower" theoretically obtained by the ANNNI (Axial Next Nearest Neighbor Ising) model ^[6]. The above-mentioned experimental fact that the low-temperature structure with $q_c = 1/4$ at ambient pressure can be represented by the AAA'A' sequence strongly implies the justification for the ANNNI model applicable to NaV₂O₅. The current hottest issue is "What is a microscopic mechanism to produce such competing interactions between the 1st and 2nd neighboring layers along the c-direction in NaV₂O₅ as the ANNNI model?".

These works were performed in collaboration with K. Ohwada (ISSP, now JAERI/SPring-8), Y. Katsuki (ISSP, now ACCENTURE Co.), M. Isobe and Y. Ueda (ISSP), H. Nakao and Y. Murakami (Tohoku Univ.), E. Ninomiya (Chiba Univ., now TDK) and H. Sawa (Photon Factory, KEK).

[1] Y. Fujii et al., J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 326; H. Nakao et al., Physica B 241-243 (1998) 534.

[2] H. Nakao et al., Phys. Rev. Lett. 85 (2000) 4349.

[3] T. Yoshizawa et al., J. Phys. Chem. Solids 60 (1999) 1099;

[4] H. Sawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 71 (2002) 385.

[5] K. Ohwada et al., Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 086402.

[6] Per Bak and J. von Boehm, Phys. Rev. B 21 (1980) 5297.

有機伝導体での圧力研究の進展とそれゆえの注意点

大阪市立大学 理学研究科 村田 惠三

1. 始めに

有機伝導体に於ける高圧実験は大きな進展の節目毎に大変重要な役割を果たしてきた。最近、加圧手段や加圧下での物性測定手段は現在では極めてバラエティに富んできた。それ故圧力の絶対測定を意識しないと物理に混乱を招く。

2. 節目での高圧の役割

TTF-TCNQ では電荷移動量が非有理数の 0.59 で、電荷密度波が格子と不整合であったが、圧力が 0.66 に変化させ、密度波の格子との整合化が実現した。その後 TCNQ 位置の電荷受容体が無機物にされたとき、電荷移動量がきれいな整数になり、1/4、1/2 充満の Mott 絶縁体などの物理が生れた。そこでは圧力は SDW を整合から不整合にさせ超伝導を生んだ。 β -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ で 0.1 GPa 程度で超伝導の T_c が 1K から 8K に上昇し、有機伝導体の研究が存続した。 κ 型の BEDT-TTF 塩では温度圧力相図上で電子相関とバンドの関係が整理された。DNCQI 塩、BETS 塩でも圧力が議論の基礎となってきた。また θ 型の BEDT-TTF 塩でも圧力が大きな手段となって電荷秩序が議論された。このように節目、要で圧力が重要な手段、牽引力となっている。

3. 圧力の絶対値が重要に！

最近まではひとつの物性の高圧下実験で議論してきたことが多かったため、同一研究グループからの成果は相図での圧力軸上での大小関係がはっきりしていれば物理の議論を進めることができた。そのため、TMTSF $_2$ PF $_6$ の超伝導出現圧力は 0.9 GPa(Orsay)と 0.65 GPa(Orsay 以外では正しいと思われる)との食い違いがあっても相図の定性的な違いも無いため問題にならなかった。

しかし、最近では電気抵抗の他に、X 線構造解析や、NMR などの結果を組み合わせると同じ物理を議論することが出来るようになった為、圧力の大小のみならず、絶対的に信頼できる値で測定しておくことの重要性が増してきている。

例えば同じ piston cylinder でも 1 H-NMR にはプロトンを含んでいる Daphne7373 を使えないためフロリナート 77/70 を用いるが、輸送現象測定にはは Daphne7373 が適している。室温でクランプ後、Daphne7373 は低温にしても 0.15 GPa しか減少しないが、フロリナート 77/70 は 0.5~0.6 GPa も減少することから、室温での圧力値で低温の圧力を同圧力として比較することは出来ない。

従って、高圧実験では、実際の毎回の実験での圧力は測れない場合もあるが、最小限、どの温度で測った圧力で、どの媒体をもちいたのかを必ず記述しないと物理の議論が混乱する。何か、どの温度で加圧したか、圧力構成はどのようにしたかもコンパクトな記述が欲しい。超高圧でも加圧手段と媒体をしっかり記述しないと、物理の議論に影響してくることを指摘したい。

硫化スピネル CuRh_2S_4 における圧力誘起超伝導体絶縁体転移

広大院先端 鈴木 孝至

カルコゲナイドスピネルは、物性の宝庫といえる。半導体、金属、磁性体、超伝導体であるだけでなく、エキゾチックな磁気転移や金属絶縁体転移を示す。たとえば、 CuRh_2S_4 (格子定数 $a = 9.787 \text{ \AA}$) と CuRh_2Se_4 (格子定数 $a = 10.269 \text{ \AA}$) がそれぞれ $T_c = 4.7 \text{ K}$ と 3.5 K の超伝導体であるのに対し、 CuIr_2S_4 ($a = 9.844 \text{ \AA}$) は $T_M = 226 \text{ K}$ で金属絶縁体転移を起こすことが報告されている^[1-3]。格子定数に着目すると、 CuIr_2S_4 は、 CuRh_2S_4 と CuRh_2Se_4 の中間である。格子定数の変化を化学的圧力とみなすと、カルコゲナイドスピネルにおける圧力効果を調べることは、この系を理解する上で非常に重要であると考えた。

本研究では、 CuRh_2S_4 および CuRh_2Se_4 の圧力下電気抵抗率測定を行った。図 1 に CuRh_2S_4 の圧力下電気抵抗率を示す。 $3.0 < P < 8.0 \text{ GPa}$ の結果において T^* の位置にコブ状の異常が確認できる。 $P < 5.0 \text{ GPa}$ の圧力範囲では、 T^* 以下の温度依存性は金属的 ($\partial \rho / \partial T > 0$) であり、 T_c で超伝導転移を示すが、 $P > 5.0 \text{ GPa}$ では絶縁体的 ($\partial \rho / \partial T < 0$) となり、超伝導転移が消失する。 ρ は圧力上昇とともに増加し、例えば $T = 10 \text{ K}$ において、 $P = 8 \text{ GPa}$ の ρ は常圧のそれに比べて 10^7 倍も増加する。図 2 に T_c と T^* の圧力依存性を示す。 T_c は圧力増加とともに増加し、 $P = 4.0 \text{ GPa}$ で最高値 $T_c = 6.4 \text{ K}$ に達した後、 P_{si} で消失する。即ち、 P_{si} で圧力誘起超伝導体絶縁体転移が起きている^[4]。また、 T^* は P_{si} で最小値をとる。超伝導体から絶縁体への変化は、常伝導状態が圧力増加に伴い金属から絶縁体に変化しキャリアが消失することによって起こると見られる。現在の所、金属絶縁体転移の起源は、Rh イオンの価数変化と関連があると予想している。

参考文献

- [1] N. H. Van Maaren, *et al.* Phys. Lett. 25A(1967)238.
- [2] T. Furubayashi, *et al.* J. Phys. Soc. Jpn 63 (1994)3333.
- [3] P. G. Radaelli, *et al.* Nature. 416(2002)155
- [4] M. Ito, *et al.* Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 077001

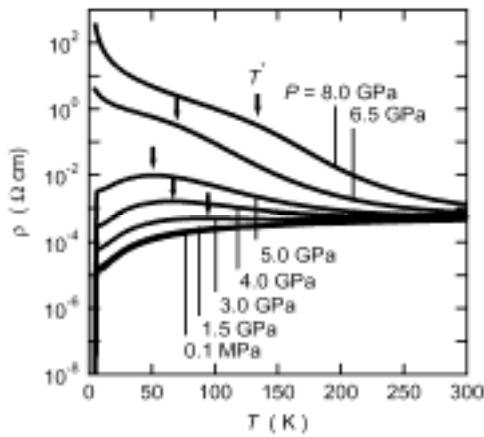


図-1 CuRh₂S₄ の圧力下電気抵抗率

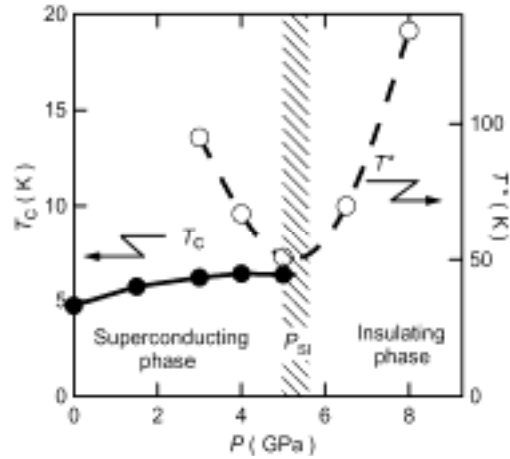


図-2 T_c, T' の圧力依存

共同研究者：伊藤昌和、堀純也、栗崎宏美、岡田宏成、藤井博信、藤田敏三、中村文彦

硫化スピネル化合物の高圧下熱電能

琉球大理 仲間 隆男、矢ヶ崎克馬、A. T. Burkov¹
 東大物性研 辺土 正人
 室蘭工大 永田 正一

スピネル型結晶構造の CuIr₂S₄ は、温度下降と共に約 230 K で立方晶から三斜晶への結晶構造相転移を伴う金属-絶縁体 (M-I) 転移をすることが知られている。一方、同じ結晶構造をもつ CuIr₂Se₄ の場合は大気圧下では全測定温度領域で金属的な温度依存を示す。われわれは、これらの化合物について -2 K から 900 K の広い温度範囲で電気抵抗率 ρ と熱電能 S の測定を行い、これらが特異な温度依存を示すことを報告した^[1]。

CuIr₂S₄ の絶縁相における ρ は、 $\rho \propto \exp[(T^*/T)^{1/2}]$ の Efros-Shklovskii 型のホッピング伝導によく似た温度依存を示す。また高温の金属相における ρ も、 $\rho \propto \exp[-(T^*/T)^{1/2}]$ で表される活性化型の温度依存を示す。一方 CuIr₂Se₄ の ρ は、200 K 以下の低温領域では CuIr₂S₄ の高温相と同様の温度依存を示し、200 K 以上の温度領域では $\rho \propto \exp[-(T^*/T)]$ の温度依存を示す。

今回は、上述の特異な温度依存を示す CuIr₂S₄ のおよび CuIr₂Se₄ の化合物の S を 0-2 GPa の高圧下、0-300 K の温度範囲で測定した。

CuIr₂S₄ の M-I 転移温度は、圧力の増加とともに高温側にシフトし、S は M-I 転移点でジャンプし熱電能の値が大きく変化する。一方、CuIr₂Se₄ の ρ は、約 1.5 GPa 以上の圧力で低温の金属的な温度依存から半導体的な振舞いに変化するが、S は圧力に対してほとんど変化しない。図 1 に、各圧力中の CuIr₂S₄ のおよび CuIr₂Se₄ の熱電能の温度依存を示す。

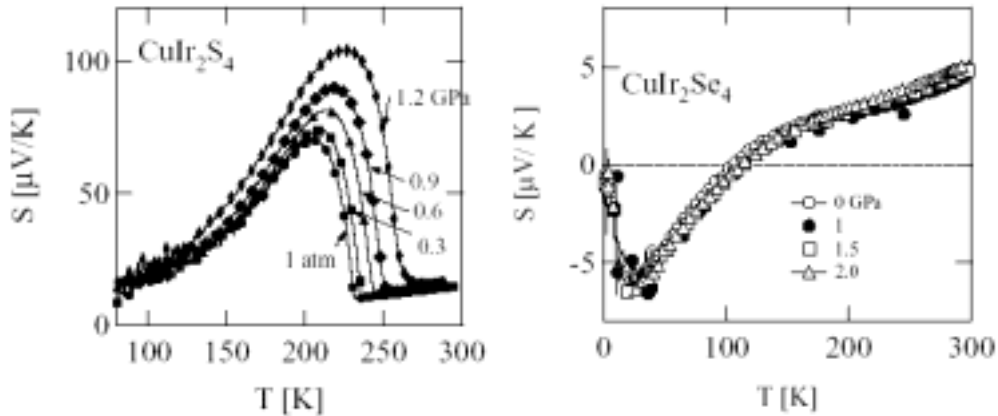


図 1: 各圧力下における CuIr_2S_4 および CuIr_2Se_4 の S の温度依存。

[1] A. T. Burkov, T. Nakama, M. Hedo, K. Shintani, K. Yagasaki, M. Matsumoto and S. Nagata, "Anomalous resistivity and thermopower of the spinel-type compounds CuIr_2S_4 and CuIr_2Se_4 ", Phys. Rev. B 61 (2000) 10049-10056.

¹Present address: Ioffe Institute, St. Petersburg, Russia

Cr、Mn の圧力誘起量子相転移

阪大極限セ 加賀山朋子

我々はこれまでインバー合金などの磁気体積効果を示す物質や重い電子系物質における格子の異常現象を熱膨張あるいは磁歪の測定を通して調べてきた。高圧下ではひずみゲージ法を用いることにより比較的手軽に精度良く測定することができる。こ

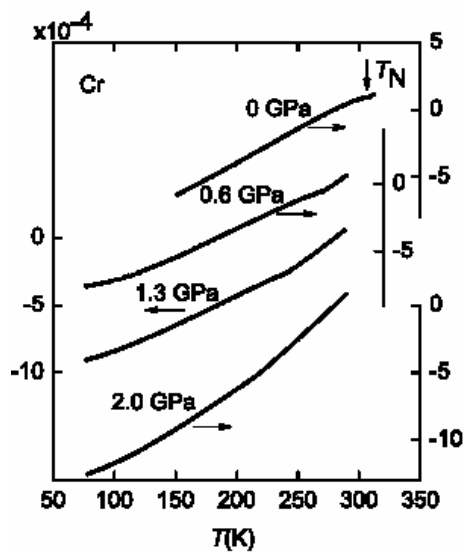


Fig. 2: Linear thermal expansion of Cr at high pressures

こでは単体の磁性金属における高圧力下の磁気体積効果とそれに関連する極低温下の電気抵抗測定による圧力誘起の量子相転移現象の探索について紹介する。

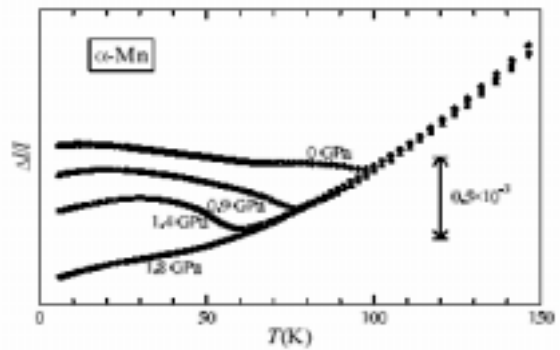


Fig. 1: Thermal expansion of α -Mn at various pressures.

Fig.1 に α -Mn の高圧下における熱膨張を示す。 $\Delta L/L$ は温度降下とともに減少していき、常圧では約 97 K で最小値をとり更に低温では増加していく。この折れ曲がり反強磁性転移に対応しており、低温での増加は降温とともに副格子の磁化が大きくなっていくのを反映した自発磁歪である。圧力の増加によって T_N が降下するとともに自発磁歪も小さくなっていき 2 GPa までに反強磁性は消失するようになる。Fig.2 に示すように Cr においても同様な圧力効果が見られる。

一方、より高圧力下での α -Mn の電気抵抗の温度依存性の測定結果では、 T_N での振る舞いと明らかに異なる新しい異常が観測され、その温度も T_N と同様に圧力下でやはり低下することがわかった。このことは α -Mn の複雑な結晶構造に由来する 4 つの独立なサイトの原子が持っている大きさの異なる磁気モーメントが圧力によって逐次消失していくためであると考えられる。

現在、圧力誘起量子相転移を期待して α -Mn や Cr の磁気秩序相が消失する近傍の圧力において電気抵抗の測定を進めている。 α -Mn ではすでに第二の磁気秩序相が消失すると予想される圧力近傍で電気抵抗の温度依存性に異常が見いだされており、試料の純量化等の手続きを踏むことにより超伝導の観測も十分に期待できると考えられる。

高圧下におけるデラフォサイト型遷移金属酸化物 $\text{CuFeO}_2, \text{CuCrO}_2$ の磁氣的性質

日本大学文理学部 高橋 博樹

デラフォサイト型遷移金属酸化物 CuFeO_2 は、遷移金属元素が 2 次元三角格子層を形成する磁気フラストレーション系物質として知られている。低温では、微妙な磁気相互作用のバランスの変化により反強磁性転移を示す。高圧下の X 線回折実験からは面内方向の格子定数 a が垂直方向の c に対し、約 4 倍の線圧縮率を示すことが報告されており、高圧下では磁気相互作用にも大きな影響を与えることが考えられることから、本研究では高圧下での磁性、および電気抵抗測定を行った。結果から T_{N1}, T_{N2} は 0.7 GPa まで、-1 K/GPa の割合で減少することがわかった。この割合で減少すると約 10 GPa で反強磁性は消失することが予想され、反強磁性消失後の物性に興味を持たれる。電気抵抗の圧力効果からは、2 GPa までわずかに減少することがわかった。また、同じデラフォサイト型構造を持つ反強磁性 CuCrO_2 について、元素の置換効果で電気伝導率が高くなるとともに、帯磁率にスピングラス的な振る舞いが見られることがわかった。

モット絶縁体から強磁性 2 次元金属へ： Ca_2RuO_4 の圧力効果

広大先端 A、Cambridge 大 B、Cologne 大 C、京大理 D、京大国際融合創造セ E、CREST-JST F
中村 文彦 A、妹尾 雄一 A、伊藤 晶和 A、鈴木 孝至 A、Patricia Alireza B、
Stephen Julian B、Markus Braden C、深澤 英人 D、中辻 知 D、前野 悦輝 D,E,F

エキゾチック超伝導や磁性はモット絶縁体近傍の金属相でしばしば発見される。4d 遷移金属ルテニウム酸化物の物性相図には、モット転移、超伝導や磁気秩序など電子相関が強いことに起因する相転移が数多く見られる。なかでも、2D Fermi 金属で $T_c \sim 1.5\text{K}$ のスピン 3 重項超伝導体 Sr_2RuO_4 は最も注目される。一方、Sr を Ca に置換した Ca_2RuO_4 は反強磁性モット絶縁体である。これはイオン半径の小さな Ca の導入が RuO_6 8 面体を歪ませ、バンド幅を小さくするためと考えられる。このため、モット絶縁体から超伝導出現までの電子状態の理解を目的とし、 $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ 系が研究された^[1]。 $x=0$ のモット絶縁体からバンド幅増加につれ、 $x=0.2$ で金属転移し反強磁性相関が強い金属となる。そして、 $x=0.5$ を境に強磁性相関が支配的になるが、それが弱まり $x=2$ で超伝導を基底状態に持つ準 2D Fermi 金属となる。しかし、Sr と Ca の固溶系では両端以外で秩序相が現れていない。一般に、元素置換は乱れも導入するので本来存在すべき秩序相が見つからないことがある。そこで、我々は乱れを導入する可能性の少ない圧力実験を行った^[2]。

Ca_2RuO_4 の圧力相図は $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ の相図とはかなり異なる。 Ca_2RuO_4 はわずか 0.5 GPa の加圧でモット転移を起こし（抵抗率が 4 桁減少）、擬 2 次元金属が出現する（温度依存性が面内方向は低温まで金属的 ($d\rho/dT > 0$) であるが、面間方向は非金属的 ($d\rho/dT < 0$) である）。また、この擬 2 次元金属相の基底状態は強磁性である。しかも、強磁性の残留磁化が約 $0.4\mu_B$ と Ru^{4+} の飽和磁気モーメント $2\mu_B$ に比べ十分小さいため、これが遍歴電子強磁性であることがわかる。2 次元金属での強磁性は、理論から予言されていたが、実験的例としては初めてである。

そこで、その電子状態の詳細を調べるため、希釈冷凍機温度までの電気抵抗・磁化の測定が必要である。しかし、0.5 GPa

でのモット転移は1次転移であるため、絶縁体相と金属相とが2GPa程度までは共存している。そのため、圧力誘起金属相本来の物理量を知るためには2GPa以上の圧力下で絶縁体相を完全に消し去る必要がある。そこで、低温で3~4GPaまで加圧できるMP35N製ピストンシリンダーセルを製作した。2.6GPa、100mKまでの電気抵抗測定の結果、強磁性転移温度以上の抵抗の温度依存性は $T^{4/3}$ に従い、SCR理論で予言された2次元遍歴電子強磁性の場合と一致する。 T_C 以下でのそれは完全な遍歴の場合($\rho \propto T^2$)と局在の場合の($\rho \propto 1-(M(T)/M(0))^2$)の中間に位置する。一方、この測定で用いた試料は残留抵抗が $1.6\mu\Omega\text{cm}$ と量子振動の観測が十分に期待できる非常によい金属であるが100mKまで超伝導は出現しなかった。今後、 Sr_2RuO_4 で行った様³⁾に圧力下での量子振動の測定から行いフェルミ面の圧力変化を調べ、 Sr_2RuO_4 のそれと比較を行う。

さらに、相図からわかるように、強磁性転移温度 T_C は、約5GPaで最大の $T_C \sim 25\text{K}$ を取った後、減少し10-15GPaで消失、量子臨界点が期待される。特に、強磁性と超伝導が共存するか競合するのかが興味深い。

また、この圧力相図は RuO_6 -8面体の3つの動き(絶縁体金属転移はflattening、反強磁性消失はtilting、強磁性出現はrotation)で説明できることが、最近の高圧下中性子・X線回折実験から明らかになった。4d電子系であるRu214での磁性や電子状態を理解するには、スピン軌道相互作用を十分に考慮しなければならない。

[1] S. Nakatsuji *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 2666 (2000);

Phys. Rev. B **62**, 6458 (2000).

[2] F. Nakamura, *et al.*, Phys. Review B **65** (2002)

220402(R).

[3] D. Forsythe, *et al.*, Physical Review Letters **89** (2002)

166402.

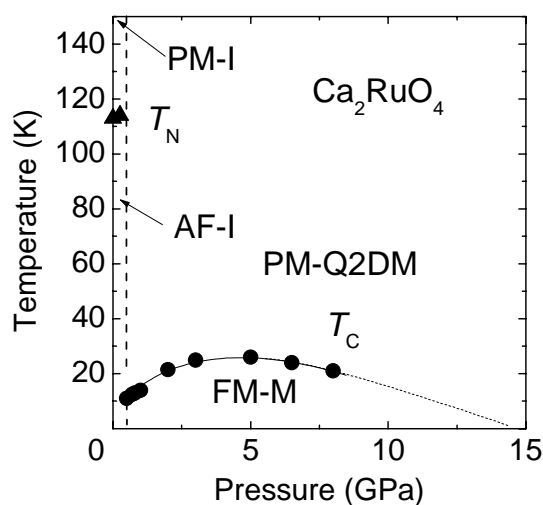


図 Ca_2RuO_4 の圧力相図

ペロブスカイト型鉄酸化物の高圧下メスbauer分光

日大理工 川上 隆輝

1. はじめに

超高圧下でのメスbauer分光測定は古くから遂行されている。特に、ダイヤモンドが γ 線を比較的良好に透過させるため、ダイヤモンド・アンビル・セル(DAC)を用いた、超高圧下メスbauer分光測定が現在まで精力的に報告されている。我々は、ペロブスカイト型鉄酸化物、特に電荷分離($2\text{Fe}^{4+} \rightarrow \text{Fe}^{3+} + \text{Fe}^{5+}$)を起こす CaFeO_3 と $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ について高圧下 ^{57}Fe メスbauer分光を行い、電荷分離と磁気秩序の圧力効果について測定を行った。

2. 実験方法

高圧下メスbauer分光は、DACを使用するため、他の高圧装置と比べて容易に高い圧力を発生させることができる。その一方で、一般のメスbauer分光測定に比べて極端に試料の量が少なくなり測定が困難になる。今回の実験では、比較的ダイヤモンドの先端面の大きいものを用い、さらに試料に ^{57}Fe を50%富化し、 γ 線源を非常に小さい領域($0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$)に集めた高密度線源を用いて実験を行った。試料室となるガスケットにはReを用いて放電加工機で穴をあけ、試料と圧力校正のために粉末ルビーを入れ、圧力媒体にはメタノール、エタノールを4対1に混合したものを用いてダイヤモンドで上下から加圧して封じ込んだ。圧力範囲は常圧から103 GPa、温度範囲は6 Kから400 Kまで測定を行った。さらに、外部磁場を7.8 Tまで印加した高圧下メスbauer分光も行った。

3. 実験結果とまとめ

CaFeO₃は、常圧下の室温では、Fe⁴⁺の singlet 1 成分であるが 290 K 以下で電荷分離を起こし Fe³⁺と Fe⁵⁺の singlet 2 成分になる。さらに温度を低下させると 125 K で sextet 2 成分の反強磁性に磁気秩序を起こす。CaFeO₃の高圧下での振る舞いは、電荷分離は約 17 GPa まで常圧と同じ温度で電荷分離を起こす。19 GPa では、電荷分離を起こさない Fe⁴⁺の成分が現れはじめ、20 GPa まで加圧するとほとんどが電荷分離を起こさない成分で占められる。

外部磁場を印加した高圧下メスbauer分光の実験から電荷分離を起こさない 19 GPa 以上では圧力誘起の反強磁性-強磁性転移が起きていることが明らかになった。(Fig.1) この他に、La_{1/3}Sr_{2/3}FeO₃や SrFeO₃も、高圧下で反強磁性-強磁性転移を起こしていることが明らかになった。

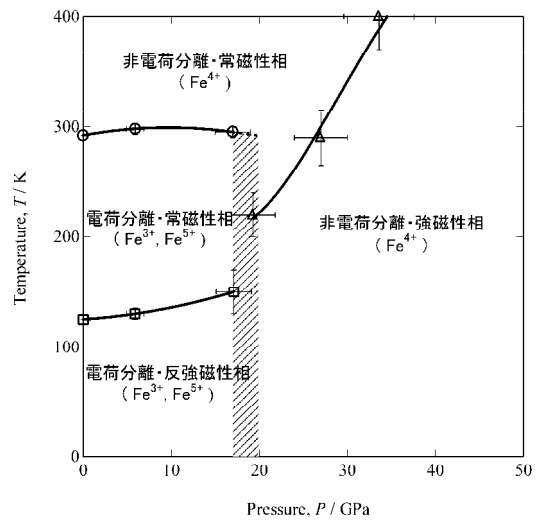


Fig. 1. The *P-T* magnetic phase diagram of CaFeO₃.

Pr247 酸化物の新しい超伝導と圧力効果

新潟大学理学部 山田 裕

我々はこれまで PrBa₂Cu₄O₈ (Pr124) 酸化物の電気伝導現象を研究してきた。その結果 Pr124 酸化物では CuO₂ 面は Pr-4f と O-2p との混成により CuO₂ 面でのキャリアは無くなり、一次元 CuO ダブルチェーンの伝導が顕著に観測でき、その電気伝導現象は金属的であることを明らかにしてきた。しかしながらその挙動は低温でフェルミ液体的であり結晶構造から予想されるような一次元的伝導による量子相転移は観測できなかった。その原因はキャリア数にあると考えたが、Pr124 構造はこれ以上キャリア数を変化させることが出来ず、CuO ダブルチェーンのホールフィリングの研究は出来なかった。Pr₂Ba₄Cu₇O_{15.5} (Pr247) 酸化物は図 1 に示すように Pr124 同様 CuO ダブルチェーンを有しており、

電気抵抗も低温で金属的挙動を示す。Pr247 はシングルチェーンも有しているこ

とから、酸素濃度を変化させることにより、キャリア数を変化させることができ、それに伴う電気伝導現象の変化を調べることは非常に興味深いものがあった。その結果、我々は極最近、Pr247 において酸素還元処理を施すことにより超伝導が出現することを発見した^[1]。これは Pr124 等の研究から CuO₂ 面による超伝導とは異なり一次元 CuO ダブルチェーンによる超伝導である可能性が非常に高い。これらが事実であれば銅系酸化物超伝導体における全く新しいタイプの超伝導の出現となるばかりでなく、一次元伝導機構によ

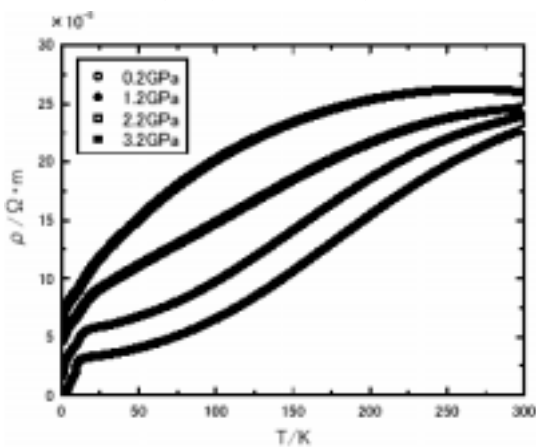


図 2 Ar-anneal を 650°C-4days 施した Pr247 酸化物の電気抵抗の圧力依存性

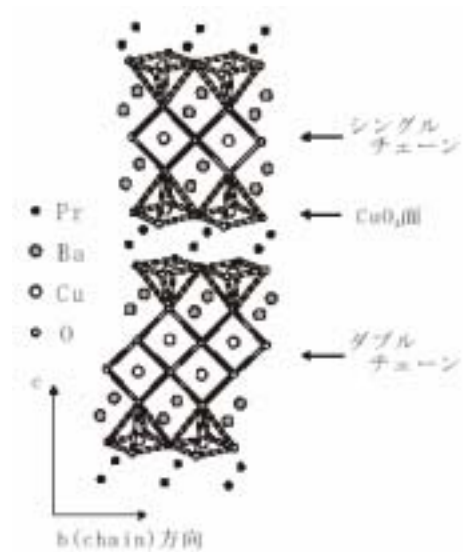


図 1 Pr247 酸化物の結晶構造

る初めての超伝導物質であると考えられる。そこで本研究ではこの超伝導機構を解明するため良質な試料合成を行い超伝導出現の酸素量依存性を調べた。さらにそれら試料について電気抵抗及び帯磁率の圧力効果の実験を行いこの超伝導の機構の解明を行った。図2に Ar 中 650°C で 4days アニールした試料の電気抵抗の圧力依存性を示す。1 気圧では全温度領域で金属的であり $T_c = 12\text{K}$ 程度で超伝導転移が観測できる。加圧に伴い超伝導は消失していき、それに伴い as-sintered の試料で見られるような電気抵抗の極大が観測されるようになった。これらの結果は、超伝導は一次元 CuO ダブルチェーンで起こっており、Balents-Fisher が予言した 2 本鎖梯子の理論でうまく説明できた。

[1] M. Matsukawa, Y. Yamada, A. Matsushita et al. Phys.Rev B to be submitted (cond-mat 0302508)

Pressure-Induced Superconductivity in UIr

Tatsuo C. KOBAYASHI¹, Hiroyuki HIDAKA¹, Teruhiko AKAZAWA², Etsuji YAMAMOTO³,
Yoshinori HAGA³, Rikio SETTAI⁴ and Yoshichika $\bar{\text{O}}$ NUKI^{3,4}

¹ Faculty of Science, Okayama University, Tsushimanaka, Okayama 700-8530, Japan

² Faculty of Maritime Science, Kobe University, Higashi-Nada, Kobe 658-0072, Japan

³ Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

⁴ Graduate School of Science, Osaka University, Toyonaka, Osaka 560-0043, Japan

Pressure-induced superconductivity is found in UIr without the inversion symmetry. The pressure-temperature phase diagram has been investigated by means of the electrical resistivity and magnetization measurements under high pressure. The phase diagram consists of two magnetic phases, the Ising-like ferromagnetic phase (FM1) at low pressures and another magnetic phase (FM2) with the small ferromagnetic component along the $[10 \bar{1}]$ direction at high pressures. The superconductivity is observed in the narrow pressure range near the disappearance of FM2 phase, where the temperature dependence of resistivity follows the non-Fermi liquid form of $T^{1.6}$. From these experimental facts, the superconductivity is considered to be associated with the critical fluctuation with the disappearance of FM2 phase. Since the crystal structures do not have the inversion symmetry guarantee that $|k, \text{up}\rangle$ and $|-k, \text{up}\rangle$ states degenerate, the pairing symmetry is of great interest.

Ref.) T. Akazawa, H. Hidaka, T. Fujiwara, T. C. Kobayashi, E. Yamamoto, Y. Haga, R. Settai and Y. $\bar{\text{O}}$ nuki, J. Phys.: Condens. Matter 16 (2004) L29.

低温高圧 NQR で見た CeIn_3 の圧力誘起磁気量子相転移と超伝導

阪大基礎工、阪大院理^a、原研先端研^b

川崎 慎司、水戸 毅[†]、川崎 祐[‡]、小手 川恒[¶]、鄭 国慶、北岡 良雄

宍戸 寛明^a、荒木 新吾^a、撰待 力生^a、大貫 惇睦^{a, b}

現在の所属 神戸大理[†]、徳島大工[‡]、岡山大理[¶]

我々は、重い電子系反強磁性圧力誘起超伝導体 CeIn_3 ^[1] について、低温高圧下 ¹¹⁵In-NQR による研究を行っている。

重い電子系超伝導は、その発現機構として磁気的な相互作用が有力視されている。なかでも重い電子系圧力誘起超伝導体は、実験的に圧力によって連続的に磁性と超伝導を直接観測することが可能であるため、その超伝導発現機構を理解する上で非常に有用な情報が得られることが期待されている。

しかしながら、圧力誘起超伝導に到達するための低温、高圧という複合極限条件のため、これまでのところこれらの物質で磁性と超伝導の関連を示唆する実験結果は、電気抵抗測定を中心とした一部のものに限られている^[1-3]。

我々は、典型的な重い電子系反強磁性体である CeIn_3 の圧力誘起磁気相転移と超伝導を、微視的な測定手段である NQR で調べることで、重い電子系における磁性と超伝導の関連、また、普遍的な磁性と超伝導の圧力相図を得ることを目標に詳細な実験を行ってきた。図にこれまでの測定から得られた CeIn_3 の圧力相図を示す。

我々は低温高圧 NQR 測定から、 CeIn_3 における圧力誘起超伝導が、いわゆる量子臨界点ではなく、相分離を伴う磁性-非磁性一次相転移近傍で発現することを見出した。

今回は、これまでに行ってきた NQR 測定から得られた、 CeIn_3 における反強磁性-超伝導転移近傍での新たな知見を報告する。

今回測定に用いた試料は、同じ試料を用いた高圧下電気抵抗測定によって、零抵抗を示すことが確認されている^[2]。

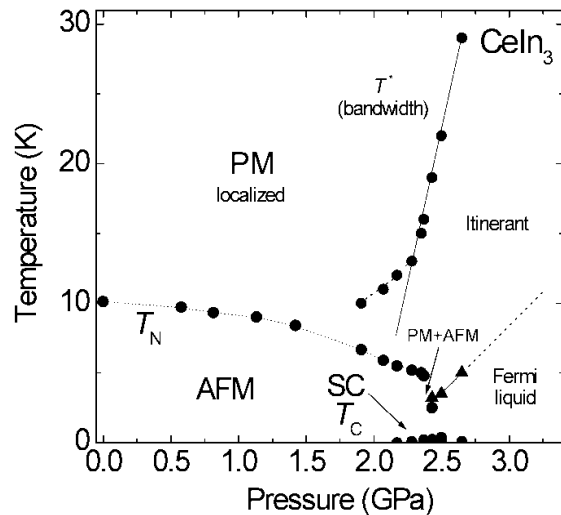


図. NQR で決めた CeIn_3 の圧力相図

[1] N. D. Mathur *et al.*, Nature **394**, 39 (1998).

[2] T. Muramatsu, thesis, Osaka Univ. (2001).

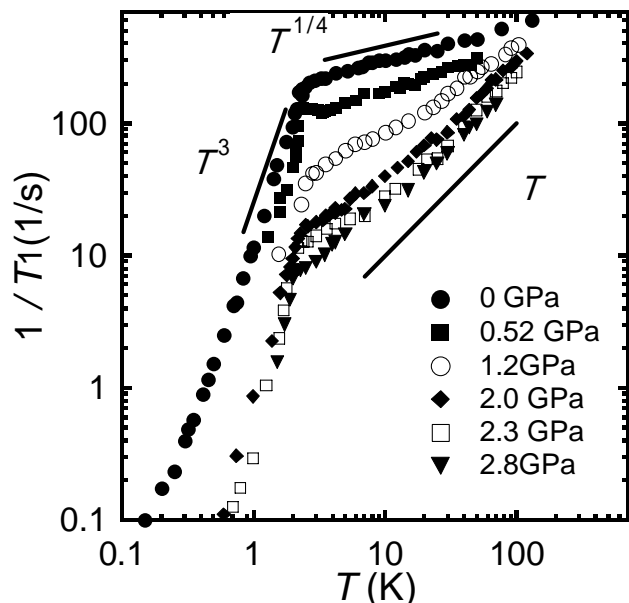
[3] G. Knebel *et al.*, PRB **65**, 024425 (2001).

CeCoIn_5 の圧力での In - NQR

千葉大 理学部 小堀 洋

重い電子系物質のうち最も高い超伝導転移温度 ($T_{sc} = 2.3$ K) を持つ CeCoIn_5 は、電気抵抗、比熱の温度変化から常圧において量子臨界点近傍に位置し、低温で非フェルミ液体状態にあると考えられている。また、超伝導転移温度以下のスピン-格子緩和率 ($1/T_1$) は低温で T^3 に比例し、この物質が異方的な非 s 波超伝導体であることを示唆している^[1,2]。

我々は、圧力をパラメータとして制御しつつ、この系で NQR 測定を行っており、得られた結果について報告する。緩和率 ($1/T_1$) の各圧力下の温度変化を図に示した。常圧では、 $1/T_1$ の温度変化は、 $1/T_1 \propto T^4$ に近い温度変化を広い温度範囲で示すが、圧力の増加とともに、温度変化が大きくなっていく。特徴的なのは、高温高圧の領域で $1/T_1 \propto T$ の変化が見られる事であり、この領域は圧力の増加と低温に拡がり、3.0 GPa 付近では T_{sc} 以上のほぼ全温度域で $T_1 \cdot T = \text{一定}$ が実現している。講演では、 T_1 の温度変化から見積もった低温での超伝導ギャップの圧力変化についても報告する。



[1] Y. Kohori *et al.*: Phys. Rev. B **64** 134526 (2001).

[2] V. A. Sidorov *et al.*: Phys. Rev. Lett. **89** 57004 (2002).

圧力下極低温磁化測定の実況

東大物性研、阪大院理^A

田山 孝、生井由紀恵、榊原 俊郎、辺土 正人、上床 美也

宍戸 寛明^A、摂待 力生^A、大貫 惇睦^A

われわれは独自に開発したキャパシタンス式ファラデー法による DC 磁化測定装置を用いて、最低温 50mK までの精密な DC 磁化測定を行っている。現在のところ、この方法が極低温、高磁場で用いることができる唯一の方法であるとわれわれは考えている。一方、圧力下での磁化測定は、試料の代わりに圧力セルを載せれば可能であったが、実際には圧力セルの大きさが問題となり実験はできなかった。しかし最近、圧力セルの小型化が進み、圧力下での極低温磁化測定も可能性がでてきた。われわれは、上床らによって開発された小型のピストン・シリンダー型圧力セルを用いて、昨年からの圧力下極低温 DC 磁化測定装置の開発を行っている。今回はその装置の性能および測定例として CeCoIn₅ の結果について紹介する。

装置の性能は現在のところ、最低温度 60mK、最大磁場 15T、最大圧力 1.5GPa、最高感度 10⁻⁴emu である。感度は圧力セルを載せなかった時と比べると、振動による影響が大きくなり 1 桁以上悪くなっている。試料の磁化を見積もるときに気をつけなければならないのは、バックグラウンドの差し引きがある。圧力セルは主に CuBe とジルコニアからなっているため磁性不純物を多く含んでいる。そのため磁場、温度依存性が非常に強い。さらに 0.2K 以下の極低温、高磁場領域においては核スピン（主に銅）の磁気モーメントの寄与がかなり大きくなる。そのため、試料だけを取り除いた同一条件のデータをとることが重要であることがわかった。

CeCoIn₅ は $T_c=2.3\text{K}$ で超伝導転移を示す重い電子系超伝導体である。この物質の重要な問題点の一つに、 $0.3T_c$ 以下の温度で現れる上部臨界磁場 H_{c2} での 1 次相転移がある [1]。この H_{c2} での 1 次転移の機構は、現在 Pauli limit による可能性が考えられているが、自明ではない。図 1 に CeCoIn₅ の 0.2K での磁化過程の圧力変化を示す。0.9GPa の圧力をかけると H_{c2} における磁化の飛びの大きさはほとんど変化しないが、 H_{c2} の値は 4.2T と減少した。また磁化過程から見積もられる凝縮エネルギーは 2 割程度減少した。もし H_{c2} が Pauli limit によって決まっているとすると、凝縮エネルギーの変化の割合を計算することができ、実験結果とよく一致する。この結果は H_{c2} での 1 次相転移が Pauli limit によるものであることを強く示唆する。

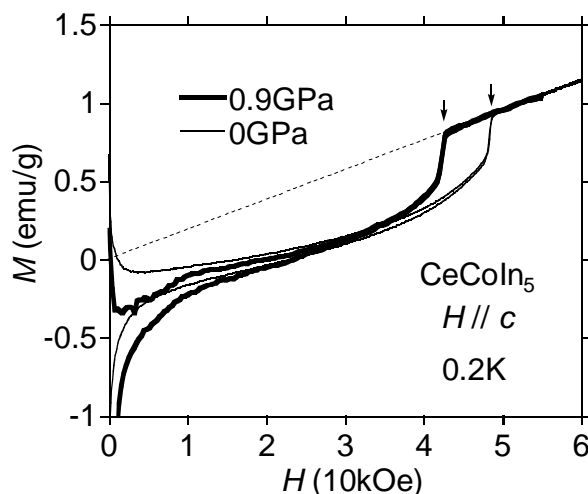


図1 CeCoIn₅の0.2Kでの磁化過程における圧力変化

[1] T. Tayama *et al.*: Phys. Rev. B **65** (2002) 180504.

Yb_{1-x}Y_xInCu₄における圧力誘起の価数転移消失と強磁性転移

富山大学理学部物理学科 光田 暁弘

立方晶 AuBe₃型構造をもつ YbInCu₄ は $T_v=42\text{K}$ で一次の価数転移を示す。 $T>T_v$ で Yb は 3 価状態 (4f 電子数:13 個) にあり、これに相当する局在磁気モーメントがキュリーワイス常磁性を示している。価数転移において、Yb は 4f 電子を 0.1 個/Yb だけとりこみ、 $T<T_v$ で 2.9 価 (4f 電子数:13.1 個) となり、遍歴的なパウリ常磁性に移行する。ここで体積は低温相 ($T<T_v$) の方が大きいため、圧力によって高温相 ($T>T_v$) が安定化する。これまで我々は、Yb を Y で 20%置換することによって T_v を低くした試料 ($T_v=15\text{K}$) について圧力を印加し、価数転移消失に伴って弱い強磁性 (自発磁化:0.05

μ_B/Yb 、キュリー点 $T_C:1.7\text{K}$) が出現することを報告してきた^[1]。この新しい強磁性基底状態は、局所的な高温相を安定化した結果出現したにもかかわらず、その自発磁化は3価のYbの磁気モーメント $4\mu_B/\text{Yb}$ の100分の1程度しかなく興味深い。最近、神戸大の水戸らが YbInCu_4 について高圧下の電気抵抗、交流帯磁率、 $^{63}\text{Cu-NQR}$ の結果を報告をしている^[2]。圧力で価数転移が消失した状態において、 $T=2.4\text{K}$ に強磁性的な磁気転移が出現すること、高温相の $1/T_1$ が 2.4K 付近まで温度一定となり局在性を保つことから、小さな自発磁化の原因はキャントした反強磁性ではないかと指摘している。

今回我々は、Y置換量が圧力誘起強磁性に及ぼす影響を調べることを目的として、Y10%置換の試料 ($T_C=28\text{K}$) について、SQUID 磁束計 (Quantum Design MPMS) を用いて高圧下で磁化測定を行った。図1に磁化率の温度依存性を示す。高温でキュリーワイス則に従っていた磁化率は、価数転移に伴い急激に減少し温度依存のないパウリ常磁性へ移行する。価数転移は圧力とともに低温側にシフトし、 1.5GPa でほぼ消失する。図2にこの圧力下の磁化曲線を示す。測定最低温度 1.8K においてヒステリシスループが観測され、強磁性が出現していることがわかる。この磁化曲線をアロツプロットしてキュリー点 T_C を見積もったところ 2.2K となり、Y20%の試料に比べ T_C が高くなっていることが明らかになった。水戸らの結果と合わせ、Y濃度減少に伴い T_C が高くなっていることが考えられる。

本研究は以下の諸氏との共同研究である。二本松浩文、池生剛、桑井智彦、石川義和 (富山大理)、山田将貴、O.Kolomyiets、後藤恒昭 (東大物性研)、太田寛人、張維、吉村一良 (京大理)。

[1] A. Mitsuda et al., PRL 88 (2002) 137204. [2] T. Mito et al., PRB 67 (2003) 224409.

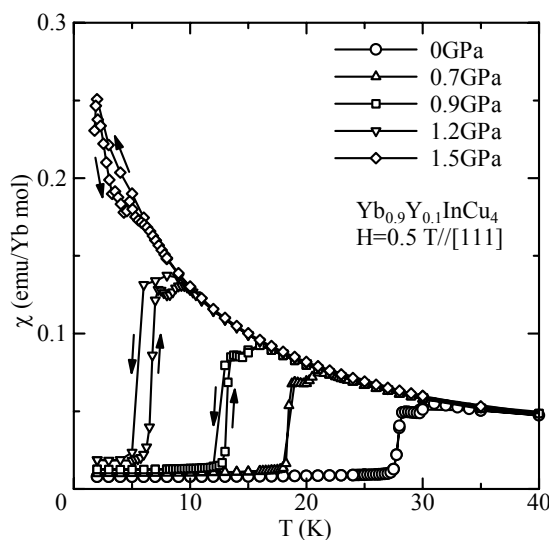


図1: 圧力下における帯磁率の温度依存性

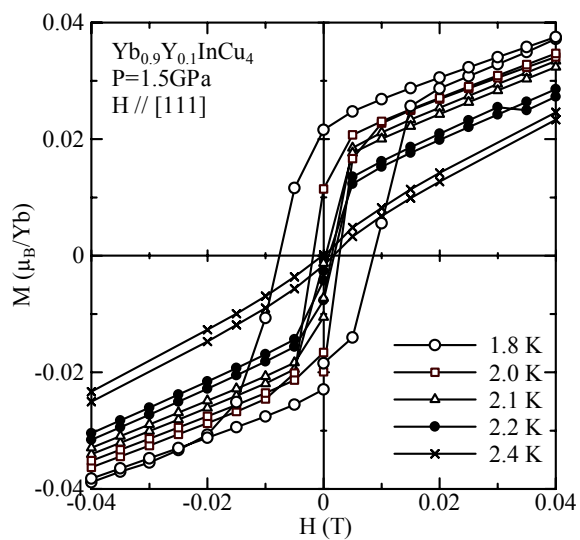


図2: 1.5GPa 及び $1.8\sim 2.4\text{K}$ の磁化曲線(低磁場部分)

YbInCu₄ の高圧下における価数揺動と磁気秩序の競合

神戸大理、Los Alamos National Laboratory †
水戸 毅、小山 岳秀、和田 信二、J. L. Sarrao †

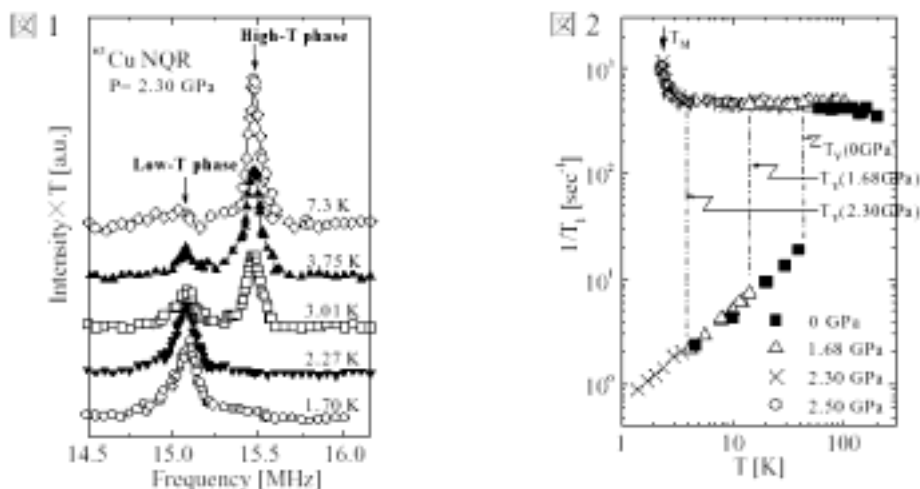
YbInCu_4 は常圧下約 40K において、 Yb^{3+} の状態で局在スピンを有するとみなされる磁気的な高温相から、 $\text{Yb}^{2.9+}$ 状態の非磁気的な価数揺動状態の低温相へと1次の価数転移を起こす。この価数転移温度は圧力と共に減少することが知られている (例えば^[1])。我々は最近、この価数転移が抑制された約 $P=2.4\text{GPa}$ 以上の高圧下では、 YbInCu_4 の基底状態が強磁性秩序状態であることを示した^(^[2])。本講演では、基底状態が圧力によって価数揺動から強磁性秩序状態へ移り変わる様子について、NMR 測定によって得られた情報を報告する。

図1はP=2.3GPaにおけるNQR（核四重極共鳴、ゼロ磁場下）信号の温度変化である。約15.5MHzと15.1MHzに観測される信号はそれぞれ高温相と低温相に起因する。P=2.3GPaでは約7K以下において両相が共存し、臨界圧力に近い状態にあると考えられるが、両相の間には中間相が観測されず、臨界圧力まで価数転移は1次転移的であることを示唆している。2.5K以下において高温相の信号が消失しているのは、長距離磁気秩序の出現によりCu核の位置に局所的な内部磁場が生じたためである。

図2は様々な圧力下での核スピン-格子緩和率 $1/T_1$ の温度依存性である。P=2.3GPa以上では長距離磁気秩序に伴う $1/T_1$ の臨界発散が観測された。 T_1 の圧力依存性は小さく、温度に対してほぼ一定であることから、この物質の圧力誘起磁気秩序は4f電子がよく局在した状態において生じているものと理解される。

[1] Uchida *et al.*, Physica B **312-313**, 339 (2002)

[2] Mito *et al.*, Phys. Rev. B **67**, 224409 (2003)



Ce_xLa_{1-x}B₆ の量子相転移と非フェルミ液体

東北大学極低温科学センター、東北大学理学研究科 A

中村慎太郎、山本 悠史、遠藤 元気、青木 晴善、木村 憲彰、野島 勉、國井 暁 A

Ce_xLa_{1-x}B₆ は立方晶に属する CaB₆ 型の結晶構造を持つ 1 価金属であり、Ce 濃度に寄らず近藤効果を示す。ホウ素の格子の対心に位置する Ce³⁺(4f¹)の 4f 電子は局在性が高く、基底結晶場状態は Γ_8 である。第一励起状態である Γ_7 は 540K 上に位置しており、低温物性を考える限りは無視できる。この物質の特徴は Γ_8 四重項が独立な磁気双極子の自由度 2 つと電気四重極子の自由度 2 つを持っていることである。このため Ce_xLa_{1-x}B₆ は磁気双極子相互作用、電気四重極子相互作用、近藤効果が共存、競合し、特異な磁気相図を示す。^[1]Ce_xLa_{1-x}B₆ (0.6<x<0.8)では IV 相という磁気相が低温低磁場で出現するが、中性子散乱では磁気双極子秩序が見えない。^[2] また、IV 相では uSR 測定によつては静的な内部磁場が観測されなかった。^[3] 一方で弾性定数には I 相（常磁性相）-IV 相転移点近傍に非常に大きな異常があり^[4]、格子も IV 相では自発的に歪んでいる。^[5] これらのことは IV 相が電気四重極秩序状態であることを示唆するが、RKKY 相互作用だけで電気四重極秩序が発生するとは考えにくい。また、Ce_{0.5}La_{0.5}B₆ では低温、低磁場で長距離秩序が発生せず、磁場を印可することによって量子相転移を起し反強磁性相に転移する。このことも Ce_xLa_{1-x}B₆ の基底状態が RKKY 相互作用だけで決まっているのではないことを強く示唆する。我々は電気抵抗の測定から電気抵抗の T^2 の係数 A が IV 相では非常に大きく伝導電子間に強い電子相関が働いていることを確かめた。また、Ce_{0.5}La_{0.5}B₆ では低温低磁場では電気抵抗の温度変化は T^2 の振る舞いからそれることを見出した。このことは Ce_{0.5}La_{0.5}B₆ で非フェルミ液体が実現していることを示すと考えられる。

- [1] S. Nakamura et al., JPSJ **71** (2002) 112.
- [2] K. Iwasa et al., Physica B **329-333** (2003) 582.
- [3] H. Takagiwa et al., JPSJ **71** (2002) 31.
- [4] Y. Nemoto et al., Physica B **312-313** (2002) 191.
- [5] M. Akatsu et al., JPSJ **72** (2003) 205.

TmTe の圧力下金属相における非弾性中性子散乱

東北大学大学院理学研究科 松村 武

< 研究背景 >

NaCl 型結晶構造をもつ TmTe は、常圧では 2 価の磁性半導体であり、反強磁性転移温度はわずか 0.5K である。圧力をかけると空の Tm-5d 伝導バンドが下がってきて、約 2GPa で Tm-4 f^{13} 準位と重なり、2 価 (4 f^{13}) と 3 価 (4 f^{12}) の価数揺動状態に突入すると同時に、絶縁体から金属へと転移する。注目すべき点は、2GPa で金属に転移した直後、突然、 $T_c=15K$ の強磁性が現れることである (図 1)。一方、TmTe より格子定数の小さい TmSe は、常圧ですでに価数揺動状態にあり、 $T_N=3.5K$ の反強磁性体であるが、TmTe でこれと似た状況は 6 GPa まで加圧すると出現する。TmSe の価数揺動状態は、いずれも magnetic な 4f 配置間をゆらぐことで、いわゆる Kondo singlet とは質的に異なる基底状態を形成し、これに伴い、SmB₆ などと似た、極めて特徴的な磁気励起スペクトルが低温で出現する。

常圧での TmTe はかなり安定した 2 価の状態にあり、磁気励起スペクトルは低エネルギー部分に凝縮された、結晶場のなもが見えるにすぎない。しかし、圧力下で金属に転移し、価数揺動状態に入れば、TmSe と同じような異常な励起スペクトルが観測される可能性がある。絶縁体-金属転移前後での磁気励起スペクトルを比較することで、価数揺動出現の機構や、強磁性出現の機構についての重要な情報が得られると期待できる。

< 実験結果 >

圧力下での非弾性中性子散乱実験は、小野寺らによって開発された McWhan 型圧力セルを用いて、JRR-3M の PONTA で行った。圧力セルいっぱい直径 5mm 弱、高さ 8mm のイズの試料を入れ。金属転移直後の圧力をねらって加圧したが、今回の圧力では、低温で強磁性は観測されなかった。したがって、図 2 の結果は金属転移直前、強磁性出現直前の状態でのものである。

それでも常圧での励起スペクトルは 2meV 以下に凝縮されていたものが、2.16GPa では 10meV 付近まで裾を引いた構造になっており、4f 電子が不安定化していることがわかる。一方、強磁性や反強磁性の逆格子点でも特に目立った変化はなく、波数依存性は全く見られなかった。

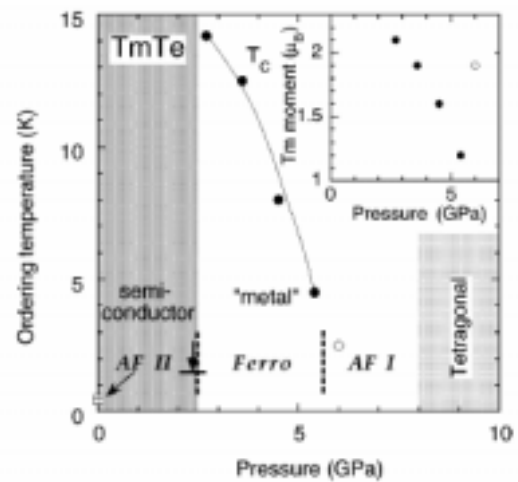


図 1: TmTe の温度-圧力相図。

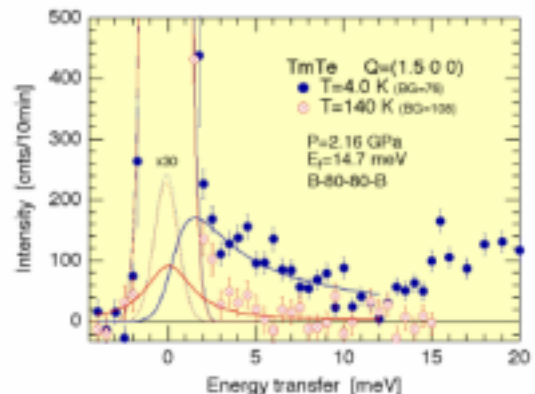


図 2: 2.16 GPa における TmTe の非弾性中性子散乱スペクトル。この圧力ではまだ強磁性出現には至らなかった。

圧力誘起量子臨界点近傍における電気抵抗と熱膨張異常

九大院理 大橋 政司

強相関係物質の電子物性はいくつかの競合した相互作用によって支配されており、それらの微妙なバランスのもとで決定されている。例えば重い電子系物質の場合は相互作用として近藤効果、RKKY相互作用、4重極相互作用や結晶電場などがあり、これらに対する圧（外）力効果の大きさが異なるために、高圧下で混合原子価状態、非フェルミ液体状態、超伝導などと興味ある電子相が出現することになる。これらの相の多くは低温で実現されるものが多く、ここでは熱揺らぎがなく、量子揺らぎが物性を支配していることになり、いわゆる量子相転移（QPT）あるいは量子臨界点（QCP）との関連で最近活発な研究がなされている。QPTは温度では誘起されず、外部変数として圧力、濃度や磁場などを加えることにより実現される。ここでは3つの系を例に挙げ、圧力や磁場を加えたときに電気抵抗や熱膨張等の電子物性や熱物性に見られる異常について紹介する。

1) CeRh₂Si₂

CeRh₂Si₂は正方晶のThCr₂Si₂型結晶構造をもつ反強磁性体（ $T_{N1} \sim 35$ K, $T_{N2} \sim 24$ K, $P=0$ ）であるが、この磁気秩序層は圧力により、それぞれ $P_{C1} \sim 1.0$ GPa, $P_{C2} \sim 0.6$ GPa で消失することが知られている。我々はこの系において臨界圧力 P_C 近傍の電子状態を調べるため、単結晶 CeRh₂Si₂ の高圧下の電気抵抗率を測定した。

電気抵抗率は広い圧力領域において、低温で $\rho \propto T^2$ 依存性を見せた。係数 $A(P)$ は P_{C1} 近傍でピークをもった。これは量子臨界点 P_{C1} 近傍での電子状態の異常を反映していると思われる。また熱膨張係数を圧力に対してプロットすると、 $\alpha(P)$ は広い温度領域において P_{C1} 付近で異常を示す。すなわち 60 K ($>T_N$) の常磁性相においても P_{C1} 付近に異常が見られている。このことは $T=0$ K, P_{C1} における量子ゆらぎが有限温度領域においても近接効果として残っていることを示唆する。

2) CeAl₂

CeAl₂ は $T_N=3.8$ K の反強磁性体で、 T_N は加圧とともに減少していくことなどが知られている。本研究では高圧下で X線回折と電気抵抗測定を行い、 T_N が消える付近の圧力における電子物性を詳細に調べた。

$\rho(T)$ 曲線は 2 GPa 以下では磁気秩序に伴う異常を示すが、3 GPa 以上では低温で T^2 に比例する、フェルミ液体特有の温度依存性が現れる。 T^2 の係数の圧力変化をはじめとする実験結果から 2~3 GPa で電子状態のクロスオーバーがあると思われる。

3) HoNi₂B₂C

HoNi₂B₂C は $T_{SC}=8.5$ K, $T_N=5$ K の磁性超伝導体として知られる。伝導は Ni₂B₂ 面上の電子が担い、また Ho の磁性を反映して複雑な磁気相図があらわれる。しかしこの磁性と伝導は独立ではなく、互いに影響をおよぼしあっていると考えられる。そこでこの系について、メタ磁性転移にともなう電気伝導の異常を詳細に調べることにより、磁場誘起の量子相転移の有無を探っている。

ハイブリッド型ピストンシリンダー高圧容器の開発

東大物性研^A、埼玉大^B、NIMS^C

辺土 正人^A、栗田 伸之^A、上床 美也^A、

小坂 昌史^B、内田安陽夢生^B、松本 武彦^C

大きな試料空間が得られるため精度の高い高圧測定を可能にし、取り扱いが比較的簡便な圧力容器としてピストンシリンダー型容器が広く用いられている。またこの高圧容器は、これまでに色々な物理量を測定する技法が開発され、低温・強磁場を組み合わせた多重極限環境ともよく馴染む。しかし発生圧力は 2GPa 程度にとどまり、そこが唯一の欠点となっている。我々は、シリンダーとして非磁性高強度材 NiCrAl 合金と CuBe 合金の 2 層構造（ハイブリッド型）にすること

で 4GPa の高圧をピストンシリンダー型圧力容器で発生させることに成功したのでそれを報告する。

図 1 に開発した高圧容器の模式図を示す。シリンダーの外層に CuBe 合金を、内層に NiCrAl 合金を用いた。圧力試験として、Te の室温での電気抵抗の圧力依存を測定したところ、Te の構造相転移 ($P=4.04\text{GPa}$) に伴う電気抵抗の急激な減少を確認にした (図 2)。このことは、容器内に 4GPa 以上の高圧を発生させたことになる。しかしながら、この圧力を発生させるためにはピストン材の WC が強度限界を迎えており、ほとんどの場合、前述の Te の転移を観測する前にピストンが破砕してしまう。また 3GPa を超えたあたりから、圧力の発生効率が著しく悪くなる。その原因として、ピストンや試料セル、シールリングの変形による摩擦等の増加が原因によると思われる。色々な条件での高圧発生試験の結果から、焼結ダイヤモンドのピストンと変形を考慮してエッジを落とした CuBe 製のシールリングを用い、試料セルの両側をプラグでシールする構造に変え、圧力発生部を短くすることで、効率よく 4GPa 以上の圧力を発生することができるようになった。

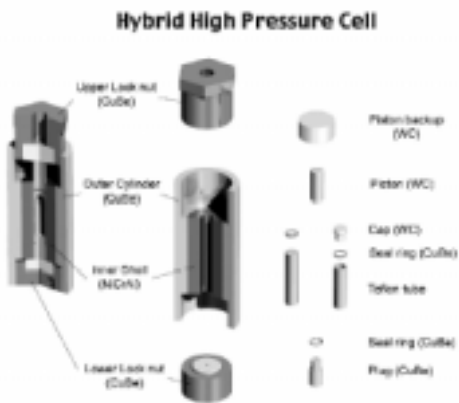


図 1 : 高圧容器の模式図

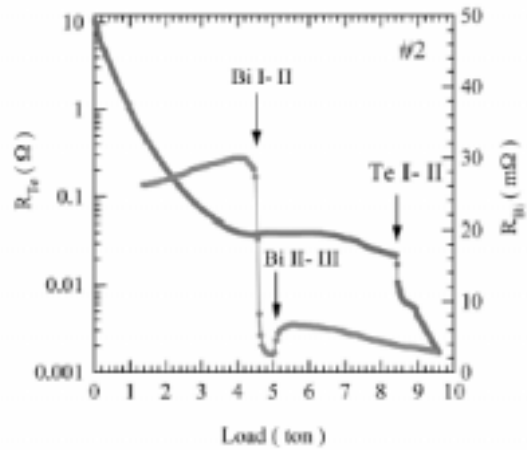


図 2 : Bi と Te の電気抵抗の圧力依存

物性研究所短期研究会

LEEM・PEEM を用いた表面研究の新しい展開

2004年4月26日(月) 27日(火)

東京大学物性研究所柏キャンパス

大阪電気通信大学 越川 孝範

低エネルギー電子顕微鏡 (LEEM) と光電子顕微鏡 (PEEM) は動的観察が可能でかつ種々の情報 (顕微鏡像、回折パターン、電子状態、スピンの情報等) を得ることが出来る新しい表面顕微鏡として注目を集めている。我が国でも最近急速にこの新しい手法の開発とそれを用いた研究が盛んになりつつある。そこで、今後の本分野の更なる発展を期すために物性研で短期研究会を開催することになった。研究会は2004年4月26、27日の2日間にわたって開催され、84名の出席があった。この出席者数は本分野の国際会議の出席者数よりも多い人数であり、大変盛況であった。また研究発表に対して多くの質問が出され、活発な研究会になった。また、本研究会の中で「VUV・SX 高輝度光源への期待」というパネルディスカッションが開催された。新しいVUV・SX 高輝度光源への大きな期待もあり、多くの質問がでて、大変熱気を感じさせるパネルディスカッションになった。

以下に各セッションにおける発表内容についてその概要を記す。

このシンポジウムが国内では初めての LEEM・PEEM の本格的な研究会であるため、初日の最初のセッションの初めに「講義」として LEEM・PEEM の原理の紹介と最近の LEEM の成果が報告された。その後、2つの一般講演が行われ、最新の応用例が示された。

最初に、大阪電通大の越川孝範教授が「LEEM の原理と最近の展開」という「講義」を行った。日本では PEEM の研究者が多くなって来たが LEEM の経験者は少ない。しかし、LEEM は PEEM よりも明るく、かつ相補的な多くの情報が得られる有力な手法である。講演では LEEM の像形成の原理から最近の解析例までが易しく紹介された。LEEM では、低エネルギー (数~数十 eV) 電子を表面に入射させ、固体表面と相互作用した反射電子を電子レンズ系で結像させ、表面の実時間動的観測を行うことができる。像形成の原理は、「回折コントラスト」と「干渉コントラスト」に分けられ、干渉コントラストの中には「幾何学的位相コントラスト」と「量子サイズコントラスト」があり、ステップや薄膜の積層数がわかる。LEED パターンが得られるので、 $0.3\mu\text{m}$ 以下の領域の構造解析が可能である。スピン電子線を用いると表面の磁区構造に関する知見が得られる。紫外線や X 線を入射すると仕事関数の違いによるコントラストや結合状態を反映したコントラストなども得られる。これらについて豊富な実例をもとに紹介された。

次に、NTT 物性基礎研の日比野浩樹氏、渡辺義夫氏が「Si 酸化膜脱離のリアルタイム LEEM 観察」について講演した。ウェットケミカル処理および熱酸化処理により Si(001)および Si(111)表面上に形成した酸化膜の脱離過程を LEEM でリアルタイム観察した結果が報告された。LEEM 像では、加熱中に暗いスポットが拡大し、酸化膜がボイド形成とボイド密度の増加を伴って脱離する様子が明瞭に観察された。また、ボイドの内部には平坦な表面が形成されること、ボイド形成は基板方位によらないこと、酸化膜厚の増加に伴い、脱離温度が上昇し、ボイド密度が低下すること、などが示された。また、酸化膜の上に蒸着された Co や Si は酸化膜の脱離温度を低減することが示された。

次に、大阪電通大の安江常夫氏他が「Cu,Pb/W(110)の LEEM、LEED、PEEM による動的観察と構造解析」について講演した。Cu/W(110)においては、基板温度が200度程度するとき、最初に第2層までの層状成長が起こり、その後、複数の層が同時に形成される成長様式をとる。このときに得られた LEEM 像には、形成された層数に応じたコントラストが観察された。これは量子サイズコントラストとして解析でき、それぞれの場所での層数が求められた。一方、同じ場所の PEEM 像にも同様の層数に応じたコントラストが観察された。通常の PEEM 像のコントラストは仕事関数の差異によって生じると考えられているが、この観察結果はそれでは説明できず、新しい問題を提起している。また、極最近の Pb/W(110)

の結果についても報告された。

次のセッションでは、まず最初に奈良先端大の大門寛教授による依頼講演があった。円偏光 X 線を試料に照射し、放出される光電子の放出角度分布を大門教授らが開発した「二次元表示型球面鏡分析器」で測定すると、前方散乱ピークは円偏光の回転の向きに回転することが見出された。この様子はちょうど左右の目による立体視によく似た現象であるため、これを利用することにより、観察対象である試料の原子配列の立体写真を得ることができる。X 線照射による光電子を利用し、エネルギー分析を行うことができるため、試料中の特定の元素、さらにはその中でも特定の電子状態の原子配列だけを選択的に立体表示することが可能である。これに関していくつかの観察例が示された。また、高エネルギーの光電子の取り込み角を、従来の 6 倍程度まで上げた新しい対物レンズの設計についても報告があり、立体原子顕微鏡の機能を有する光電子顕微鏡の開発の現状についても報告があった。

次に、名城大学の村田英一氏から LEEM、PEEM、FEEM を用いたマルチエミッターの動作状態のその場観察に関する発表があった。マルチエミッターは現在ディスプレイなどへの応用の観点から盛んに研究がされているが、動作状態の個々のエミッターの様子を観察することは困難であった。村田氏らのグループでは、LEEM、PEEM と FEEM を組み合わせることにより、動作状態の個々のエミッターの電子放出特性のその場観察に成功している。発表では、引き出し電圧とともに電子放出が起こりはじめる様子や、個々のエミッターの安定度などの動画が示され、関心を集めていた。

HiSOR の小嗣真人氏からは、Gibeon 鉄隕石の局所 XANES および EXAFS 測定の結果について発表があった。SPring-8 の BL39XU に設置された PEEM SPECTOR を用いて、Gibeon 鉄隕石の観察が行われ、 α 相と γ 相を分離して観察することに成功している。またそれぞれの領域からの K 吸収スペクトルが示され、組成の違いによるスペクトルの違いが示された。さらに、それぞれの相からの EXAFS スペクトルが示され、今後それぞれの相での原子配列の違いなどの検討の可能性が示された。

27 日午前前半のセッションは、東大物性研木下氏の講義「XMCD、XMLD を利用した磁区構造観察と最近の展開」で始まった。放射光のエネルギー可変性元素選択性および X 線円（線）二色性を測定出来ることは、放射光を用いて光電子顕微鏡観察を行う上での大きな利点である。講義では、X 線円（線）二色性の原理から最近の光電子顕微鏡を用いた磁区構造観察の現状までを、多くの研究例を示しながら分かりやすく解説した。続いて、東大の谷内氏が光電子顕微鏡による磁区構造観察の研究例として、vortex カイラリティ（渦の回転方向）制御可能なメゾスコピック磁性体を作製し、実際にカイラリティ制御出来ていることが光電子顕微鏡を用いた観察により示されたという発表を行った。次に、光電子顕微鏡を用いたナノマテリアルの顕微分光という観点から、NTT の鈴木氏により、Elettra の SPELEEM を用いて架橋単層ナノチューブの観察を行ったという報告があった。この分野での研究の進展はめざましく、放射光と光電子顕微鏡の結びつきは今後一層強くなると思われる。

後半のセッションでは、SPring-8 に設置された 2 台の PEEM (PEEMSPECTOR, SPELEEM) に関して、SPring-8 側からの発表 3 件とユーザーから 1 件があった。早ければ、この秋からのユーザー解放に向けての SPring-8 側の取り組み、立ち上げ実験で実施した実験結果の紹介という内容になっている。

まず、SPring-8 側から 2 台設置した PEEM 装置について、設置されたビームラインの特徴、すなわち放射光源の特徴を含め、それぞれの装置がもつ機能を紹介する発表があった。この 2 台の PEEM 装置に関して、はじめて耳にする聴講者にとって有益であり、SPring-8 側としては、どのような分野を想定しているか、あるいはどのような使い方を期待しているかを知ってもらい良い機会となったと思われる。また、この発表により、以後 3 件の発表では主に実験結果の紹介に絞った内容となり、全体的に内容の濃い発表となった。PEEMSPECTOR に関する発表では、多層膜構造の垂直磁化膜の磁区構造を円偏光放射光源で観察した結果などが報告された。続く 2 件の発表では、SPELEEM の立ち上げ実験の結果で、多層膜構造のテストサンプルの観察結果、反強磁性体 NiO の Ni の L 吸収端における磁気二色性コントラスト、Si(111) 表面上の In および Co 薄膜の観察結果などの報告であった。それぞれの装置において、HX による蛍光、真空度に関係した試料表面清浄化など問題が残るものの順調に立ち上がっていると印象を得た。

最後のセッションでは、まず東京理科大学の二瓶教授による特別講演があった。同教授をリーダーとする未来開拓事業により「光電子スペクトロホログラフィーによる原子レベルでの表面・界面 3 次元構造評価装置の開発」が平成 10 年度

から 14 年度にかけて行われた。同教授は光電子電子回折スペクトロスコピーの分野のパイオニアの一人であり、本手法が仮定なしに構造解析ができるメリットや初期の時代の成果からプロジェクトによる最新の成果がここで報告された。新しく開発された強力 X 線源により第 2 世代の放射光施設の光源と同等の光源を開発した件、また新しく開発したエネルギー分析器により、光電子のエネルギー分布の高分解能測定が可能になると同時に高分解能の角度分布を得ることも成功した詳細が報告された。これらは本プロジェクトの装置開発の成果である。同時に光電子ホログラフィーによる欠点はアーティファクトにより構造決定にあいまいさが生じることであるが、この欠点を克服するために異なるエネルギーの光電子を用いる「差分法」を使い、アーティファクトの大きな原因になっている前方散乱光電子を引き去ることにより、あいまいさをなくしたとの報告があった。この手法は独自に提案されたものであり、本分野では高く評価されている成果である。

次の北海道大学の朝倉教授により、「Wien filter を用いた EXPEEM による Au/Ta の化学状態変化追跡」のいうタイトルで依頼講演が行われた。この内容は、JST の振興調整費による「新型 X 線光電子放出顕微鏡の開発」の一環としての仕事の報告であった。講演ではまず Wien filter を使用して対物レンズの収差を補正しようというものである。詳細な計算の結果、12 極の filter を使うと、高次の収差も補正できるというものである。この計算では見事に補正ができることを示しており、装置の早期実現が待たれる。また同時に現在までに得られている、Au/Ta 試料を用いた実験結果についても報告が行われた。この後の発展が期待される。

次に物材機構の吉川氏により、SPring-8 の BL15 にて進行しているプロジェクト「SPring-8 BL15 における高エネルギー X 線励起の XPEEM の開発」についての報告がなされた。本開発装置は LEEM, PEEM, LEED 等が同一装置で測定できるようになっており、かつ対物レンズ部分が電場ならびに磁場重畳ができるようになっている。かつ磁場を優先して使用することも可能な新しい設計が行われている。主にその装置の特性測定に関する結果が報告された。最後のパネルディスカッションでは、VUV・SX 高輝度光源への期待という表題で、光電子顕微鏡のアクティビティとは切り離せない議論が行われた。議論に先立ち、3 人のパネラーがそれぞれ簡単なコメントを行った。

まず、大門寛（奈良先端大）氏から、放射光と組み合わせた PEEM によって可能になる研究、これから期待される研究、世界の情勢、高輝度光源計画への期待が述べられた。渡辺義夫（NTT-AT）氏からは、世界でもっとも先端的な光電子顕微鏡ステーションを 3 基備えている、イタリアの高輝度光源 ELETTRA の現状について報告があった後、高輝度光源計画への要望が寄せられた。柿崎明人軌道放射性研究施設長が計画の概要について説明し、高輝度光源が、このような顕微鏡実験のためには非常に優れた光であることが改めて認識された。

議論を通し、以下のような認識および、高輝度光源への要望が示された。

1. PEEM では、局所領域の構造解析、電子状態分析など、重要な実験が一台の装置で行うことができる。実空間の情報だけでなく、逆空間の情報も得ることができ、物性研究、材料科学にとっては非常に大きなメリットがある。また、産業界からの期待も高い。
2. 上に述べたような研究を展開する場合、VUV・SX 高輝度光源の実現が強く望まれる。Spring-8 では、500eV 以上の領域でかなりの性能の PEEM 研究が可能になることが期待されるが、逆空間でのバンドマッピングなど、不可能な実験も多い。世界の趨勢も数 10~1500eV のところで、高輝度光源施設が PEEM 実験ステーションを保有している。一方、偏光の制御も、今回の研究会で多くの例が示されたとおり、非常に重要である。Spring-8 でも、まだ偏光制御に関する制約は大きく、国内の他施設でも輝度、偏光双方の点で満足いく状況にはない。
3. PEEM の場合、LEEM/LEED で、実験の準備段階があるにしても、装置が常にビームラインに常駐していなければ、満足のいく成果を挙げることは非常に難しい。この観点からも現有施設では問題がある。
4. 以上のような観点から、VUV・SX 高輝度光源の早期実現が強く望まれる。現在計画されている施設では、トップアップ運転、長尺アンジュレータの利用など、他施設にないメリットもあり、PEEM 研究の展開のために、大きな力になる。

そのほか、ビームライン技術として、集光サイズの変換機構の開発、できるだけ斑のない光の供給などが要望された。また、海外では自由電子レーザーと PEEM を組み合わせた研究も計画されており、時間分解 PEEM に関しても、計画が

ある。わが国では PF-AR で、小野寛太氏らが時間分解実験の計画を進めようとしているが、今後この分野の研究者全体で、新しいアイデアを出していく必要がある。

以上のように、高輝度光源計画に関しては熱い期待が述べられたものの、実現の見通しに関しては不透明である。しかしながら、これまでは放射光とは無縁の研究者からも、大きな期待が寄せられ、会議終了時には、高輝度光源利用者懇談会への入会希望が寄せられた。

この報告はそれぞれのセッションの座長をしていただいた、奈良先端大の大門教授、大阪電通大の安江教授、KEK の小野寛太助教授、NTT の渡辺義夫主任研究員、東大の木下豊彦助教授の協力により作成した。協力に感謝をする。

プログラム

2004年4月26日(月)、27日(火)

東京大学物性研究所柏キャンパス

協賛：UVU・SX 高輝度光源利用者懇談会

4月26日(月)

座長 大門 寛

13:00 - 13:45 【講義】「LEEM の原理と最近の展開」

越川 孝範 (大阪電通大)

13:45 - 14:10 「Si 酸化膜脱離のリアルタイム LEEM 観察」

日比野浩樹、渡辺 義夫 (NTT 物性科学基礎研)

14:10 - 14:35 「Cu,Pb/W(110)の LEEM,LEED,PEEM による動的観察と構造解析」

安江 常夫、清水 宏、天川 良太、中口 明彦、高橋 宏彰、E.Bauer¹、

越川 孝範 (大阪電通大、¹アリゾナ州立大)

14:35 - 14:50 休憩

座長 安江 常夫

14:50 - 15:30 【依頼講演】「原子配列 Stereo-PEEM の開発」

大門 寛 (奈良先端大)

15:30 - 15:55 「Multi Emitter 評価装置の開発—LEEM, PEEM, FEEM による Multi Emitter の動作状態の real time 観察」

村田 英一、木村 友彦、西村 善行、下山 宏、最上 明矩¹、境 悠治¹、

工藤 政都¹、嘉藤 誠¹、別井 圭一²、井上 和則² (名城大、¹日本電子、²富士通研)

15:55 - 16:20 「Spring-8 BL39XU と PEEM を用いた Gibeon 鉄隕石の micro-EXAFS 測定」

小嗣 真人、脇田 高德¹、谷内 敏之²、小野 寛太²、鈴木 基寛¹、河村 直己¹、

石松 直樹³、圓山 裕³、小林 啓介¹ (HiSOR、¹JASRI、²高エ研、³広島大学)

座長 越川 孝範

16:20 - 16:40 【LEEM/PEEM 国際会議の日本誘致に関する検討】

16:40 - 18:05 ポスターセッション

1. 「放射光 PEEM による Cr/NiO(100)界面の磁区構造観察」

孫 海林、遠山 尚秀¹、上野 信雄¹、原沢 あゆみ、奥田 太一、木下 豊彦

(東大物性研、¹千葉大自然)

2. 「焦点位置変調法を用いた PEEM 像の分解能向上」
越川 孝範、清水 宏、天川 良太、中口 明彦、高橋 宏彰、安江 常夫、生田 孝、E.Bauer¹
(大阪電通大、¹アリゾナ州立大)
3. 「EXPEEM 用エネルギーアナライザとしての収差補正された多極子型 Wien filter の設計」
新美 大伸、嘉藤 誠¹、川崎 貴博、工藤 政都¹、堤 哲也、鈴木 秀士、田 旺帝、
朝倉 清高 (北大触媒研、¹日本電子)
4. 「PEEM を用いた仕事関数計測 : soot, graphite, ullaren, CNT」
李 万燕、後藤 敬典、志水 隆一¹ (名工大、¹大工大)
5. 「W 表面を Zr 酸化物で修飾した時の仕事関数変化」
南 勝利、吉田 将和、仲野 祐輔、山根 康一、中根 英章、安達 洋 (室蘭工大)
6. 「PEEM と SXFS による金属 (薄膜) /SiC (基板) 接合系の表面構造」
平井 正明、亀澤 智博、アザティアン・セルゲイ、日下 征彦、岩見 基弘 (岡山大理)
7. 「HiSOR における PEEM プロジェクトの現状 II」
小嗣 真人、木村 昭夫、生天目博文、谷口 雅樹 (広大 HiSOR)
8. 「PEEM による In/PTCDA/MoS₂ 系の In 金属異方性拡散」
尾上 美紀^{*}、塩野入正和、解良 聡、奥平 幸司、上野 信雄 (千葉大自然、^{*}現理研)

18:10 - 20:00 懇親会

座長 小野 寛太

9:00 - 9:50 **【講義】「XMCD、XMLD を利用した磁区構造観察と最近の展開」**

木下 豊彦 (東大物性研)

9:50 - 10:15 「メゾスコピック磁性体における vortex カイラリティ制御と PEEM によるカイラリティの直接観察」

谷内 敏之、尾嶋 正治、秋永 広幸¹、小野 寛太² (東大工、¹産総研、²高エ研)

10:15 - 10:40 「光電子顕微鏡 SPELEEM による架橋単層ナノチューブの観察」

渡辺 義夫、鈴木 哲 (NTT 物性科学基礎研)

10:40 - 10:55 休憩

座長 渡辺 義夫

【Spring-8 における PEEM の設置と実験の現状】

10:55 - 11:15 「(1) Spring-8 における SPELEEM と PEEM SPECTOR 設置の基本コンセプト」

小林 啓介 (JASRI)

11:15 - 11:40 「(2) Spring-8 の SX および HX ビームラインにおける PEEM SPECTOR による XANES および MCD 観察」

脇田 高德、松下 智裕、斎藤 祐児¹、谷内 敏之²、小野 寛太³、鈴木 基寛、郭 方准、
室 隆桂之、中村 哲也、秋永 広幸⁴、村岡 裕明⁵、増野 敦信⁶、寺嶋 孝仁⁶、
尾嶋 正治²、小林 啓介 (JASRI、¹JAERI、²東大、³PF、⁴産総研、⁵東北大、⁶京大)

11:40 - 12:05 「(3) SPELEEM によるテストサンプルの評価」

郭 方准、清水 宏¹、脇田 高德、中口 明彦¹、谷内 敏之²、日比野浩樹³、鈴木 哲³、E.Bauer⁴、
安江 常夫¹、越川 孝範¹、小林 啓介 (JASRI、¹大阪電通大、²東大、³NTT、⁴アリゾナ州立大)

12:05 - 12:30 「(4) SPELEEM による金属/Si(111)の評価」

清水 宏、郭 方准¹、脇田 高德¹、中口 明彦、谷内 敏之²、E.Bauer³、安江 常夫、
越川 孝範、小林 啓介¹ (大阪電通大、¹JASRI、²東大、³アリゾナ州立大)

12:30 - 13:30 昼食

座長 越川 孝範

13:30 - 14:30 【特別講演】「光電子ホログラフィによる表面構造解析（仮題）」

二瓶 好正（東京理科大）

14:30 - 15:10 【依頼講演】「Wien filter を用いた EXPEEM 法の現状と可能性」

堤 哲也、新見 大伸、松平 宣明、川崎 貴博、朝倉 清高、安福 秀幸¹、嘉藤 誠²、
北島 義典³、岩澤 康裕⁴（北大触媒研、¹物材機構、²日本電子、³KEK-PF、⁴東大理）

15:10 - 15:35 「SPring-8 BL15 における高エネルギー X線励起の XPEEM の開発 II」

吉川 英樹、安福 秀幸、木村 昌弘、福島 整（物材機構）

座長 木下 豊彦

15:35 - 16:20 【パネルディスカッション】「VUV・SX 高輝度光源への期待」

パネラー：大門 寛、渡辺 義夫、柿崎 明人

【講演時間・発表要領】

特別講演、講義：講演 40 分＋質疑応答 10 分

依頼講演：講演 30 分＋質疑応答 10 分

一般講演：講演 20 分＋質疑応答 5 分

- 口頭発表では OHP と PC プロジェクターが使用できます。プロジェクターをご使用の場合は、PC をご持参ください。
- 口頭発表をされる方もぜひポスターをご持参いただき、詳しいご議論をしてください。
- ポスターボードのサイズは、横 80cm×縦 100cm×2 枚です。

【懇親会】

26 日の研究会終了後、懇親会を開催します。ぜひご参加ください。懇親会への参加の申し込みにつきましては、物性研内の本研究会専用の参加登録ホームページ (<http://obana.issp.u-tokyo.ac.jp/leem-peem/>) の基本情報の入力にて行なってください。

参加費は 3,000 円です（当日徴収）。

【アクセス】

JR 常磐線・東武野田線柏駅からバス約 25 分。

詳細は、物性研ホームページ (<http://www.issp.u-tokyo.ac.jp>) をご覧ください。

【宿泊】

物性研周辺の宿泊施設に関する情報は、物性研のホームページをご覧ください。

【お問合せ先】

越川 孝範（大阪電通大、kosikawa@isc.osakac.ac.jp）

または、安江 常夫（大阪電通大、yasue@isc.osakac.ac.jp）

目 次

- O-01 LEEM の原理と最近の展開
大阪電気通信大学・エレクトロニクス基礎研究所、越川 孝範
- O-02 Si 酸化膜脱離のリアルタイム LEEM 観察
NTT 物性基礎研、日比野浩樹、渡辺 義夫
- O-03 Cu,Pb/W(110) の LEEM, LEED, PEEM による動的観察と構造解析
安江 常夫、清水 宏、天川 良太、中口 明彦、高橋 宏彰、E.Bauer¹、越川 孝範
(大阪電通大、¹アリゾナ州立大)
- O-04 原子配列 Stereo-PEEM の開発
奈良先端科学技術大学院大学、大門 寛
- O-05 Multi Emitter 評価装置の開発
— LEEM, PEEM, FEEM による Multi Emitter の動作状態の real time 観察—
¹名城大学理工学部、²名城大学 COE「ナノファクトリー」、³日本電子(株)、⁴(株)富士通研究所、村田 英一¹、
木村 友彦¹、西村 善行¹、下山 宏^{1,2}、最上 明矩³、境 悠治³、工藤 政都³、嘉藤 誠³、別井 圭一⁴、
井上 和則⁴
- O-06 SPring-8 BL39XU と PEEM を用いた Gibeon 鉄隕石の micro-EXAFS 測定
HiSOR、JASRI¹、高エ研²、広島大学³、小飼 真人、脇田 高德¹、谷内 敏之²、小野 寛太²、
鈴木 基寛¹、河村 直己¹、高垣 昌史¹、石松 直樹³、谷口 雅樹、小林 啓介¹、圓山 裕³
- O-07 XMCD、XMLD を利用した磁区構造観察と最近の展開
東大物性研、木下 豊彦
- O-08 メゾスコピック磁性体における vortex カイラリティ制御と PEEM によるカイラリティの直接観察
谷内 敏之、尾嶋 正治、秋永 広幸^A、小野 寛太^B
- O-09 光電子顕微鏡 SPELEEM による架橋単層ナノチューブの観測
NTT 物性基礎研、渡辺 義夫、鈴木 哲
- O-10 SPring-8 のナノテクノロジー総合支援プロジェクトにおける SPELEEM と PEEM SPECTOR 設置の基本コンセプト
財団法人高輝度光科学研究センター、小林 啓介
- O-11 SPring-8 の SX および HX ビームラインにおける PEEMSPECTOR による XANES と MCD 観察
JASRI、JAERI^A、東京大学^B、PFC、産総研^D、東北大学^E、京都大学^F、脇田 高德、松下 智裕、
斎藤 祐児^A、谷内 敏之^B、小野 寛太^C、鈴木 基寛、郭 方准、室 隆桂之、中村 哲也、秋永 広幸^D、
村岡 裕明^E、増野 敦信^F、寺嶋 孝仁^F、尾嶋 正治^B、小林 啓介
- O-12 SPELEEM によるテストサンプルの評価
JASRI、大阪電通大^A、東大^B、NTT 基礎研^C、アリゾナ州立大^D、郭 方准、清水 宏^A、脇田 高德、松下 智裕、
中口 明彦^A、谷内 敏之^B、日比野浩樹^C、鈴木 哲^C、E.Bauer^D、安江 常夫^A、越川 孝範^A、小林 啓介
- O-13 SPE-LEEM による金属/Si(111) の評価
大阪電通大、JASRI¹、東大²、アリゾナ州立大³、清水 宏、郭 方准¹、脇田 高德¹、中口 明彦、
谷内 敏之²、奥田 太一²、安江 常夫、E. Bauer³、小林 啓介¹、越川 孝範
- O-14 光電子回折/ホログラフィによる表面構造解析
東京理科大学、二瓶 好正
- O-15 Wien filter を用いた EXPEEM 法の現状と可能性
北大触媒セ¹、物材機構²、日本電子³、KEK - PF⁴、東大理⁵、堤 哲也¹、新美 大伸¹、松平 宣明¹、
川崎 貴博¹、朝倉 清高¹、安福 秀幸²、嘉藤 誠³、北島 義典⁴、岩澤 康裕⁵
- O-16 SPring-8 BL15 における高エネルギー X 線励起の XPEEM の開発
物質・材料研究機構、吉川 英樹、安福 秀幸、木村 昌弘、福島 整

- P-01 放射光 PEEM による、Cr/NiO(100) 界面の磁気構造観察
東大物性研、千葉大自然^a、孫 海林、遠山 尚秀^a、上野 信雄^a、原沢あゆみ、奥田 太一、木下 豊彦
- P-02 焦点位置変調法を用いた PEEM 像の分解能向上
大阪電通大、アリゾナ州立大¹、越川 孝範、清水 宏、天川 良太、中口 明彦、高橋 宏彰、安江 常夫、生田 孝、Ernst Bauer¹
- P-03 EXPEEM 用エネルギーアナライザとしての収差補正された多極子型 Wien filter の設計
北大触媒研¹、日本電子²、CREST、JST³、新美 大伸¹、嘉藤 誠²、川崎 貴博¹、工藤 政都²、堤 哲也¹、鈴木 秀士¹、田 旺帝^{1,3}、朝倉 清高¹
- P-04 PEEM を用いた仕事関数計測 ; soot, graphite, fulleren, CNT
名古屋工業大学、李 万燕、後藤 敬典、大阪工業大学*、志水 隆一
- P-05 W 表面を Zr 酸化物で修飾した時の仕事関数変化
室蘭工業大学、電気電子工学科、南 勝利、吉田 将和、仲野 祐輔、山根 康一、中根 英章、安達 洋
- P-06 PEEM と SXFS による金属 (薄膜) / SiC (基板) 接合系の表面構造
岡山大理、平井 正明、亀澤 智博、アザティアン・セルゲイ、安 振連、日下 征彦、岩見 基弘
- P-07 HiSOR における PEEM プロジェクトの現状 II
HiSOR、小嗣 真人、木村 昭夫、生天目博文、谷口 雅樹
- P-08 PEEM による In/PTCDA/MoS₂ 系の In 金属異方性拡散
千葉大院、尾上 美紀*、塩野入正和、解良 聡、奥平 幸司、上野 信雄 (*現理研)

O-01 LEEM の原理と最近の展開

大阪電気通信大学・エレクトロニクス基礎研究所、越川 孝範

Principle of LEEM and the results by using it

Fundamental Electronics Research Institute, Osaka Electro-Communication University, T. Koshikawa

低エネルギー電子顕微鏡 (LEEM) ならびに光電子顕微鏡 (PEEM) が種々の表面の情報を得ることが出来る新しい顕微鏡と脚光を浴びている。本邦ではこれらを用いた表面に関する本格的な研究が始まってからまだ日が浅い。今後のこれらの機器の特徴を用いた研究の進展と総合的な情報交換を図るために「LEEM/PEEM 連絡会」が昨年発足した。本邦では比較的 PEEM を用いた研究を行なっている研究者が多い。

LEEM は少数派であるが、PEEM と相補的な種々の情報を得ることが出来る有力な表面顕微鏡である。そこで、ここでは LEEM の像を解釈する場合の基礎になる考え方を述べるとともに、LEEM を用いて得られた最近の結果に触れて会議参加者に LEEM に対する興味を喚起したいと考えている。

LEEM は低エネルギー電子 (数〜数十 eV) を表面に入射させ固体表面と相互作用をした反射電子を電子レンズ系で結像させ表面の実時間動的観察を行なうことが出来ることを大きな特徴としている。コントラストが得られる主な要因は、1. 回折コントラストと 2. 干渉コントラストといわれるものである。これらの具体的な例を交えて説明を行なう予定である。通常の透過電子顕微鏡 (TEM) のように明視野像や暗視野像を得ることが出来る。この顕微鏡では同時に LEED パターンを得ることが出来るので構造解析も可能である。制限視野アパーチャを使用すると表面の 0.2-0.3 μm 領域からの回折パターンを得ることができ、局所構造解析が可能である。スピン偏極電子源を用いると表面の磁区構造に関する情報が得られる。これも大きな特徴の一つである。また電子の代わりに光子を入射ビームとして用いると、PEEM 像が得られる。紫外光を使用すると、仕事関数の変化に対応するコントラストが得られる。エネルギーが高い X 線を用いると XPEEM になり、XPS や XANES をとることにより結合状態を反映した顕微鏡像を得ることが出来る。また放射光の偏光を使うと表面の磁区構造に関する情報が得られる。このように一つの電子光学系を用いて多様な情報を得ることが出来る。主に LEEM を中心にして我々が得た結果についても報告を行う。

NTT 物性基礎研、日比野浩樹、渡辺 義夫

Real-time LEEM observation of thermal decomposition of SiO₂ on Si surfaces

NTT Basic Research Laboratories, Hiroki Hibino and Yoshio Watanabe

Si 表面上の Si 酸化膜は、超高真空での加熱中、ボイド形成を通して脱離することが知られている。今回、ウェットケミカル処理および熱酸化処理により、Si(001) および Si(111) 表面上に酸化膜を形成し、酸化膜の脱離過程を、低速電子顕微鏡 (LEEM) によりリアルタイム観察したので報告する。加えて、Co および Si の蒸着が、酸化膜の脱離に及ぼす影響について調べた結果も報告する。

図 1 は、沸硝酸中で酸化膜を形成した Si(111) 表面を、1081K での加熱中に、二次電子により撮影した LEEM 像である。二次電子を用いた LEEM 像では、加熱中、ほぼ円形の暗い領域が出現し、時間とともに拡大する様子が観察された。二次電子 LEEM 像で暗く観察される領域は、00 ビームを用いた明視野 LEEM 像では明るく観察されることから、図 1 において、酸化膜が脱離した後の清浄表面が暗く観察されていることがわかる。リアルタイム LEEM 観察により、酸化膜がボイドの形成を伴って脱離する様子が、明瞭に捉えられた。加えて、LEEM 観察により、(1) 脱離中、ボイドの拡大と密度の増加が同時に起

こること、(2) ボイドの内部には平坦な表面が形成されること、(3) ボイドの形成が基板方位によらず起きること、(4) 酸化膜厚の増加に伴い、酸化膜脱離温度が上昇し、ボイド密度が低下すること等が示された。さらに、微細加工 Si 基板において、パターンによる蒸着フラックスのシャドウイングを用い、酸化膜脱離に対する、Co および Si 蒸着の影響を調べた。得られた LEEM 像は、Co や Si の蒸着による酸化膜脱離温度の低減を、実空間像として明瞭に示した。

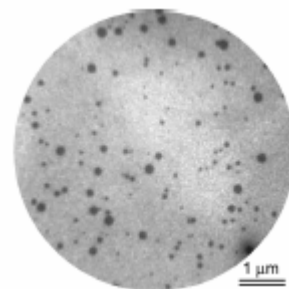


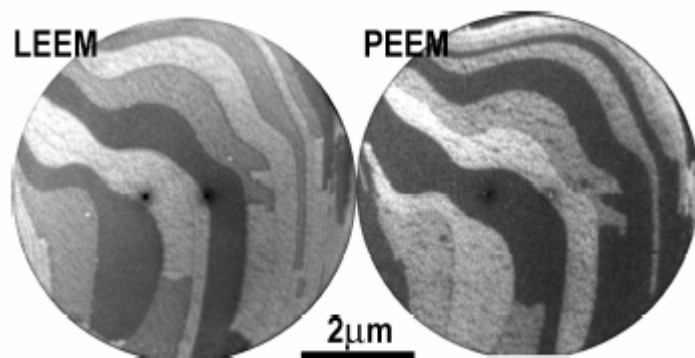
図 1 沸硝酸中で酸化膜を形成した Si(111) 表面を、1081K で加熱中の LEEM 像。暗い円形の領域が酸化膜が脱離した領域。

安江 常夫、清水 宏、天川 良太、中口 明彦、高橋 宏彰、E.Bauer¹、越川 孝範 (大阪電通大、¹アリゾナ州立大)

Dynamic Observation and Structure Analysis of Cu, Pb/W(110) with LEEM, LEED and PEEM

T.Yasue, H.Shimizu, R.Amakawa, A.Nakaguchi, H.Takahashi, E.Bauer¹ and T.Koshikawa(Osaka Electro-Commun. Univ, ¹Arizona State Univ.)

W(110) 表面上での Cu および Pb の成長過程の LEEM、PEEM による動的観察と、制限視野絞りをを用いた局所領域からの LEED パターンの観察を行ったので報告する。W(110)の清浄化は、酸素雰囲気中でのアニールと高温のフラッシングを繰り返すことにより行った。Cu/W(110) においては、基板温度が 200 度程度のとき、最初に第 2 層までの層状成長が起こり、その後、複数の層が同時に形成される成長様式をとる。図はこの時に得られた LEEM 像 (左、電子のエネルギーは 2.5eV) と PEEM 像 (右、光源は水銀ランプ) である。LEEM 像では形成された層数に応じて、コントラストが



異なっていることがわかる。これは「量子サイズコントラスト」であり、電子のエネルギーを変化させながらコントラストの変化を観察することにより、それぞれの場所での層数がわかる。一方、PEEMにおいても同様の層数に応じたコントラストが観察されている。水銀ランプ励起のPEEMの場合、コントラストは仕事関数に差異により生じると考えられるが、この場合には必ずしも各層の仕事関数を反映していない。この原因については、今後検討を要する。

発表では、Pb/W(110) について行った観察結果についても報告する。

O-04

原子配列 Stereo-PEEM の開発

奈良先端科学技術大学院大学、大門 寛

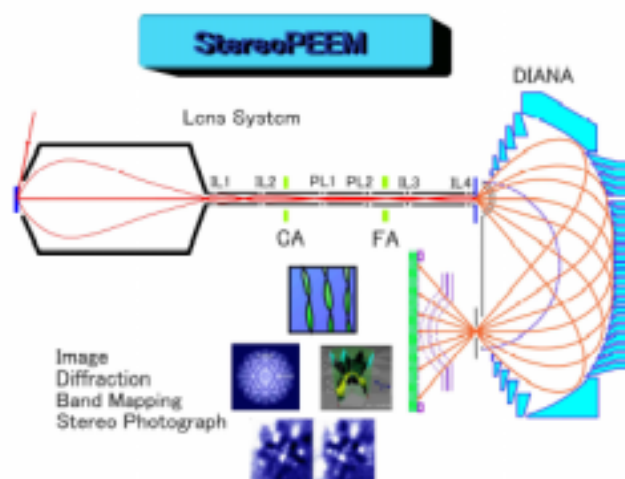
Development of Stereo-PEEM

Nara Institute of Science and Technology (NAIST)

ナノ構造体の原子配列構造や電子エネルギーバンドを立体的に観測できる新しい「原子配列立体視光電子顕微鏡 Stereo-PEEM」を開発している。最近の光電子顕微鏡 PEEM は、物質表面の拡大像を得るだけでなく、エネルギー分析器を組み込んでナノ領域の光電子スペクトルを測定したり、電子回折パターンや 2 次元電子エネルギーバンドの測定が行える強力な分析ツールになってきている。この PEEM の開発はドイツが中心で行われており、日本は遅れている。しかしながら、従来の PEEM には、光電子の運動エネルギーが数百 eV 以上になると取り込み角が小さくなり、光電子回折パターンの測定はできず、我々が開発した「立体原子顕微鏡」^[1] の測定も出来ないため、原子配列構造に関する知見が得られないという問題がある。物質はナノサイズになると構造や性質が変化するため、個々のナノ微粒子の立体原子配列を解析しながら分析を行うことが今後のナノテクノロジーの高度化に必須であり、この Stereo-PEEM の開発により日本の優位性が出てくる。

我々は、円偏光 X 線を試料に照射し、そこから出てくる光電子の放出角度分布を「二次元表示型球面鏡分析器 (DIANA)」(図 1) ^[2] という我々が開発した装置を用いて測定することによって、原子の配列構造を 10 億倍に拡大した立体写真を直接撮影することに成功した。蛍光板上に、右目用と左目用の 2 枚の立体写真が直接、歪みなく撮影される。立体写真の測定には、「前方散乱ピークが円偏光の回転の向きに回転する」という現象^[3] を利用している。光電子の運動エネルギーを分析器によって選別することにより、特定の元素、その中でも特定の電子状態の原子を選び、その原子の周りの構造だけを測定することができる。

これまで、ナノ薄膜や、グラファイトなどの軽元素の周りの原子配列の立体測定に成功している。光電子顕微鏡像も得られるような機能をもたせるため、これまででは 10 度程度が限界だった高エネルギー電子の取り込み角を一気に 60 度に広げた新しい対物レンズを設計し、製作している。



[1] H. Daimon, Phys. Rev. Lett. 86, (2001) 2034.

[2] H. Daimon, Rev. Sci. Instrum. 59, (1988) 545.

[3] H. Daimon, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 32, (1993)L1480.

— LEEM, PEEM, FEEM による Multi Emitter の動作状態の real time 観察—

¹名城大学理工学部、²名城大学 COE 「ナノファクトリー」、³日本電子㈱、⁴㈱富士通研究所、

村田 英一¹、木村 友彦¹、西村 善行¹、下山 宏^{1,2}、最上 明矩³、

境 悠治³、工藤 政都³、嘉藤 誠³、別井 圭一⁴、井上 和則⁴

Development of an electron optical instrument for evaluation of multi emitters

- Real time observation of multi emitters by LEEM, PEEM and FEEM -

¹Fac. of Sci. & Technol., Meijo University, ²21st Century COE Program, Nano-Factory, Meijo University, ³JEOL

Ltd., ⁴Fujitsu Laboratories Ltd., H. Murata¹, T. Kimura¹, Y. Nishimura¹, H. Shimoyama^{1,2}, A. Mogami³,

Y. Saka³, M. Kudo³, M. Kato³, K. Betsui⁴, K. Inoue⁴

【はじめに】 これまで、多数の field emitter を集積化した構造の Field Emitter Array (FEA) または配向性垂直成長 carbon nanotube (CNT) あるいはこれらに類似の各種 multi emitter を評価する際には、エミッション顕微鏡が多く用いられてきた。しかし、この場合、multi emitter からの電界電子放出による結像で得られるのは、emission site に関する情報のみであり、multi emitter の電極形状に関する情報は得られない。最近、我々は multi emitter の性能を、定量的かつ系統的に評価可能な「Multi Emitter 評価装置」を開発した。本装置を用いて、低エネルギー反射電子放出モードもしくは光電子放出モードで得られる multi emitter の電極形状の像 (LEEM 像もしくは PEEM 像) と、multi emitter の個々の emitter からの電界電子放出の像 (FEEM 像) との同時観察に成功し、個々の emitter からの電子放出を multi emitter の電極形状の像と対応付けすることにも成功したので報告する。

【実験方法および考察】 観察に用いた multi emitter は、直径約 1.0 μm の gate 孔の中に Pt の emitter を有する Spindt 型のものである。Fig. 1(a)は、emitter-gate 間電圧 $V_g = 0$ [V] の場合の multi emitter の gate 電極表面の LEEM 像である。1つの枠の中に、 $5 \times 5 = 25$ 個の emitter が配置された構造になっており、図中の黒い小さな穴が 1 個の gate 開口に対応している。Fig.1(b)は、emitter-gate 間に $V_g = 70$ [V] の電圧を印加した場合の LEEM 像と FEEM 像の同時観察像である。gate 孔が白く光っている箇所が、実際に電子放出している emitter である。これを見ると、電子放出している emitter と、していない emitter を簡単に区別できることが分かる。また、リアルタイムに観察できるので、個々の emitter の動的なふるまいを評価することも可能である。実際、明滅を繰り返す emitter や激しくエミッションした後、全くエミッションしなくなってしまった emitter など様々であった。Fig. 2(a) は、emitter-gate 間電圧 $V_g = 0$ [V] の場合の multi emitter の gate 電極表面の PEEM 像である。emitter-gate 間電圧 $V_g = 75$ [V] まで上昇させると、Fig. 2(b) のように、激しく光る白い輝点が多数表れ、PEEM 像と FEEM 像の同時観察においても、個々の emitter からの電子放出を multi emitter の電極形状と対応付けて観察できることが分かる。以上のことから、電子放出の状態が極めて安定な emitter や、逆に不安定な emitter、などを具体的に特定できるので、本装置は Multi Emitter 評価装置として大いに活用できると考える。なお、本研究は日本学術振興会未来開拓推進事業「超コヒーレント電子ビームの開発」の一環として行った。

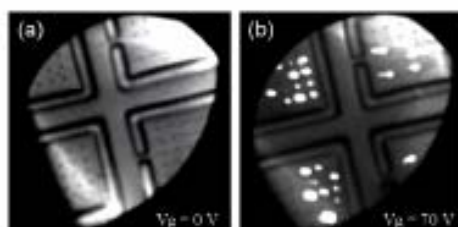


Fig. 1: Simultaneous observation of LEEM and FEEM images under different conditions of gate voltage V_g (=emitter-to-gate voltage).

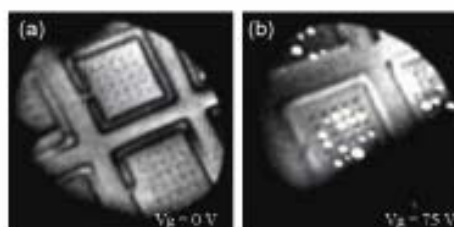


Fig. 2: Simultaneous observation of PEEM and FEEM images. Gate holes (dark spots) are located at intervals of 5 μm .

O-06 SPring-8 BL39XU と PEEM を用いた Gibeon 鉄隕石の micro-EXAFS 測定

HiSOR、JASRI¹、高エ研²、広島大学³、小嗣 真人、脇田 高德¹、谷内 敏之²、小野 寛太²、鈴木 基寛¹、河村 直己¹、高垣 昌史¹、石松 直樹³、谷口 雅樹、小林 啓介¹、圓山 裕³

Micro-EXAFS Observation on Gibeon Iron Meteorite using PEEM at BL39XU of SPring-8

HiSOR、JASRI¹、KEK²、Hiroshima Univ.³ M. Kotsugi, T. Wakita¹、T. Taniuchi²、K. Ono²、M. Suzuki¹、N. Kawamura¹、N. Ishimatsu³、M. Taniguchi、K. Kobayashi¹、H. Maruyama³

我々は SPring-8 硬 X 線ビームライン BL39XU に設置された PEEM SPECTOR を使い、Gibeon 鉄隕石に対して XANES、EXAFS 測定を行った。地球上に降り注ぐ隕石の大半は火星と木星の間に存在する小惑星帯から飛来すると考えられており、太陽系の起源に関する知見が期待されている。また純粋な天文物理学としてだけでなく、物性物理としても、オクタヘドライトの自然残留磁化 (NRM) 獲得機構を解明する手がかりとして重要な役割を持つ。鉄隕石は bcc(α 相) と fcc(γ 相) 構造が混在するウィドマンステッテン構造と呼ばれる特異な結晶構造を持つ (図 1)。100 万年に 1°C という極めて緩やかな冷却を行った結果、このような結晶構造を持つに至ったといわれており、本構造は地球上には存在し得ない。ウィドマンステッテン構造とは主に FeNi から構成される α 相と γ 相が正八面体の(111)面に平行に生長しているオクタヘドライト型の結晶構造である。図中の 0.1~0.4mm の幅を持つ広いバンドが α 相に相当し、それぞれのバンドを分離している溝が γ 相に相当する。また図中の細かい領域は $\alpha + \gamma$ の混相である。Gibeon に限って言えば、 α 相においては Fe が約 95 %、Ni が約 5 %でバルク Fe に似た bcc 構造の強磁性をとる。また γ 相においては Fe と Ni の含有量が同等であり FeNi に似た fcc 構造をとる。ただし Ni の分布は一律ではなく、 α 相との境界面近傍で最大値を取り中間部に近づくに従い減少する M 字型の分布をもつ。これは α 相と γ 相の分離に際して Ni の格子拡散は α 相の中では比較的容易だが、 γ 相中では困難なので Ni 原子の密度が α 相との境界近傍に集積してしまうことに由来し、Ni が長い年月をかけて偏析したことを裏付ける証拠となっている。今回我々は SPring-8 BL39XU に設置された PEEMSPECTOR を使い、また励起光源に硬 X 線を用いて上記試料に対して micro-XAFS 測定を行った。エネルギーを連続的に変化させながら画像測定をする事で、EXAFS や XANES をピクセル単位で行うことができるメリットがあり、局所領域の構造解析に利用できると期待されている。また K 端上の画像と直前の画像を比較し画像演算する事で、励起元素の空間上の分布をも同時に知ることができる。また吸収端を変える事で元素毎の情報を得ることができる。我々は Fe と Ni の K 吸収端でそれぞれ micro-XANES/EXAFS 測定を行った。その結果上記の α 相と γ 相を分離し、各相における Fe と Ni の空間分布を測定することができた (図 2)。また α 相と γ 相の間で K 吸収のスペクトル形状に差異を確認することができた (図 3)。



図 1 : 鉄隕石の Widmanstaetten 構造

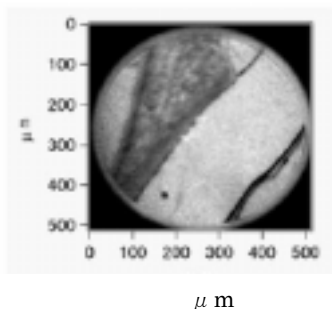


図 2 : FeK 吸収端における PEEM 像

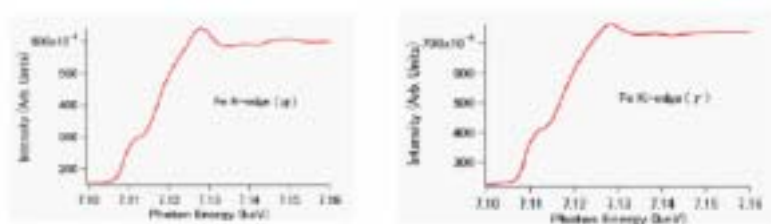


図 3 : α 、 γ 各ドメインにおける XANES スペクトル

東大物性研、木下 豊彦

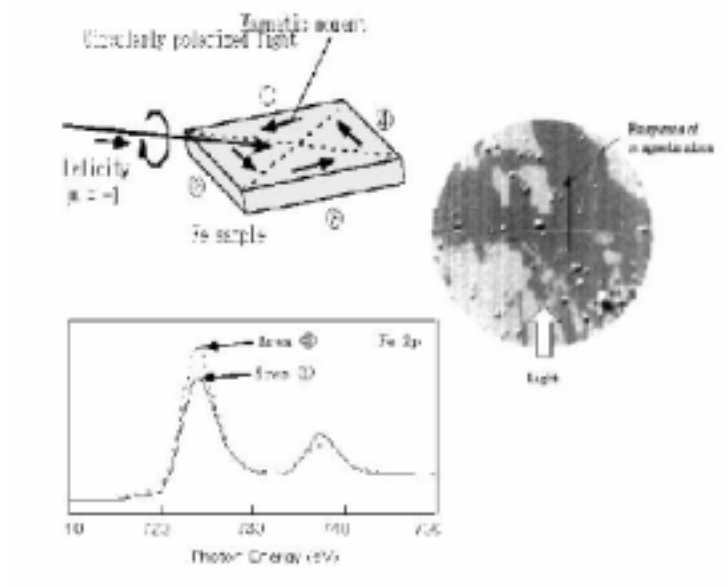
Magnetic domain observation by means of XMCD- and XMLD-PEEM and the recent activities

ISSP U. Tokyo, Toyohiko Kinoshita

放射光を利用した PEEM では、磁気円および線 2 色性 (XMCD、および XMLD) を用いた元素選択的な磁区ドメイン観察が可能である。このことは薄膜や多層膜の磁気構造を調べる上で、非常にメリットが大きい。MCD、MLD それぞれを利用した磁区観察の実際について、最近の研究成果を交えながら紹介する。図に示すように、強磁性体に円偏光放射光を入射すると、その helicity と、サンプルの個々の磁区の磁気モーメントとの依存性で、吸収端付近で大きな 2 色性を生ずる。2 色性の大きさは、そのまま、光電子放出強度、あるいは 2 次電子放出強度の違いとなって現れるため、その実空間分布の拡大イメージを行えば、それが、磁区ドメインイメージに相当する。図の、イメージは、鉄表面の磁区をその 2 p 吸収端付近で現れる、MCD 効果を利用し、PEEM で拡大して得たものである。放射光の場合は、円偏光ばかりでなく、直線変更も利用することが可能で、その線 2 色性を利用した磁区ドメイン観察も可能である。この場合には、強磁性体ばかりでなく、反強磁性ドメインの観察も可能になる。講演では、これらの磁区ドメイン観察で得られる情報、PEEM ならではの特徴などに触れながら、最近の研究成果についても紹介する。

参考文献

T. Kinoshita, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 124 (2002) 175-194.



O-08 メゾスコピック磁性体における vortex カイラリティ制御と PEEM によるカイラリティの直接観察

谷内 敏之、尾嶋 正治、秋永 広幸^A、小野 寛太^B

Vortex Chirality Control in Mesoscopic Disk Magnets Observed by PEEM

U. of Tokyo, AIST^A, KEK^B, Toshiyuki Taniuchi, Masaharu Oshima, Hiro Akinaga, Kanta Ono

研究背景

サブミクロンサイズの磁性体ディスクにおいて磁気構造が vortex と呼ばれる磁気渦構造を持つことが知られている。

Vortex の状態 (トポロジー) を表す一つの指標として、磁気渦の向きの時計回り・反時計回りを示すカイラリティが存在する。vortex のカイラリティを制御することにより、ビット間の磁氣的干渉のない磁気ランダムアクセスメモリー (MRAM) を実現できることが期待されるため、大きな関心が集まっている。しかしながらカイラリティ制御は非常に困難であり、これまで多くの研究者によって試みられているが、今日まで実現可能な有力な研究成果は報告されていない。本研究ではカイラリティ制御を目標として、マイクロ磁気シミュレーションを用いて磁化反転過程における vortex の振る舞いを明らかにするとともに、カイラリティ制御手法を考案することを試みた。さらに、高い空間分解能で磁気イメージングが可能な PEEM を用いてカイラリティ制御を実証することを行った。

実験方法

マイクロ磁気シミュレーションは OOMMF を用いた。ミクロンからサブミクロンサイズのパーマロイディスクにおいて準静的な磁化反転過程のシミュレーションを行い、vortex のカイラリティとの関係を考察した。メゾスコピック磁性体の作製は電子ビームリソグラフィとリフトオフにより行った。磁区構造観察は試料に外部磁場を印加後、PF-AR NE1B に接続した Elmitec 社製 PEEMSPECTOR を用いて行った。

実験結果と考察

マイクロ磁気シミュレーションの結果からメゾスコピック磁性体の磁化反転過程が 2 種類存在することが分かった。また、2 種類の磁化反転過程とカイラリティの関係を考察することにより、ディスク形状を変化させることで磁化反転モードの制御や vortex 生成の制御が可能になることが分かった。このカイラリティ制御手法を実証するため、電子ビームリソグラフィを用いてパーマロイの制御素子を作製し、NiL-edge で左右円偏光を用いた PEEM 磁気イメージングを行った。図 1 (a) に素子の形状とカイラリティの向きを表した模式図を、(b) に PEEM を用いて得られた磁気イメージを示す。素子の向きと磁場の印加方向の関係をみると 4 つの素子のカイラリティがすべて制御されていることが分かり、この手法によるカイラリティ制御が実現可能であることが実証された。

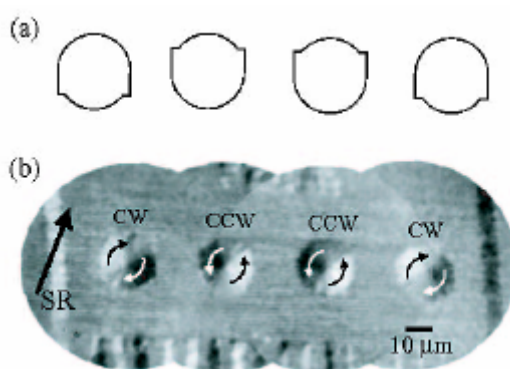


図 1 カイラリティ制御素子の模式図(a)と PEEM による磁気イメージング(b)

O-09

光電子顕微鏡 SPELEEM による架橋単層ナノチューブの観測

NTT 物性基礎研、渡辺 義夫、鈴木 哲

SPELEEM observation of suspended single-walled carbon nanotubes

NTT Basic Research Labs., Yoshio Watanabe, Satoru Suzuki

近年、ナノテクノロジー材料と称するナノメータースケールで制御された種々の人工構造物を作製することが可能になり、新材料・新物性を目指した一つの研究分野 (ナノサイエンス) として飛躍的に拡大している。このナノサイエンスに於いては、言うまでもなくナノメータースケールの位置分解能をもつ解析・評価ツールが不可欠であり、これらナノスケー

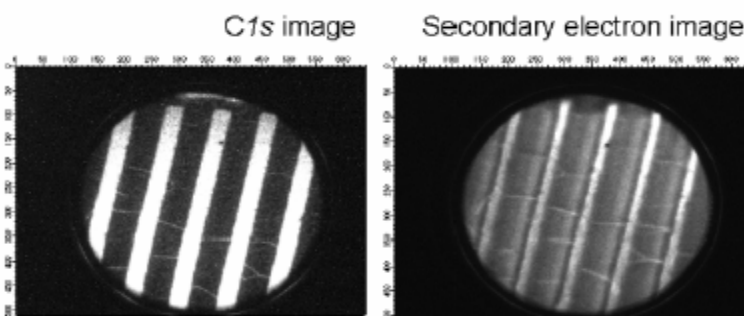


図 1 C1s 光電子顕微鏡像(FoV=5 μm)

図 2 二次電子像(FoV=5 μm)

ル評価ツールを用いて構造物性・電子物性の研究が進められている。今回我々は、ナノスケールでの電子物性計測が可能な放射光光電子分光顕微鏡を用いて、パターン Si 基板上に架橋成長した単層ナノチューブを試料にして光電子顕微鏡観察を行い、孤立単層ナノチューブあるいは単層ナノチューブ束の光電子像を観測したので報告する。Si 基板上に Si のラインパターン（高さ：500 nm、周期：1 mm（凸ライン：400 nm、凹溝：600 nm）をリソグラフィにより形成し、このパターン基板上に Fe 触媒を用いた熱 CVD 法により単層ナノチューブを成長した。放射光光電子顕微鏡測定はイタリアの放射光施設 Sincrotrone Trieste ELETTRA の nanospectroscopy ビームラインで実施した。使用した放射光のエネルギーは 350 eV である。図 1 は C 1s の光電子顕微鏡像である。凸ラインは信号強度の強い明るいコントラストとなっている。また、凹溝において線状に観測される明るいコントラストが架橋ナノチューブに相当している。これらは放射光が試料表面に対して 16 度の角度で入射していることによるシャドー効果で凹溝の底には放射光が照射されていないためである。図 2 は二次電子領域における光電子顕微鏡像である。架橋ナノチューブに相当した場所において明るいコントラストが観測されている。以上、既に我々が試みた走査型の放射光光電子顕微鏡による観測に比べて格段に高空間分解能の像が得られ、孤立ナノチューブあるいはナノチューブ束の光電子顕微鏡観測にはじめて成功した。

O-10 SPring-8 のナノテクノロジー総合支援プロジェクトにおける SPELEEM と PEEM SPECTOR 設置の基本コンセプト

財団法人高輝度光科学研究センター 小林 啓介

Basic Concepts for Introduction of PEEM Systems at SPring-8 in the Fram of

Nanotechnology Suppot Project

SPring-8/JASRI Keisuke Kobayashi

2002 年から SPring-8 では文科省ナノテクノロジー総合支援プロジェクトによる放射光利用研究のユーザー支援を開始した。そこでナノ磁性材料評価や表面ナノ構造の研究、あるいはナノ領域の XAFS、MCD などの研究を支援する目的で電子顕微鏡装置の導入を計画した。この計画を進めるに当たって、以下の方針を立てた。(1) 共同利用軟 X 線ビームライン BL25SU は 1-10Hz で左右円偏光の切り替えが可能で 3d 遷移金属の 2p-3d、および 4f 希土類の 3d-4f 吸収領域をカバーしている。したがって、MCD を利用したナノ磁性の評価、磁区観察などに適している。(2) このビームラインでのユーザー利用は非常に需要圧が高いので、操作の簡便性、スループットを重視した仕様決定を行うべきである。(3) 理研放射光物性研究室が建設している新しい軟 X 線ビームラインは多モード・アンジュレーターを設置し、左右円偏光、および直線偏光の切り換え可能な仕様を持っている。この特長を生かして、精密なナノ研究を展開するための、世界水準を抜く PEEM 実験ステーションを実現する。以上の方針に従って、2002 年度に ELMITEC 社の静電レンズ型光電子顕微鏡 PEEMSPECTOR を主チャンバーに備えた小型 PEEM システムを導入した。2003 年度には同じく ELMITEC 社の LEEM/PEEM-III を導入した。後者については放射光軟 X 線のビームプロファイルに合わせるため縦置き構造に変更した。両システムとも SPring-8 の 2004 A ユーザービームタイムないでナノテク支援課題として立ち上げ実験を行いつつある。

O-11 SPring-8 の SX および HX ビームラインにおける PEEMSPECTOR による XANES と MCD 観察

JASRI、JAERIA、東京大学 B、PFC、産総研 D、東北大学 E、京都大学 F、脇田 高德、松下 智裕、
斎藤 祐児 A、谷内 敏之 B、小野 寛太 C、鈴木 基寛、郭 方准、室 隆桂之、
中村 哲也、秋永 広幸 D、村岡 裕明 E、増野 敦信 F、寺嶋 孝仁 F、
尾嶋 正治 B、小林 啓介

XANES and MCD imaging by PEEMSEPECTOR on the SX and HX beamline at SPring-8

JASRI, JAER^A, U. of Tokyo^B, PF^C, AIST^D, Tohoku U.^E, Kyoto U.^F, Takanori Wakita, Tomohiro Matsushita, Yuji Saitoh^A, Toshiyuki Taniuchi^B, Kanta Ono^C, Motohiro Suzuki, Fang Zhun Guo, Takayuki Muro, Tetsuya Nakamura, Hiroyuki Akinaga^D, Hiroaki Muraoka^E, Atsunobu Masuno^F, Takahito Terashima^F, Masaharu Oshima^B, Keisuke Kobayashi

SPring-8 の BL25SU では、文部科学省・ナノテクノロジー総合支援プロジェクトの枠組みにおいて光電子顕微鏡 (PEEM) システムを開発し、現在試験運用段階にある。このシステムに搭載されている PEEM (PEEMSPECTOR) は、Elmitec 社 (ドイツ) が開発した世界最小サイズの PEEM で、きわめて簡単な操作性にも関わらず、空間分解能は Hg ランプを光源とする場合 35 nm 以下である。放射光を用いるとエネルギー収差による劣化が予想されるものの、空間分解能 100nm 程度の性能が期待される。現在、BL25SU の 1Hz の偏光スイッチングと同期した光電子顕微鏡画像取得システムの構築が完了した。これにより、磁気円二色性(MCD)シグナル強度の空間分布を高速かつ高精度で計測することができるため、磁性物質の磁区構造の温度変化を実時間で観察したり、微弱な磁化の空間分布像を元素選択的に可視化することが可能になると期待できる。本講演では、CoCrPt 垂直磁化膜にストライプ状に段階的に幅を変えて記録された磁区構造を円偏光スイッチングにより観察した結果 (図 1) など、軟 X 線を用いてこれまでに行っている実験の結果、さらに硬 X 線のビームラインに設置して行った実験の結果について報告する。

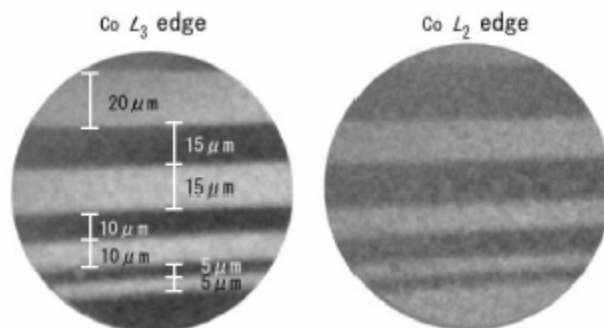


Fig.1 The recorded magnetic domains on a perpendicular magnetic storage media (CoCrPt) combining PEEM with 1 Hz helicity switching of the circularly polarized soft X-ray synchrotron radiation at Co Ledges. The field of view is 100 μm.

O-12

SPELEEM によるテストサンプルの評価

JASRI、大阪電通大^A、東大^B、NTT 基礎研^C、アリゾナ州立大^D

郭 方准、清水 宏^A、脇田 高德、松下 智裕、中口 明彦^A、谷内 敏之^B、日比野浩樹^C、鈴木 哲^C、E.Bauer^D、安江 常夫^A、越川 孝範^A、小林 啓介

Estimation of test sample by SPELEEM

JASRI/SPring-8, Osaka Electro-Communication Univ^A, Univ. of Tokyo^B, NTT-BRL^C, Arizona State Univ.^D

F. Z. Guo, H. Shimizu^A, T. Wakita, T. Matsushita, A. Nakaguchi^A, T. Taniuchi^B, H. Hibino^C, T. Suzuki^C, E.^Bauer^D, T. Yasue^A, T. Koshikawa^A, K. Kobayashi

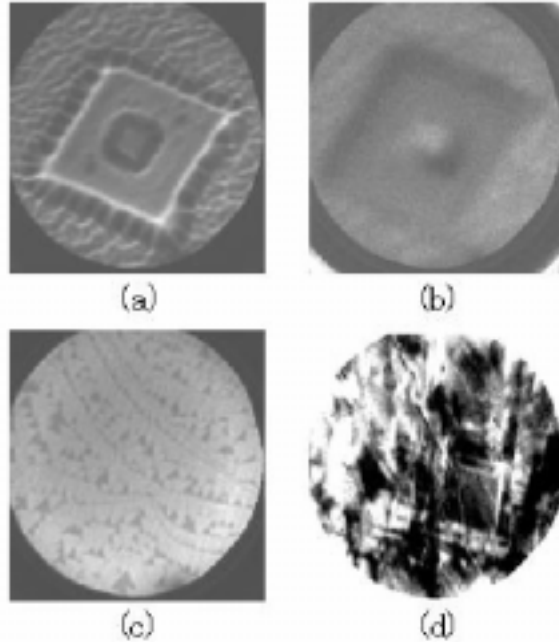
SPELEEM は低速電子顕微鏡 (LEEM)、光電子顕微鏡 (PEEM) 及び分光機能を一体化し、SP ring-8 の高輝度偏光可能な軟 X 線と組み合わせることにより、同分野における世界トップレベルの研究を目指したい。本研究において、SPELEEM の現状及び今後の予定について報告したい。本装置は導入されてから組立と度重なるテストを経て、今年 3 月 22 日から BL27SU で立ち上げ実験を行った。テストサンプル Pt/Co/Au/Cr/Si パターンの MEM 及び PEEM イメージを様々な条件で観測し、装置の動作評価を行った。また、BL27SU では光エネルギーと試料位置を変えることなく直線偏光方向を切り替えられることを利用して、反強磁性体 NiO の Ni の L 吸収端における磁気線二色性による反強磁性ドメインのイメージを取得することも出来た。空間分解能について、Si(111) 清浄表面の LEEM イメージから、現時点では約 40nm と見積もられている。本装置は理研の新しいビームライン BL17SU に設置する予定で進めている。BL27SU における実験はその為の経験蓄積、装置性能確認において重要であった。将来 BL17SU において更なる高分解能を得る為に、集光鏡を設置し、フォトンフラックス密度を上げることにした。今年末、後置集光鏡付きの SPELEEM を BL17SU に組み込

み、表面構造解析、化学状態分析及び磁性体の研究に力を入れたい。

(a),(b). 標準試料 Pt/Co/Au/Cr/Si における MEM イメージと放射光(778.4eV) による XPEEM イメージ。視野径は 5 μ m。

(c). Si 清浄表面の LEEM イメージ (視野径 5 μ m)。ステップ及び原子規則配列の違いによるコントラストが見える。

(d). 反強磁性体 NiO の Ni の L 吸収端における磁気線二色性によるコントラスト (視野径 20 μ m)。



O-13

SPE-LEEM による金属/Si(111)の評価

大阪電通大、JASRI¹、東大²、アリゾナ州立大³

清水 宏、郭 方准¹、脇田 高德¹、中口 明彦、谷内 敏之²、
奥田 太一²、安江 常夫、E. Bauer³、小林 啓介¹、越川 孝範

Investigation of metal/Si(111) with SPE-LEEM

Osaka Electro-Communication Univ., JASRI¹, Univ. of Tokyo², Arizona State Univ.³

H. Shimizu, G. Fangzhun¹, T. Wakita¹, A. Nakaguchi, T. Taniuchi²,

T. Okuda², T. Yasue, E. Bauer³, K. Kobayashi¹, T. Koshikawa

SPring-8、軟 X 線ビームライン BL27SU に設置した SPE-LEEM を用いて、Si(111)上の In 及び Co 薄膜について XPEEM 観察を行ったので報告する。室温下での Si(111) 表面において In を蒸着すると二重層(double layer) の成長後 3 次元島を形成に至る、いわゆる Stranski-Krastanov 型成長をする事が知られており、二重層は 3 次元島よりも基板との結合の影響を受け、化学結合状態が変化していることが予想される。そこで XPEEM 像から測定領域を指定することで二重層と 3 次元島からの光電子スペクトルを観測した。その結果、二重層からの In-3d_{5/2}、3d_{3/2} のピークが運動エネルギーにおいて約 0.1eV 低エネルギー側にシフトしていることが分かった。これは In 二重

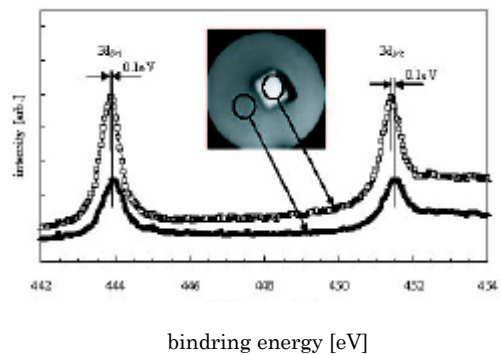


図1 Si(111)上に形成された In 3 次元島と二重層からの MPS スペクトル

図2 図中の PEEM 像の黒丸はスペクトルの測定領域を示す。

層が Si との結合を反映していることを示唆するものである。図 1 に入射エネルギー500eV での In/Si の放出二次電子による XPEEM 像とそれぞれの領域(図中に黒丸で示す) からの XPS スペクトルを示した。横軸のエネルギーは In の束縛エネルギーに換算した。一方 Si(111) 表面上の Co 薄膜は 600°C で CoSi₂ を形成することが知られている。そこで Co を蒸着した Si(111) を 1200°C でアニールした試料を測定した。XPEEM 像から、まずこの隆起は先端が丸みを帯びた円錐であることが分かった。この円錐と他の領域からの L₃ 吸収スペクトルは、両者とも Co が CoSi₂ になっている事を示していたが、現れるピークの強度に若干の変化が現れていることが分かった。これについては現在検討中である。

O-14 光電子回折/ホログラフィによる表面構造解析

東京理科大学、二瓶 好正

Structural Analysis of Solid Surface by Photoelectron Di[®]raction and Holography

Tokyo University of Science, Yoshimasa Nihei

光電子回折は光電子スペクトル強度の角度依存性として発見された。光電子回折は固体の中に発生源を有する電子線回折として理解できるが、その原理が解りやすくかつ形式的にも美しいので、その後速やかに普及した。

光電子回折は、特定の原子の特定の殻準位から放出される光電子をエネルギー弁別して得られるため、元素識別、化学状態識別、スピン状態識別など、他の電子線回折には見られない多くの特徴を有している。つまり、光電子分光の特徴と電子線回折の特徴を併せ持つユニークな方法として世界的に広く認知されている。

一方、ホログラフィーは、1948年ガボール博士 (Dr. Gabor ; 1956年ノーベル物理学賞受賞者) により発見されたが、その原理は電子線の原子による散乱を用いた形式で発表されている。すなわち、光電子回折により生じる回折パターンは、その本来の意味でホログラムなのであり、適切なデータ前処理とフーリエ変換により光電子ホログラフィーとして三次元原子配置が再生されることは当然の結果である。

発表者らは、平成10年から未来開拓学術研究推進事業「光電子スペクトロホログラフィーによる原子レベルでの表面・界面3次元構造評価装置の開発」により、このような観点から合理的に設計された新しい装置の開発を行ってきた。すなわち、複数のエネルギーを有する強力な光源系、光電子の角度分布を効率よく測定ための新アナライザー系の設計・製作である。また、光電子ホログラフィーのための理論・解析手法の開発も行った。

1) 石井秀司ほか、表面科学、22,774 (2001)

2) 白木 将ほか、表面科学、22, 827 (2001) 3) S. Omori, Y. Nihei, E. Rotenberg, J.D. Denlinger, S. D. Kevan, B. P. Tonner, M. A. Van Hove and C. S. Fadley: Phys. Rev. Lett.88, 55504 (2002).

O-15 Wien filter を用いた EXPEEM による Au/Ta の化学状態変化追跡

北大触媒セ¹、物材機構²、日本電子³、KEK - PF⁴、東大理⁵
堤 哲也¹、新美 大伸¹、松平 宣明¹、川崎 貴博¹、朝倉 清高¹、
安福 秀幸²、嘉藤 誠³、北島 義典⁴、岩澤 康裕⁵

Chemical States Analyses of Au on Ta by EXPEEM using Wien Filter

CRC, Hokkaido University¹, NIMS², JEOL³, KEK-PF⁴, Dept. Chem., U of Tokyo⁵
Tetsuya Tsutsumi¹, Hironobu Niimi¹, Nobuaki Matsudaira¹, Takahiro Kawasaki¹, Kiyotaka Asakura¹,
Hideyuki Yasufuku², Makoto Kato³, Yoshinori Kitajima⁴, Yasuhiro Iwasawa⁵

エネルギー選別 X 線光放出電子顕微鏡 (EXPEEM) は元素選別が可能な表面顕微鏡法で、触媒反応などの in-situ 観察

に有効であると期待されている。電極と磁極が直交した Wien filter を用いた EXPEEM 法は、すべてが直線配置となるので、セッティングがやりやすいと言う特徴を持つ。その反面、感度が低いと言う欠点もある。そこで、Ta 酸化物表面に Au を蒸着した系の元素および化学状態選別画像の取得を試みた。

実験

実験は、KEK-PF BL2A においてアンジュレータ放射光を用いた EXPEEM 測定の試みを行った。分光結晶は Ge(111) を用いた。励起エネルギーは 2300 eV である。EXPEEM 装置は既報の物を用いた。Au を外部で自然酸化した Ta 基板上に蒸着し、装置に導入した。導入後、Ar スパッタリングにより清浄化した。パターン周期が 62.5 μm である。

結果

Wien filter は直線配置であるため、Wien filter を動作させずに結像し、その後 Wien filter に電場と磁場を少しずつ印加していくことで、強度の強い 0eV 付近の 2 次電子ピークを結像させる。その後、サンプルバイアスを変化させ、所定の光電子ピークが Wien filter を通るようにする。従来は結像条件の大きく異なるように、0 eV 付近の光電子を結像してきた。[4] しかし、バックグラウンドが大きく、コントラストの鮮明でない像しか得られなかった。今回は、600 eV 程度の高運動エネルギー光電子を選別した。これにより、バックグラウンドの割合を小さくすることができ、高いコントラストの像を得ることに成功した。Fig.1(a) は $E_k = 0$ eV 付近の二次電子を選別したものである。Fig.1(b) は Ta_{3d_{5/2}} 軌道からの光電子に相当する $E_k = 600$ eV 付近の電子を選別し 1 時間積算したもので、Ta 基板が明るくなっている。また選別する運動エネルギーを 600 eV 付近で 3 eV ずつ変えていくと Fig.1(c) のようになり、光電子ピーク付近において Ta の領域が明るくなる様子が観測された。これにより実際のピークは $E_k = 603$ eV 付近にあることがわかる。このように光電子のエネルギーを識別して測定することで、EXPEEM を用いて化学状態の違いを画像化できることが示唆された。さらに Wien filter を改造し、高感度化することで、より高い時間分解能と高い空間分解能が達成できると期待される。

[1] H. Yasufuku, Y. Ohminami, T. Tsutsumi, K. Asakura, M. Kato, Y. Sakai, Y. Kitajima and Y. Iwasawa, *Chem.Lett.*, 842-843 (2002).

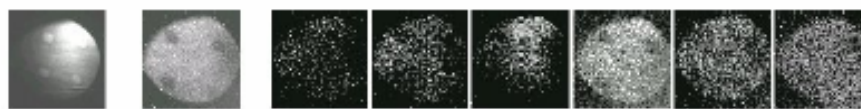


Fig.1 Au/Ta エネルギー選別像、X 線エネルギー 2330eV、エネルギースリット約 5eV

O-16 SPring-8 BL15 における高エネルギー X 線励起の XPEEM の開発

物質・材料研究機構、吉川 英樹、安福 秀幸、木村 昌弘、福島 整

Development of high energy X-ray PEEM at SPring-8 BL15

National Institute for Materials Science, H. Yoshikawa, H. Yasufuku, M. Kimura, S. Fukushima

X 線光電子放射顕微鏡 (X-ray photoemission electron microscopy: XPEEM) は、エネルギー分析器を内蔵することで顕微分光として機能させることが可能であり、実際の材料解析ツールとして期待されます。本研究においては、XPEEM の励起光として高エネルギーの X 線を用いておりますが、それは次の 2 つの特長を持ちます。内殻準位の電子を使った結像では、電子の運動エネルギーを大きくすることができ、よりバルク敏感のイメージングが可能となります。X 線励起の 2 次電子を使った結像では、X 線のエネルギーを掃引することで X-ray absorption fine structure (XAFS) スペクトルを得ることが出来ますが、高エネルギー X 線を使うことで深い内殻準位を励起することができますので複数の元素における吸収スペクトルの互いのかぶりを避けることができます。なお、低速の 2 次電子は脱出深さが長いことから、上記のだけでなく、についてもバルク敏感な手法と言えます。X 線のエネルギーを変化させることによって、光電子のエネルギーを

変えバルク敏感と表面敏感を使い分けることが可能ですので、最終的には表面の2次元分析法から3次元分析法への展開も期待されます。軟X線～硬X線領域の放射光を扱えるSPRING-8BL15XUにおいてXPEEMの開発を行っており、本装置では試料の電界強度を制御できる電場磁場重畳型レンズを搭載し、2次電子から数keV領域の光電子の結像ができるシステムとなっております。2次電子を使ったDVDのXANES測定や高エネルギー光電子を使った結像の結果について紹介致します。

P-01 放射光PEEMによる、Cr/NiO(100)界面の磁気構造観察

東大物性研、千葉大自然^a、孫海林、遠山尚秀^a、上野信雄^a、原沢あゆみ、奥田太一、木下豊彦

Observation of the interface magnetic structures of Cr/Ni(100) by SRPEEM

ISSP U. Tokyo, Chiba Univ.^a, Hailin Sun, Takahide Tohyama^a, Nobuo Ueno^a, Ayumi Harasawa, Taichi Okuda and Toyohiko Kinoshita

放射光を利用したPEEMでは、磁気円および線2色性を用いた元素選択的な磁区ドメイン観察が可能である。このことは薄膜や多層膜の磁気構造を調べる上で、非常にメリットが大きい。われわれは、反強磁性NiO(100)表面の上に、膜厚を変化させたCrを楔状に蒸着し、その界面に現れる磁気構造の観察を行った。図にPEEMで観察したトポ像、および、NiOに現れた反強磁性磁区ドメインを示す。Crの膜厚の変化に伴って、磁区コントラストも変化している様子がわかる。われわれは、この現象を以下のように解釈している。すなわち、Cr膜は、層間で、反強磁性的な結合を示すことが知られているが、奇数原子層の膜厚の際にはCrの正味の磁気モーメントが存在し、偶数層の場合には存在しないことと関係しているものと考えている。奇数層におけるCrのモーメントがNiOの反強磁性磁気モーメントとカップルし、一方偶数層の場合にはそれが無いことにより、コントラストに変化が起こったものとして説明が可能である。しかしながら、Crそのものの磁区ドメインは観察されなかった。講演では、この理由や、界面における反応などそのほかの詳細について発表する。

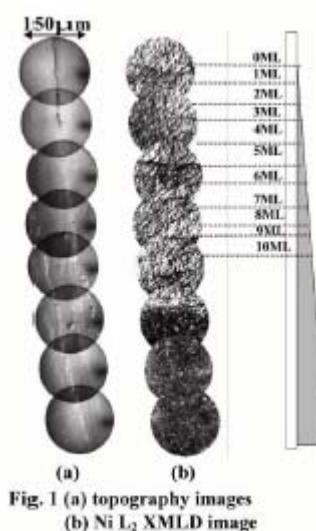


Fig. 1 (a) topography images (b) Ni L₂ XMLD image

P-02 焦点位置変調法を用いたPEEM像の分解能向上

大阪電通大、アリゾナ州立大¹、越川孝範、清水宏、天川良太、中口明彦、高橋宏彰、安江常夫、生田孝、Ernst Bauer¹

Improvement of the lateral resolution of PEEM with the moving defocus method

Osaka Electro-Communication Univ., Arizona State Univ.¹, T. Koshikawa, H. Shimizu, R. Amakawa, A. Nakaguchi, H. Takahashi, T. Yasue, E. Bauer¹

投影型の光電子顕微鏡 (Photo Emission Electron Microscopy: PEEM) は時間分解能が高いという特徴を持ち、薄膜成長過程の動的観察などに適している。更に、高輝度放射光を利用することで局所的な化学結合状態などの情報を得ることが可能である。本研究ではPEEMの空間分解能の向上を図り、それらの詳細な情報を得ることを目的としている。高分解能化における本質的な問題は電子光学系の収差であり、現在、複数のグループが独自の手法により収差の低減を試みている。しかしながら、装置の複雑化や限定された観測条件などの理由から進行状況は困難なものとなっている。そこで本

研究では、既に透過型電子顕微鏡で明瞭な原子像の観察に成功している焦点位置変調法を応用し、収差の低減を図った。水銀ランプを用いる基礎的な実験において、空間分解能を評価するには視野径 $2\mu\text{m}$ 程度の観察が必要となるが既製の水銀ランプでは強度不足の為、観察が事実上不可能であった。そこで、本研究では無収差レンズ系を用いた高輝度水銀ランプを開発し、これを適用した基礎的な実験結果では、図 1 に示すように PEEM 像の改善が確認された。講演では、装置の概要と基礎的な実験結果、高分解能化に向けた問題点などについて報告する。

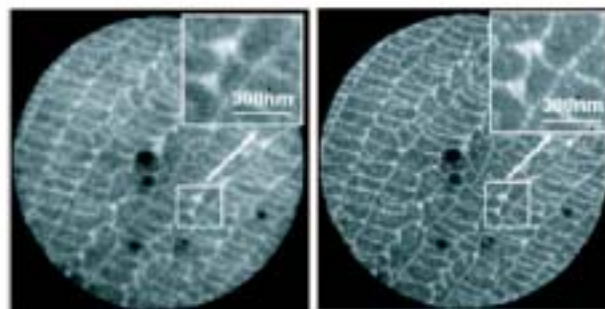


図 1 焦点位置変調法による収差除去後の PEEM 像。
左図が補正前、右図が補正後の像。視野径はいずれも $4\mu\text{m}$ 。

P-03 EXPEEM 用エネルギーアナライザとしての収差補正された多極子型 Wienfilter の設計

北大触媒研¹、日本電子²、CREST, JST³

新美 大伸¹、嘉藤 誠²、川崎 貴博¹、工藤 政都²、堤 哲也¹、鈴木 秀士¹、田 旺帝^{1,3}、朝倉 清高¹

A Design of the Aberration Corrected Multipole Wien Filter for the EXPEEM Energy Analyzer

CRC, Hokkaido University¹, JEOL², CREST, JST³

Hironobu Niimi¹, Makoto Kato², Takahiro Kawasaki¹, Masato Kudo², Tetsuya Tsutsumi¹,
Shushi Suzuki¹, Wang-Jae Chun^{1,3}, Kiyotaka Asakura¹

エネルギー選別型 X 線光電子放出顕微鏡 (EXPEEM) は内殻電子を用いて表面の化学状態のリアルタイムマッピングが可能のため、化学反応のメカニズムを追跡できる手法として注目を集めている。われわれは、操作性を向上させるため、静電半球型エネルギーアナライザの代わりに Wienfilter 型エネルギーアナライザによる EXPEEM 像取得を試みている。この Wien filter では、ローレンツ力 $-e\mathbf{v} \times \mathbf{B}$ と静電気力 $-e\mathbf{E}$ との釣り合い条件 (Wien 条件: $\mathbf{E} = \mathbf{v} \times \mathbf{B}$) を用いて、電子の運動エネルギー $1/2mv^2$ を選別するので、光軸が直線になる特徴がある。しかし、磁極がアナライザの大部分を占めるために大型化が容易ではなく、静電半球型アナライザに比べ、感度が低くなり、エネルギー選別像を観測できるものの長時間のため込みが必要になる。そこで我々は磁極をコイルに置き換え、取込角を増加させるとともに、収差を補正した多極子型 Wien filter を用いることで、エネルギー分解能を一定に保ちながら、高感度化が可能であるかを検討してきた。本稿では、収差補正された理想的な多極子型 Wien filter によりどの程度の感度向上が見込まれるかを計算した。また、この電磁場を模擬するのに必要な電極、磁極の数の決定及びそのときにどの程度の感度が減少するかを評価した。収差補正の条件として我々は嘉藤によって求められた 3 次の開口収差までを消去する条件を用いた。この条件は電場と磁場のポテンシャルの 8 極子成分までを制御する必要がある。まず理想的な場合として光軸方向の電磁場は一様で、多重極展開によって与えられる電磁場を使って軌道計算を行った。さらに 3 次元の電荷重畳法を用いて実際に電磁極を配置して生じる電磁場を求め、その電磁場を使って軌道計算を行った。その結果、3 次の開口収差までを消去するために解析的には少なくとも 8 個の電磁極が必要であるが、実際の電磁極を配置 (図 1 参照) して、理想的な電磁場を模擬する場合には、12 個の電磁極が必要であることがわかった。理想的な電磁場により収差補正を行った Wien filter の感度は、収差補正をせず、Stigmatic 条件だけを満足した現在の Wien filter に比べて、約 26 倍向上することがわかった。さらに、実際に 12 極の電磁極を配置して理想的な電磁場を模擬した場合、収差補正を施した理想的な電磁場に比べて、70% 程度の感度減少ですむことが分かった。詳細について講演で述べることにする。

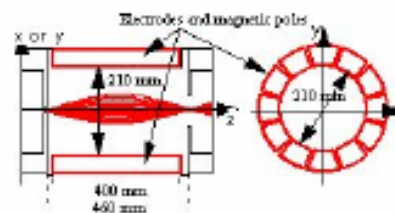


図 1 電磁極の配置とエネルギー分散方向の電子軌道

P-04 PEEM を用いた仕事関数計測 ; soot, graphite, fullaren, CNT

名古屋工業大学、李 万燕、後藤 敬典、大阪工業大学*、志水 隆一

Work Function Measurements by PEEM ; soot, graphite, fullaren, CNT

*Nagoya Institute of Technology, W. Y. Li, K. Goto, *Osaka Institute of Technology, R. Shimizu*

我々はオージェ電子スペクトル(AES)の絶対計測を研究しているが、エネルギー軸の校正のためには分光器と試料の仕事関数が必要となる。仕事関数値を光電子放射特性より得るために、改良した特殊光電子顕微鏡(PEEM; Staib Instrument, Model 350; 倍率約 10)を用いて、紫外線(重水素ランプ、3.1~6.9eV)を光源とした。PEEMは観測領域のみ情報を検出するので局所の仕事関数計測に最適である。炭素は安定性と2次電子利得の低いことから電子分光器のコーティング材料として適していると思われ、soot, graphite, fullaren, CNTの特性を測定した。特に、CNTの場合は、400V/1cmの電場中でもEFが発生し、普通の試料ホルダーは使えない。このような凹凸の激しい試料でも静電シルードをつけたホルダーを試作して、対物レンズの電場を遮断して、CNTの仕事関数の測定ができた。このPEEMではfullarenとCNT吸着と脱離過程にも観測できる。soot, graphite, C60, C70, CNTのそれぞれの仕事関数値は4.40eV, 4.56eV, 5.65~6.12eV, 4.49~4.80eV, 4.1~4.3eVであった。sootの仕事関数は最も安定であり、CMAコーティング物質として適当であることが分かった。

P-05 W表面をZr酸化物で修飾した時の仕事関数変化

室蘭工業大学、電気電子工学科、南 勝利、吉田 将和、仲野 祐輔、山根 康一、中根 英章、安達 洋

Change of work function on the W surface covered with a Zr oxide

Muroran Institute of Technology, Department of electrical and electronic engineering, K. Minami, M. Yoshida, Y. Nakano, K. Yamane, H. Nakane, H. Adachi

我々は、針状に加工したWの(100)面にZr酸化物を拡散することで生じる低仕事関数化を検討している。^[1]

また、Zrを真空蒸着し特定のプロセスを経ることでW(100)単結晶平板上にZrO/W(100)を形成し、同じく2.7eVの低仕事関数を実現している。^[2]

今回、我々は多結晶W箔上にZrO₂またはZrH₂粒子を塗布した試料で同じく低仕事関数面を形成することを試み、作製した試料を光電子放射顕微鏡(PEEM)により観察した。

その結果、図1に見られるような光電子像を観察し、特定の結晶面において仕事関数が低下していることを観察した。

また、ハロゲンランプと干渉フィルターを用いることで、形成されたZrO/W(100)と思われる面の仕事関数が約2.7eVであることを確認した。

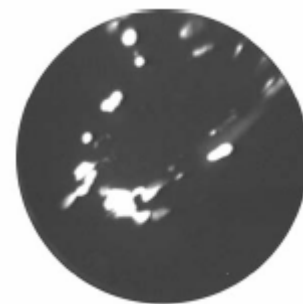


図1 W箔上に形成された低仕事関数面の光電子像、観察視野: 500 μm φ

参考文献

[1] L. R. Danielson and L. W. Swanson, Surf. Sci. 88, 14 (1979)

[2] S. Kawata, S. Tahara, H. Satoh, H. Nakane, and H. Adachi, Appl. Sur. Sci. 111, 96 (1997)

P-06 PEEM と SXFS による金属 (薄膜) / SiC (基板) 接合系の表面構造

岡山大理 平井 正明、亀澤 智博、アザティアン・セルゲイ、安 振連、日下 征彦、岩見 基弘

Surface Layer Study of Metal(Film)/SiC(Substrate) System by PEEM and SXFS

Research Laboratory for Surface Science, Okayama University M. Hirai, C. Kamezawa, S. Azatyan, Z. An, M. Kusaka and M. Iwami

We have studied surface layer electronic structure of transition metal film (Ti, Cu)/SiC (substrate) contact systems by using a photoemission electron microscopy (PEEM) and a soft X-ray fluorescence spectroscopy (SXFS). Surface micro- and/or nano-structures are observed from PEEM images. SXF spectra include information of either an element or symmetry of a wave function. The SXFS study using a light source of a synchrotron radiation is a very powerful tool to a nondestructive buried interface and surface layer analysis of a thin-film on substrate contact system.

Silicon carbide (SiC) is a candidate material for hard electronics such as high-power, high temperature and high-radiation field because of high electric breakdown field, high saturation electron velocity and tolerance to high-temperature and radioactive field compared with silicon which is a popular electronic material. The study of silicides and/or carbide/graphite produced from transition metal/SiC contact system is fundamentally important from a view point of improvement for electronic devices such as Schottky and ohmic contacts. Among transition metals titanium (Ti) is interesting for electrodes of a low resistance contact. Copper (Cu) is interesting as noble metals.

Specimens of Ti(40nm)/SiC contact system were annealed up to 850° C. The surface morphology has been changed into layered structures. The topmost layer contains some island-structures. The Si L_{2,3} fluorescence spectra can be explained by considering formation of titanium silicides. Also, the C K α fluorescence spectrum showed the existence of graphite-like carbon.

Specimens of Cu(30nm)/SiC contact system were annealed up to 850° C. The surface morphology has been changed in agglomerated Cu structures.

P-07 HiSOR における PEEM プロジェクトの現状 II

HiSOR、小嗣 真人、木村 昭夫、生天目 博文、谷口 雅樹

The status of photoemission electron microscope (PEEM) project for HiSOR (II)

HiSOR, M. Kotsugi, A. Kimura, H. Namatame, M. Taniguchi

我々は広島大学放射光科学研究センター(HiSOR)における光電子顕微鏡(PEEM)建設プロジェクトの現状を報告する。この十年間、様々な光電子顕微鏡を用いた有用な研究成果が多数報告されている。特に XMCD と組み合わせる事により磁区ドメインの観察や、表面・界面の磁気モーメントの議論をピクセル単位で行うことができる。また元素選択励起を行うことで、各層の磁区構造を独立に測定する事が可能である。ゆえに PEEM は放射光利用において最も注目を集めている研究手法の一つである。ドイツやアメリカでは 10 年以上前から盛んに取り組んでおり、最近日本でも、東大物性研、広島大学、SPring-8 などが取り組みを始めている。温度は磁性にとって極めて重要な要素であるが、PEEM における低温冷却はその技術的困難から、これまで十分に



なされていなかった。一般に静磁場レンズの PEEM は試料に約 20kV の高電圧を印加する必要があり、試料絶縁のためマニピュレータの構造が複雑になる。さらに冷凍機からの振動や僅かな温度の変化による試料位置の変動が像の分解能を下げる一因となる。しかしながら我々の所持している PEEM は静電レンズ型で試料電位は 0V 近傍である。ゆえにマニピュレータの構造がシンプルになり He 冷凍機の組み込みも容易となる。また剛性が向上するため振動による位置分解能の低下を抑える事ができる。また PEEM に阻止電位型エネルギーフィルターを組み合わせることで、運動量分解した二次元光電子角度放出パターンを、空間およびエネルギー分解しながら測定することが可能である。これは PEEM の新たな使い方を提案するものである。一般的な PEEM の使用法は主に試料表面の実空間の顕微像を得るものであった。通常、対物レンズの電場によって、フォーカル面、イメージ面にはそれぞれ運動量空間、実空間の像が投影される。通常の実空間分解モードではイメージ面を拡大するよう投影レンズの電位は設定される。一方フォーカル面を拡大するよう設定することで、運動量空間像いわゆる光電子放出角度分布を投影することが可能である。我々の PEEM はそれぞれの面にアパチャーを装備しており、アパチャーを絞る事でそれぞれの空間上の光電子を選択的に抜き出すことができる。そして阻止電位型エネルギーアナライザーによって光電子の運動エネルギー分析を行う。これにより、空間分解、運動量分解、エネルギー分解を同時に同一の装置で行うことができる。また HiSOR の低エネルギーフォトンの特長を生かし、低エネルギーフォトンを利用した PEEM 測定を行う予定である。仕事関数は電子を真空中に取り出すために必要なエネルギーであり、定義の上では定数で与えられるが、ステップやキンクといった平坦でない場所においては定数と成り得ず、表面構造の欠陥を反映した不連続値をとる。ゆえに光エネルギーを仕事関数近傍に設定する事で、仕事関数の窪んだ領域からのみ光電子放出が起こり、表面構造を反映した情報が得られる。また仕事関数は各元素や面指数に応じた固有値であることから、元素選択的な表面構造解析を行うことができる。本年 3 月にチャンバーが納入され現在も調整を行っている。初期ベークの結果 3×10^{-10} Torr の真空度を得ることができた。本セミナーにおいては上記装置の基本理念とその建設の現状について報告する予定である。

P-08 PEEM による In/PTCDA/MoS₂ 系の In 金属異方性拡散

千葉大院、尾上 美紀*、塩野入 正和、解良 聡、奥平 幸司、上野 信雄 (*現理研)

Anisotropic diffusion of In in In/PTCDA/MoS₂ system by PEEM

Chiba Univ., M. Onoue*, M. Shionoiri, S. Kera, K. K. Okudaira and N. Ueno (*RIKEN)

有機分子を用いたデバイスへの関心が高まる現在、有機/金属界面で生じる化学反応や分子・原子の拡散・凝集過程について理解することは必要かつ重要な課題である。本研究では反応を含む有機/金属界面を作製し、PEEM によって金属の拡散現象の観測を行った。

実験は Fig.1 に示すような、3,4,9,10-perylene tetracarboxylic dianhydride (PTCDA) 薄膜上に Indium(In) 微細構造を持つ試料を作製し、PEEM でその場観測した。PTCDA と In は超高真空下で容易に反応することが報告されている^[1]。本研究に用いた PEEM の光源は D₂ ランプ ($h\nu < 6.8\text{eV}$) 及び HgXe ランプ ($h\nu < 5.4\text{eV}$) である。Fig.2 に In/PTCDA/MoS₂ 系の PEEM 像を示す。周期的な明暗の三角形構造が観測された。作成した In のパターン形状は正方形であり、PEEM 像は In が 3 方向へ拡散したことを示している。また、三角形構造の表面には様々なイオン化エネルギーを持つ物質が分布していることも PEEM 像より確認できた。さらに、このような 3 方向への In 金属の拡散は、In 微細構造を直接 MoS₂ 基板に作製した場合や、In の代わりに Au の微細構造を作製した場合、下地基板に GeS を用いた場合には観測されなかった。これらの結果は、In の 3 方向拡散が(1)In と PTCDA の化学反応(2)下地基板によって決定される PTCDA 膜の構造によって生じることを示唆している。

[1] Y. Hirose et al., Phys. Rev. B 54 (1996) 13748. Y. Azuma et al., J. Appl. Phys. 87 (2000) 766.

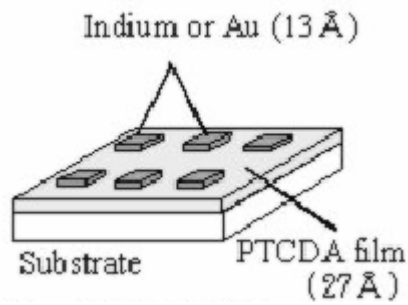


Fig.1 試料模式図
 基盤上に PTCDA 薄膜を作成し、その膜の上に正方形の Indium パターンを形成。
 In/PTCDA/MoS₂ の他、In/MoS₂ や Au/PTCDA/MoS₂、In/PTCDA/GeS の観測を行った。

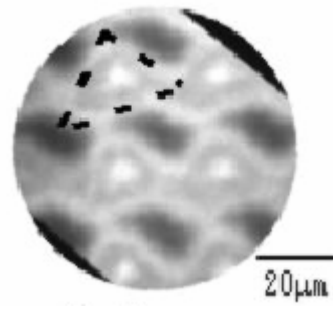


Fig.2
 In/PTCDA/MoS₂ の HgXe-PEEM 像
 $h\nu < 5.4\text{eV}$
 積算時間：2min

索引

朝倉 清高	O-15
尾上 美紀	P-08
郭 方准	O-12
木下 豊彦	O-07
越川 孝範	O-01
小嗣 真人	O-06 P-07
小林 啓介	O-10
清水 宏	O-13
孫 海林	P-01
谷内 敏之	O-08
大門 寛	O-04
中口 明彦	P-02
新美 大伸	P-03
二瓶 好正	O-14
日比野浩樹	O-02
平井 正明	P-06
南 勝利	P-05
村田 英一	O-05
安江 常夫	O-03
吉川 英樹	O-16
脇田 高德	O-11
渡辺 義夫	O-09
後藤 敬典	P-04

物性研究所短期研究会

遍歴系の特異な磁性と磁性材料への応用

日時：2004年5月13日(木)～15日(土)

会場：東京大学物性研究所6階大講義室

研究会世話人：後藤 恒昭 (東大物性研)、榊原 俊郎 (東大物性研)、上床 美也 (東大物性研)
深道 和明 (東北大院工)、小山 佳一 (東北大金研)、鹿又 武 (東北学院大工)
和田 裕文 (京大院工)、高橋 慶紀 (兵庫県立大院物質理)、山田 鏗二 (信州大学理)

遷移金属化合物における遍歴電子磁性の研究において、1970年から1980年にかけて我が国の研究者を中心に実験、理論の両面において大きな進展がもたらされ、各種金属間化合物における磁性研究の最近の発展へとつながった。こうした最近の発展は、強磁場、高圧の極限環境下における測定技術の飛躍的発展に支えられた実験的研究と試料作成技術の向上に負うところが大きい。また、バンド計算により、多くの特異な磁性の解明がスピン揺らぎの効果を取り入れて行われるようになり、実験と理論の密接な連携の下で遍歴電子系の磁性研究が急速に発展した。他方、遍歴電子系の基礎研究から発展した多くの応用研究が近年盛んに行われるようになってきている。磁歪材料や巨大な磁気熱量効果を示す磁性材料のみならず、強磁性形状記憶合金、熱電材料、ハーフメタリック等は遍歴電子磁性の基礎研究から発展した応用研究であると言っても過言ではない。後藤恒昭先生の退官を機に、こうした基礎研究と応用研究との連携を更に深めるため、その現状を整理し、今後の進むべき方向を模索することを目的に短期研究会を開催した。海外からの参加者も含め、基礎研究から応用研究に至る幅広い分野の研究者、大学院生が多数参加し、予定時間を大幅に延長して活発な討論が行われた。

プログラム

5月13日(木)

13:00-13:05	開 会	山田 鏗二
13:05-13:35	磁場・圧力下における遍歴電子メタ磁性体 MnSi の磁氣的、電氣的振舞い	東大物性研 後藤 恒昭
13:35-14:05	MnFe(P,As) for magnetic refrigeration Amsterdam Univ., O. Tegus, L. Zhang, E. Brück, K.H.J. Buschow and F.R. de Boer	
14:05-14:35	Magnetoelasticity of unique uranium magnets UCoAl and UFe ₂	ASCR, A.V. Andreev
14:35-15:05	遍歴電子メタ磁性	信州大理 山田 鏗二
15:05-15:20	休 憩	
15:20-15:50	Fe ₂ VAl 系合金の電子物性と熱電材料への応用	名大院工 水谷宇一郎
15:50-16:20	充填スクッテルダイト化合物における熱電材料としての可能性	徳島大総合科学 菅原 仁
16:20-16:50	YbMn ₂ Ge ₂ の圧力誘起価数転移と特異な反強磁性	東大物性研 上床 美也
16:50-17:20	局在から遍歴磁性へ価数転移する Yb 化合物における圧力安定化局在相の弱強磁性基底状態	富山大理 光田 暁弘
17:20-17:50	金属間化合物を母体とする水素化物の遍歴電子磁性	横国大院工 山口 益弘
18:00-	懇親会	

5月14日(金)

09:00-09:30	巨大磁気体積効果を持つ $\text{CrTe}_{1-x}\text{Z}_x$ ($\text{Z}=\text{Se},\text{Sb}$)の磁性	東北学院工	鹿又 武
09:30-10:00	$\text{Co}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ と $\text{MnAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ の磁気熱量効果	京大院工	和田 裕文
10:00-10:30	遍歴電子メタ磁性体 $\text{La}(\text{Fe}_x\text{Si}_{1-x})_{13}$ および水素化物の磁気熱量効果	東北大院工	深道 和明
10:30-11:00	遍歴電子メタ磁性系の磁気弾性効果	慶應理工	田島 圭介
11:00-11:10	休 憩		
11:10-11:40	遍歴電子メタ磁性における有限温度効果	東大物性研	三田村裕幸
11:40-12:10	$\text{R}(\text{Mn},\text{T})_{12}$ の磁性 ($\text{R}:\text{Y},\text{Gd}, \text{T}: \text{Fe},\text{Co}$ など)	信州大理	天児 寧
12:10-12:40	CeRu_2Si_2 のメタ磁性	東大物性研	榊原 俊郎
12:40-13:30	昼 食		
13:30-14:00	強磁性ホイスラー合金の巨大双晶磁歪	東北大院工	藤田 麻哉
14:00-14:30	遍歴電子強磁性体 Co_2TiGa における核磁気緩和	龍谷大理工	西原 弘訓
14:30-15:00	Mn 系金属間化合物の構造相転移	東北大金研	小山 佳一
15:00-15:30	L1_0 型 Mn 合金の電子状態とスピントロニクス	東北大院工	梅津 理恵
15:30-15:40	休 憩		
15:40-16:10	$\text{MnAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ の磁場誘起構造相転移	新潟大院自然科学	石川 文洋
16:10-16:30	MnAs 及び CrTe の磁性	信州大院工	中田 謙吾
16:30-17:00	遍歴電子強磁性体のエントロピーおよび比熱の温度、磁場依存性	兵庫県立大院物質理	高橋 慶紀
17:00-17:30	3d 電子系の磁気励起と交換定数	東北大院工	佐久間昭正
17:30-18:00	1次元系 YMn_4Al_8 と 3次元フラストレート系 YMn_2 の類似性	兵庫県立大院物質理	中村 裕之

5月15日(土)

09:00-09:30	ハーフメタリック反強磁性	阪大院理	赤井 久純
09:30-10:00	ハーフメタル・ホイスラー合金の物質設計	東北大電通研	白井 正文
10:00-10:30	ハーフメタルと強磁性トンネル接合	名大院工	松井 正顕
10:30-11:00	Co_2MnGe のスピン・軌道磁気モーメントおよびそのハーフメタル性の検証	広大院理	木村 昭夫
11:00-11:10	休 憩		
11:10-11:40	高圧力下 FeS の半導体-金属-半導体転移	兵庫県立大院物質理	小林 寿夫
11:40-12:10	形状記憶合金 TiNi 中の第三遷移元素のサイト優先性	鹿児島大理	石田 尚治、藤井 伸平
		鹿児島大院理工	水谷 聡
		東大名誉教授	浅野 撰郎
12:10-12:40	内殻 MCD から見た遍歴磁性体	東大院新領域	藤森 淳
12:40-13:30	昼 食		
13:30-14:00	遍歴電子磁性と超伝導	京大院理	吉村 一良
14:00-14:30	遍歴弱強磁性と超伝導の掛け橋: Ni_3AlB	産業技術総合研	長谷 泉
14:30-15:00	梯子格子銅酸化物の磁性と超伝導	京大院人間環境	藤原 直樹
15:00-15:30	高圧下における磁性金属の超伝導探索	阪大極限センター	清水 克哉
15:30-16:00	Metal-Insulator Transition of the Hubbard Chain with Next-Nearest-Neighbor Hopping	兵庫県立大院物質理	中野 博生
16:00-16:05	閉 会		
			鹿又 武

磁場・圧力下における遍歴電子メタ磁性体 MnSi の磁氣的、電氣的振舞

東大物性研 後藤 恒昭

MnSi は典型的な遍歴電子強磁性体と考えられているが、Dzyaloshinski-Moriya 相互作用が存在するために $T_C = 29$ K 以下では、ヘリカル状態が実現される^[1]。磁気転移は 2 次であるが、圧力を加えると $P_t = 1.2$ GPa で 1 次に変化し、 $P_c = 1.5$ GPa で磁性が消失、非フェルミ液体の振舞が観測されている^[2]。小山らは 1.54 GPa において磁化過程を測定し、弱磁場中で非磁性状態からコニカル状態へのメタ磁性転移を観測した^[3]。本研究では、磁場・圧力下において MnSi の磁氣のおよび電氣的な性質を詳細に調べた。

低温・高圧下において MnSi に磁場を加えると、 $P < P_c$ ではヘリカル→コニカル→強磁性への逐次相転移が、 $P_c < P$ では非磁性→コニカル状態→強磁性へのメタ磁性と磁気相転移が観測された。また $P_c \ll P$ では非磁性→強磁性への典型的なメタ磁性転移が観測された。 B - T 磁気相図の形状は圧力に依存し、四つのタイプが見出された。 $B = 0$ における P - T 磁気相図はヘリカル磁性、メタ磁性および常磁性の領域からなり、相図の形状は強磁性、メタ磁性および常磁性からなる遍歴電子メタ磁性体の相図と一致する

一方、低温の磁気抵抗は $P_c < P$ においてメタ磁性転移領域でブロードなピークを示すと共にヒステリシスを持つことが見出された。弱磁場中で観測された正の磁気抵抗は非磁性の Mn とメタ転移によって生じた磁氣的な Mn が混在するために生じると考えられる。ゼロ磁場中で観測された非フェルミ液体の振舞は磁場を加えるとフェルミ液体の振舞に変化するが、この変化はメタ磁性転移と密接な関係があることが初めて明らかにされた。

[1] Y. Ishikawa *et al*, Solid State Commun. 19 (1976) 525.

[2] C. Pfleiderer *et al*, Phys. Rev. B 55 (1997) 8330.

[3] Koyama, T. Goto, T. Kanomata and T. Note, Phys. Rev. B 62 (2000) 986.

MnFe(P, As) for magnetic refrigeration

O. Tegus, L. Zhang, E. Brück, K.H.J. Buschow and F.R. de Boer

Van der Waals-Zeeman Instituut, Universiteit van Amsterdam, 1018 XE Amsterdam, The Netherlands

Recently, it has been discovered that transition-metal-based compounds of the type $\text{MnFeP}_{1-x}\text{As}_x$ exhibit a very large magnetocaloric effect (MCE), also in low magnetic fields. By varying the value of x , the MCE can be tuned to be maximal at temperatures between 160 and 330 K. The availability of these materials with very large MCE around room temperature and in a low field that can be generated by permanent magnets is a promising step towards technological and commercial application of the MCE in room-temperature magnetic refrigerators. The magnetic and magneto-caloric properties of the itinerant-electron $\text{MnFeP}_{1-x}\text{As}_x$ magnets will be presented and compared with the properties of the rare-earth localized-moment systems Gd metal and the giant-MCE material $\text{Gd}_5(\text{Ge},\text{Si})_4$.

Magnetoelasticity of unique uranium magnets UCoAl and UFe₂

A.V. Andreev

Institute of Physics ASCR, 18221 Prague, Czech Republic

The specific metamagnetic behavior of UCoAl is easily modified to ferromagnetism or conventional paramagnetism by doping with suitable elements. The influence on magnetism of simultaneous substitution of Co by equal amounts

of Fe and Ni has been studied at ambient and high pressures on the $\text{UCo}_{1-z}(\text{Ni}_{0.5}\text{Fe}_{0.5})_z\text{Al}$ single crystals with $z = 0, 0.1$ and 1. Although the number of 3d electrons remains unchanged, the stabilization of ferromagnetism is observed. This is attributed to the anisotropic change in lattice parameters upon substitution.

UFe_2 exhibits compensations of the spin and the orbital moments of U, on one side, and of the cubic magnetic anisotropy and the magnetoelastic contribution to the magnetic anisotropy, on another side. The latter leads to very unusual coexistence of relatively low anisotropy with giant anisotropic magnetostriction. We destroyed the delicate state of UFe_2 by dilution of the U sublattice by Lu and observed a spin reorientation from the $\langle 111 \rangle$ to the $\langle 100 \rangle$ easy axis. $\text{U}_{0.8}\text{Lu}_{0.2}\text{Fe}_2$ exhibits a large magnetostriction in fields ($\lambda_{111} = 1.2 \times 10^{-3}$).

遍歴電子メタ磁性

信州大学理学部 山田 鏑二

バンド構造に起因し、キュリー温度で1次の磁気転移を起こす物質は、遍歴電子メタ磁性体といわれている。Ginzburg-Landau理論で現象論的にスピン揺らぎの効果を取り入れた理論では、キュリー温度直上で磁場により常磁性から強磁性へのメタ磁性転移が起き、更に帯磁率の温度変化に極大が現れることを示すことができる。こうしたメタ磁性転移と帯磁率の極大はパイライト化合物 CoS_2 , $\text{Co}(\text{S},\text{Se})_2$, $\text{La}(\text{Fe},\text{Si})_{13}$, $\text{MnFe}(\text{As},\text{P})$, 高圧下における MnSi , $\text{U}(\text{Co},\text{Fe})\text{Al}$ 等、種々の金属間化合物で観測されている。

磁気モーメントがキュリー一点で1次転移を示す物質は大きな磁気熱量効果を示すことが期待され、磁気冷凍材料として利用される。また、メタ磁性転移点では磁場によって誘起される磁気モーメントの変化は大きな磁歪を伴うため、磁歪材料としても有望な物質であると思われる。本講演では、上記のスピン揺らぎと磁気体積効果を取り入れた遍歴電子メタ磁性理論に基づき、どのような物質で大きな磁気熱量変化が期待されるかについて、等温過程での磁場による磁気エントロピー変化の計算結果から、一般的な考察が行われる。また、磁気体積効果を取り入れて、磁歪およびメタ磁性転移磁場の温度並びに圧力依存性が議論される。

Fe_2VAl 系合金の電子物性と熱電材料への応用

名古屋大学 水谷 宇一郎
名古屋工業大学 西野 洋一

Fe_2VAl 化合物は $\text{L21}(\text{D0}_3)$ 型の立方晶で Heusler 構造を取り単位胞に 16 個の原子を含む。2-1200K と広い温度範囲にわたってその比抵抗は負の傾きを持つ半導体的な温度依存性を呈する。光電子分光実験でフェルミ面の存在が明らかとなり低温比熱の実験でその電子比熱係数が増大していることがわかった。バンド計算の結果、深く鋭い擬ギャップ内にフェルミ準位を持つ非磁性の半金属と同定された。元来 V が入る FeI サイトに Fe が antisite defect として入ると磁気モーメントが発生することが指摘された。Fe の antisite defect から生ずる spin fluctuations で低温における比抵抗の著しい増大と電子比熱係数の増大効果が説明された。

フェルミ準位が擬ギャップ内にあることを利用して $(\text{Fe}_{2/3}\text{V}_{1/3})_{100-y}\text{Al}_y$ 合金を作製し Al の濃度を $y=25$ を中心に振ることで n 型及び p 型のゼーベック係数とホール係数を得た。この結果は擬ギャップ内でのフェルミ準位の移動で説明された。さらに $\text{Fe}_2\text{VAl}_{1-y}\text{Si}_y$ 組成を選び Al の Si 置換を行った。その結果、室温近傍で最大 $-130 \mu\text{V/K}$ のゼーベック係数を得た。さらに $\text{M}=\text{Ti}, \text{Mo}$ を選択して $\text{Fe}_2(\text{V}_{1-y}\text{M}_y)\text{Al}$ 合金を作製しその熱電特性を調べた。その結果、Ti 系では p 型、Mo 系では n 型の熱電効果を観察した。n 型では室温近傍で $-100 \mu\text{V/K}$ を越える値、p 型では最大約 $80 \mu\text{V/K}$ を得ている。V を他の遷移金属により置換したり、Al を Si や Ge で置換することで p, n 型を自由にコントロール出来た。さらに、室温近傍の

ゼーベック係数の値を1原子当りの平均価電子数で整理すると全てのデータがユニバーサルな曲線に乗ることが示された。これより一連の Fe_2VAl 合金は典型的な電子化合物であることを指摘出来た。室温付近で power factor は $5.5 \times 10^{-3} \text{W/mK}^2$ に達し Bi_2Te_3 に対する $4.5 \times 10^{-3} \text{W/mK}^2$ を上回った。現在までのところ、熱伝導度が比較的高いため、室温の性能指数 ZT は 0.12 程度にとどまっている。この材料を熱電材料として利用するために熱伝導度をさらに下げる工夫が今後の研究課題である。

充填スクッテルダイト化合物における熱電材料としての可能性

徳島大総合科学 菅原 仁

充填スクッテルダイト化合物 RT_4X_{12} ($\text{R}=\text{希土類}, \text{T}=\text{Fe, Ru, Os}, \text{X}=\text{P, As, Sb}$) は金属-絶縁体転移や重い電子状態等の興味ある異常現象を示すことから精力的に研究がなされている。一方、大きな熱電能と小さな熱伝導度を示すことから熱電材料の候補としても注目されているが、応用を視野に入れた研究はそれほど多くないのが現状である。本研究では $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Fe}_4\text{P}_{12}$ 、 $\text{CeRu}_4\text{Sb}_{12}$ 、 $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ の電気抵抗率 (ρ)、熱電能 (S)、熱伝導度 (κ) 等の熱電特性を測定し、その性能指数 (figure of merit) $ZT=S^2T/(\rho\kappa)$ を評価し、熱電材料としての可能性を調べた。 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Fe}_4\text{P}_{12}$ については La のわずかな置換 ($x \geq 0.99$) により、金属的な電気抵抗の振る舞いを示すことが明らかとなり、 $x=0.99$ において室温での電力因子 (power factor) $\text{PE} = S^2/\rho$ は最大値を示すことが明らかとなった。この電力因子の値はこれまで知られている充填スクッテルダイト化合物 $\text{CeFe}_3\text{CoSb}_{12}$ の約2倍の値を示しており、熱電材料として有望であることが明らかとなった。

YbMn_2Ge_2 の圧力誘起価数転移と特異な反強磁性

東大物性研 上床 美也

Mn 原子が2次元配列した体心正方晶構造を有する RMn_2Ge_2 系化合物の磁性は、Mn 間の交換結合 $J_{\text{Mn-Mn}}$ により特徴付けられる。そして、 $J_{\text{Mn-Mn}}$ の本性は、2次元面内の Mn-Mn 原子間距離によってスケールされる臨界距離モデルによって定性的にはよく理解されている^[1]。しかし、Yb イオンが混合原子価状態にある YbMn_2Ge_2 は、 RMn_2Ge_2 化合物ファミリーの中でも特異な磁性を示す。つまり、上述の臨界距離モデルに従えば、格子の大きな YbMn_2Ge_2 においては、強磁性の出現が予測されるが、実際には、系は、温度変化に伴って、AFM I 相 ($163\text{K} < T < T_{\text{N}1} \sim 405\text{K}$) と AFM II 相 ($T < T_{\text{N}2} = 163\text{K}$) の二種類の反強磁性を示す。さらに、AFM II 相 (低温相) において、性質を異にする2種類の磁氣的相互作用の競合を示唆する特異な振舞いが見出されている^[2]。この起源を探るのが本研究の目的である。(1)まず、静水圧力下での磁化測定を行った。その結果、本系の磁性は劇的に変化する事が明らかになった。つまり、常圧下では 163K であったネール点 $T_{\text{N}2}$ が、1.0 GPa の圧力下では 270K にまで上昇し、さらに加圧した 2.0 GPa においては、112 K にまで押し下げられた。この時、AFM I 相 (高温相) のネール点 $T_{\text{N}1}$ は、 $T_{\text{N}2}$ が最大を示す ~ 1.25 GPa において、最小 (~ 370 K) となった。また、 ~ 1.25 GPa の上下の圧力領域で、系の示す磁氣的な振舞いは豹変した。これらの結果は、AFM I 相と AFM II 相が競合関係にあり、 ~ 1.25 GPa において磁気構造の変化を伴った相転移が誘起された事を示唆している。このような異常な反強磁性状態や圧力効果は、他の3価の R 原子から成る RMn_2Ge_2 化合物においては、一切、見出されていない事から、その起源は、Yb のイオン状態に深く関与していると思われる。(2)そこで、Yb L_{III} 端近傍における X 線吸収スペクトルの測定を室温、高圧力下において行ったところ、1.25 GPa 付近で Yb イオンの価数が常圧における +2.4 価から不連続に +3 価に近い状態に変化している事実を突き止めた。この事は、Yb イオンの価数転移が Mn モーメント間の磁氣的相互作用に多大な影響を及ぼしている事を示している。

[1] H. Fujii et al. Solid State Commun, 53 (1985) 715.

[2] T. Fujiwara et al. Physica B, 312-313 (2002) 864.

局在から遍歴磁性へ価数転移する Yb 化合物における圧力安定化局在相の弱強磁性基底状態

富山大理 光田 暁弘

立方晶 AuBe_5 型構造をもつ YbInCu_4 は $T_v=42\text{K}$ で一次の価数転移を示す。高温相 ($T>T_v$) は $\text{Yb}^{3+}(4f^{13}, J=7/2)$ 状態にあり、局在的なキュリーワイス常磁性を示すのに対し、低温相 ($T<T_v$) は $\text{Yb}^{2.9+}(4f^{13.1})$ となり、遍歴的なパウリ常磁性を示す。我々はこれまで局在的な高温相はどのような基底状態を示すのか? という観点から価数転移機構を調べる研究を行ってきた。特に Yb を Y で 20% 置換した単結晶試料 ($T_v=15\text{K}$) において、加圧とともに価数転移が消失し、弱い強磁性 (自発磁化 $M_s=0.05 \mu_B/\text{Yb}$ 、キュリー温度 $T_C=1.7\text{K}$) が出現することを磁化測定から見出した^[1]。 $4 \mu_B/\text{Yb}$ の磁気モーメントを持つ Yb^{3+} を安定化したにもかかわらず、強磁性の自発磁化はその 100 分の 1 程度しか出ておらず、その原因に興味をもたれている。

今回、圧力セルの性能向上により 2.0GPa まで磁化測定が可能になったことから、強磁性出現に対する Y 置換の影響を調べることを目的として、Y10% の試料 ($T_v=28\text{K}$) について同様の測定を行った。Y20% と同様に加圧とともに価数転移が消失し、弱い強磁性が出現した。価数転移が完全に消失した直後の圧力 2.0GPa において $M_s=0.12 \mu_B/\text{Yb}$ 、 $T_C=2.3\text{K}$ であり、Y20% のそれに比べてともに増加している。

本研究は以下の諸氏との共同研究である。山内清典、二本松浩文、池生剛、桑井智彦、石川義和(富山大理)、山田将貴、O.Kolomyets、後藤恒昭(東大物性研)、太田寛人、張維、吉村一良(京大理)。

[1] A. Mitsuda et al., Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 137204

金属間化合物を母体とする水素化物の遍歴電子磁性

横国大院工 山口 益弘

金属水素化物において金属(金属間化合物)中の水素の電子状態を知ることは基本的な課題である。希土類元素 R と遷移金属元素 T とからなる金属間化合物 R_nT_m は多量の水素を吸収して金属水素化物 $R_nT_mH_x$ を形成し、その磁性を著しく変えるものが多い。遍歴電子強磁性体 YCo_3 は吸収した水素の組成 x により磁性が強磁性体(x=0)から常磁性体(x=1.0)、強磁性体(x=1.8)、反強磁性体(x=3.2~4)へと変化する。高磁場磁化測定により得られた遍歴電子磁性のふるまいから水素の電子状態が推定できた。電子構造は XPS 等により直接、調べるのが望ましいが、金属水素化物では試料の不安定性により困難である。コンプトン散乱は水素雰囲気下でバルクの電子構造(電子運動量分布)が求められるので金属水素化物にも適用できる有用な手段である。われわれはまず典型的な金属水素化物である PdH_x を対象としてコンプトン散乱によりバンド構造計算の結果を検証し、さらにフェルミ面を金属水素化物としては初めて実験的に決定した。つぎに、磁性金属水素化物 NiH_x について磁気コンプトン散乱を観測し、正の d-like モーメントと負の sp-like モーメントの寄与を分離した。実験結果から水素化により sp-like モーメントの絶対値が増加することが示されている。

巨大磁気体積効果を持つ $\text{CrTe}_{1-x}\text{Z}_x$ ($Z = \text{Se}, \text{Sb}$) の磁性

東北学院大工 鹿又 武

NiAs 型の結晶構造を持つ強磁性体 CrTe の常圧力下におけるキュリー温度(T_C)と 4.2 K における自発磁化(σ_s)はそれぞれ約 350 K, 76.5 emu/g ($2.5 \mu_B/f.u.$) である。 CrTe の T_C は圧力の増加に伴い直線的に減少し、その圧力微分 $\partial T_C / \partial p$ は -7.0 K/kbar にも達する。同様に加圧に伴い σ_s も大きく減少する。 σ_s の圧力微分 $\partial \sigma_s / \partial p$ とその圧力係数 $\partial \ln \sigma_s / \partial p$ は

それぞれ $-0.92 \text{ emu/g} \cdot \text{kbar}$ 、 $-1.2 \times 10^{-2} \text{ kbar}^{-1}$ であった。 CrTe で観測された自発磁化の圧力係数は自発磁化の圧力係数としてもっとも大きい値を持つ物質として知られている Fe-Ni インバー合金のものに比べて更に大きい値である。

最近、 CrTe の第一原理バンド計算が国内外で行なわれ、 CrTe の高圧力下における強磁性の不安定性や圧力誘起磁気相転移が議論された。今回、我々は 51 GPa までの高圧力下で CrTe の磁気及び結晶学的特性を調べ、 CrTe の磁気相図を推定した。我々の推定した磁気相図によれば、加圧に伴い CrTe は 0 K 、約 3 GPa で強磁性からキャント磁性に、更に加圧すると約 7 GPa で反強磁性へ転移する。その反強磁性構造は CrSb 型のものである。約 14 GPa の圧力で NiAs 型から MnP 型への構造相転移が観測された。研究会では CrTe の Te を一部 Se 、 Sb に置換した系の高圧力下における磁性についても報告する。

$\text{Co}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ と $\text{MnAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ の磁気熱量効果

京大工 和田 裕文

強磁性と常磁性の間で一次の相転移を示す遷移金属化合物は、磁場によるエントロピー変化 ΔS_M が大きいことから、磁気冷凍作業物質への応用が期待されている。本研究は典型的な遍歴電子メタ磁性を示す $\text{Co}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ と、われわれが以前巨大磁気熱量効果を示すことを報告した $\text{MnAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ の磁気熱量効果についてのその後の研究結果を報告する。

$\text{Co}(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_2$ は $x \geq 0.05$ で強磁性から常磁性への転移が一次になり、キュリー温度 T_C より高温で遍歴電子メタ磁性を示す。この系の磁場 0.1 T における ΔS_M を測定したところ、その最大値は組成によって変化し、 $x=0.08$ 付近で最も大きくなることがわかった。この結果はYamadaとGotoが指摘したように、メタ磁性転移に伴う磁化の変化 ΔM は x が増加するにつれて大きくなるのに対し、転移磁場の温度依存性 dB_C/dT は小さくなることで説明されるが、これは T_C が低い場合の一般的な傾向であると考えられる。

一方、 $\text{MnAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ については $x \geq 0.05$ では NiAs 型 \rightarrow MnP 型の構造相転移は抑えられる。従来この場合の磁気転移は二次転移であると考えられてきたが、今回われわれは試料作製の条件を吟味し、最適な熱処理を行うことによって、 $x \geq 0.05$ でも構造転移を伴わない一次転移が生じることを見出した。この結果、 $\text{MnAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ は $0 \leq x \leq 0.3$ の範囲で、 ΔS_M の最大値はほぼ一定であることが明らかになった。この系の場合 dB_C/dT は x が増加すると一度増加する。一方 ΔM は単調に減少し、両者の効果によって ΔS_M は一定に保たれているようである。

遍歴電子メタ磁性体 $\text{La}(\text{Fe}_x\text{Si}_{1-x})_{13}$ および水素化物の磁気熱量効果

東北大学 大学院工学研究科 深道 和明、藤田 麻哉、藤枝 俊

従来は基礎物性の立場から議論されてきた遍歴電子メタ磁性転移を実用的観点から、 $\text{La}(\text{Fe}_x\text{Si}_{1-x})_{13}$ 化合物の磁気特性の特徴を生かした応用について議論する。その中で、環境問題など様々な不都合を引き起こすフロンに代表される気体冷凍に代わる磁気冷凍デバイスへの応用に関する特性を検討する。

本化合物のキュリー温度は 200 K 前後であり、メタ磁性転移の性質を反映して、磁気エントロピー変化の値は非常に大きい。実用上、メタ磁性転移磁場を室温付近まで引き上げて、弱磁場の印加でもメタ磁性転移を引き起こさせる必要がある。水素の吸収により、メタ磁性転移特性を失うことなくその目的は達成される。すなわち、キュリー温度は 340 K 付近まで上昇させることが可能である。磁気エントロピー変化、断熱温度変化など磁気冷凍に関わる磁気熱量効果は水素吸収前後で大きな変化はなく非常に優れた特性を示すことから、約 150 度の広い温度範囲内において水素量を制御することで冷凍が可能になる。また、冷凍効率を高めるためには冷凍サイクル速度の向上が必要であるが、それを支配する熱伝導率および熱拡散率特性にも優れている。さらに、注目されることは、本化合物の構成元素はすべて、人畜無害であり、経済的に安価であることである。最後に、酸化物超伝導の応用、デジタル通信、IT社会、燃料電池自動車対応した水素ステーションなど低温への磁気冷凍の展開に関しても紹介する。

遍歴電子メタ磁性体の磁気弾性効果

慶應義塾大学理工学部 田島 圭介

遍歴電子メタ磁性体の常磁性領域と強磁性領域における磁気弾性効果をX線回折と磁化測定によって調べた。Laves 相化合物 $\text{Lu}(\text{Co}_{1-x}\text{Ga}_x)_2$ は、遍歴電子型のメタ磁性の特徴を示す物質として知られていて $x=0.1$ 付近で1次相転移を伴って自発磁化を発生する。Tc 以上における常磁性から強磁性へのメタ磁性転移に伴う磁気弾性結合定数の測定では、常磁性領域における値が強磁性領域におけるより大きいことが観測された。また、同じく遍歴電子型である $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_2\text{P}$ は、磁気モーメントが Fe の2つの副格子、あるいは Fe と Mn 副格子にあり、反強メタ磁性の性質を示すと考えられている。この系の $x=0$ 、即ち Fe_2P 、 $x=0.015$ 、 0.02 の3種類の試料について、磁気転移温度以上でのメタ磁性転移に伴う磁気弾性結合定数の変化を調べた。この系においても $\text{Lu}(\text{Co}_{1-x}\text{Ga}_x)_2$ と同様に、常磁性領域における値は強磁性の場合より大きく、転移温度から高温側に離れるに伴い両方の値は近づいていくことが見出された。

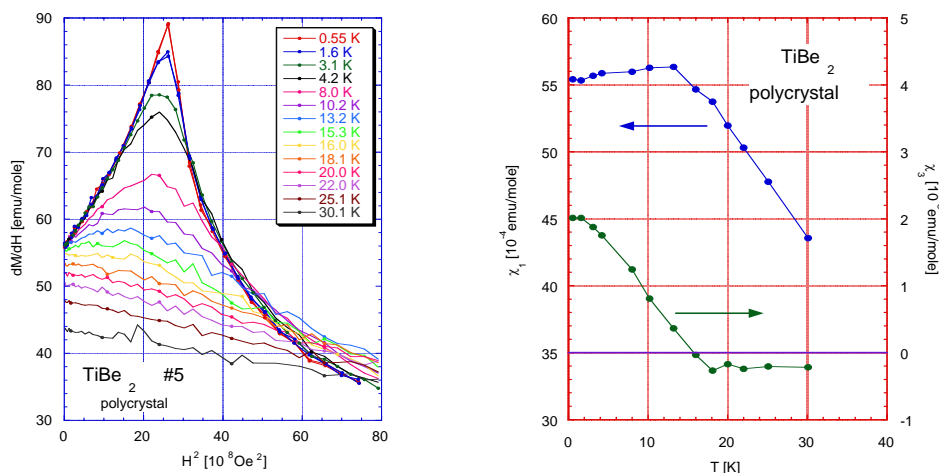
磁気弾性結合定数は、遍歴電子系では磁性に寄与する電子の交換相互作用とカイネティックエネルギーからくる項の2つによって決まる。この実験から得られたように、磁気弾性結合定数が常磁性と強磁性領域で異なるのは、遍歴電子系の特徴で、磁性に寄与する電子の常磁性と強磁性の場合のバンド構造が異なっていること反映していると考えられ、今後の理論におけるバンド構造の理解などが期待される。

遍歴電子メタ磁性体における有限温度効果— TiBe_2 を中心として—

東大物性研 三田村裕幸

遍歴電子メタ磁性は band 電子が主たる要因の磁場誘起1次相転移であり、転移の前後で系の対称性が変わらないため液体気体転移の様に昇温により転移が消失（臨界点）するという特徴を持つ。また低温では比熱・帯磁率・電気抵抗の測定結果から典型的な Fermi liquid 状態になっていると考えられる。帯磁率は高温で Curie-Weiss 則に従うため中間温度域では極大値をとる。帯磁率の極大は遍歴電子メタ磁性転移を起す物質では例外無くみられる現象であり、両者とも Fermi level 近傍の状態密度の鋭い山に起因していると考えられている。H. Yamada は Landau 展開に SCR の結果を取り入れることにより遍歴電子メタ磁性と帯磁率の極大の関係を self consistent に説明した。

同時に H. Yamada は帯磁率が極大となる温度で3次の非線形帯磁率の符号が正から負に反転することを予想しているが、これまで実験では確かめられてはいなかった。これは、典型物質 YCo_2 が包晶化合物であるため強磁性不純物による超常磁性の強い負の非線形帯磁率を分離できなかったからである。我々は構成元素が非磁性でかつ包晶化合物ではない物質 TiBe_2 に着目し、 ^3He 冷凍機・9T 超伝導磁石を用い引き抜き法で磁化測定を行った。その結果 H. Yamada の予想を確かめることができた。



R(Mn,T)₁₂の磁性 (R=Y,Gd, T= Fe,Co など)

信州大理 天児 寧

正方晶 ThMn₁₂型結晶構造をとる YMn₁₂は、120K以下で Mn モーメントが non-colinear に結合する反強磁性体である。また、GdMn₁₂は、125K以下での Mn モーメントの反強磁性と 9K 以下での Gd モーメントの強磁性が共存する物質である。RMn_{12-x}T_x (R:希土類元素)の T=Fe, Co は x ≤ 10 で単一相が存在し、M=Fe の場合、3つある Mn(Fe)サイトのうち、8f サイトに Fe が入りやすいという選択性が中性子線回折実験より解っている。R=Gd の場合、Mn を Fe で置換すると、強磁性転移温度(T_c)は x とともに緩やかに増加するのに対し、Co で置換したときは x > 6 で急激な T_c の増加が見られる。また反強磁性転移温度(T_N)の x 依存性については、Fe 置換の場合は x = 5 付近で最大値を示したのに対し、Co 置換の場合は最大値を示す x の値がより小さくなっている。これらの振る舞いは、サイト選択性が Fe より Co の方が更に強くなっていることで説明できる。このサイト選択性については、格子定数の x 依存性からも裏付けられている。4K での YMn_{12-x}T_x の自発磁化(M_s)は、Co 置換、Fe 置換でその大きさに際立った違いは見られず、x > 6 で急激に現れ始める。R=Gd では x < 7 で Gd 副格子のモーメントが(Mn, Co)のものより大きくなっている。R=Y と同様に T による違いは見られず、T_c の濃度依存性に対応して、x > 6 で急激な M_s の変化が見られる。

CeRu₂Si₂のメタ磁性

東京大学物性研究所 榭原 俊郎

正方晶化合物 CeRu₂Si₂は非磁性の重い電子系物質であり、すくなくとも低磁場では 4f 電子は遍歴的であると考えられている。この物質が特に注目を集めている理由として、低温において c 軸方向の磁化過程に約 7.6T でメタ磁性的な磁化の振る舞いが現れることがあげられる。これまでに数多くの研究がなされてきたが、未だにこのメタ磁性の起源について完全に理解されたとは言い難い。このうちで一番の問題点と思われるのはドハースファンアルフェン効果の測定で、それによるとメタ磁性磁場の前後でフェルミ面の極値断面積が不連続的に変わっているように見える。この結果は 4f 電子がメタ磁性転移とともに局在状態へと移行していることを示唆するが、もしそうであれば、この系のメタ磁性は真の相転移(気相・液相型の 1 次転移)でなければならない。しかし、これまでのところ、熱力学量の測定からは明確な相転移の証拠は得られていない。そこで今回我々は CeRu₂Si₂のメタ磁性近傍の磁化の温度依存性を 50mK 付近まで詳しく調べる実験を行った。その結果、測定精度の範囲内で、(1)低温磁化は T² の温度依存性を持つ、(2) T² の振る舞いが成り立つ温度域はメタ磁性磁場付近で約 0.3K にまで低下している、(3)メタ磁性磁場を通過する際に磁化の T² 項の符号は正から負に急峻かつ連続的に変化する、ということがわかった。これらの測定結果は、メタ磁性に伴ってフェルミ準位上の準粒子状態密度に顕著な変化が生じるものの、4f 遍歴状態はメタ磁性磁場を挟んで高磁場領域まで連続的につながっていることを強く示唆する。

強磁性ホイスラー合金の巨大双晶磁歪

東北大工 藤田 麻哉

最近、マルテンサイト変態を示す強磁性合金において、外部磁場印加に伴うマルテンサイト相の双晶再配列により、大きな磁場誘起歪みが生じることが報告されている。特に、Ni₂MnGa ホイスラー合金では、この双晶磁歪の大きさが数% におよぶ事が確認されており、新しい磁歪材料として多くの注目を集めている。しかし、Ni₂MnGa 合金は機械的に脆くアクチュエータ等への応用には不都合な点が多い。このため現在は、Ni₂FeGa 合金など、より加工性の良い強磁性ホイスラー合金を中心にマルテンサイト変態の制御と双晶磁歪発現条件の探索が進められている。最近のバンド計算の結果から、

強磁性ホイスラー合金のマルテンサイト変態の出現には、構造相転移に伴う電子系のエネルギーの変化が重要であることが指摘されている。非化学量論組成の Ni_2FeGa 合金においては、 Ni_2MnGa においてバンド計算から指摘されているのと同様にマルテンサイト変態温度 T_M は電子濃度 e/a と共に増加した。キュリー温度 T_C および T_M が室温以上に存在する $\text{Ni}_{54}\text{Fe}_{19}\text{Ga}_{27}$ 合金において磁歪測定を行った結果、低温では磁化回転に依存した磁歪が観測された。しかし、温度上昇に伴い結晶磁気異方性 K_u の値が低下すると磁歪は消失した。双晶磁歪は、磁化回転に伴う磁気異方性エネルギー E_k の増加を双晶再配列による結晶軸の回転で補うために発生するので、 E_k が双晶移動に要するエネルギー E_d を上回る場合に観測される。そこで、Co 元素による Ni の部分置換を行い T_C の上昇制御を行った。Co 置換後の T_M は e/a の減少により若干低下したが、 T_C はより大きな割合で上昇し、 K_u も増加するため、双晶磁歪の出現はより高い温度まで持続した。以上の結果は、Ni 基ホイスラー合金において、組成制御、添加元素の選択により、さらに磁歪量が向上する可能性を示しており、これら合金の巨大磁歪材料への応用は非常に有望である。

遍歴電子強磁性体 Co_2TiGa における核磁気緩和

龍谷大理工 西原 弘訓

Co_2TiGa は立方晶のホイスラー型構造を持った金属的化合物で、キュリー温度が 130K、Co あたりの磁気モーメントが $0.4 \mu_B$ の強磁性体である。その磁氣的振る舞いが弱い遍歴電子強磁性体に対する SCR 理論で説明できるのか局在モーメントの方に近いのかあるいは中間領域にあるのか興味を持たれている。弱い遍歴電子強磁性体における核磁気緩和の振る舞いは ZrZn_2 や Sc_3In , $\text{Y}(\text{Co}_{1-x}\text{Al}_x)$ など常磁性モーメントと強磁性モーメントの比が大きい場合 ($p_{\text{eff}}/p_s > 10$) においては守谷理論を基にした紺谷の式でよく説明できることが報告されている。 Co_2TiGa の場合は $p_{\text{eff}}/p_s=3$ で強磁性がもう少し強い興味ある一例と考えられる。以前に ^{59}Co における実験では、低温領域で $T_1 T = \text{const}$ 、高温領域で $T_1 = \text{const}$ で、全体を紺谷の式にフィットするのは無理というユニークな結果を報告した。この結果をさらに確かめるため今回 ^{69}Ga および ^{71}Ga について実験を行った。 ^{69}Ga および ^{71}Ga の信号は ^{59}Co と比べるとかなり弱かったため ^{59}Co のすそと重なる場合は T_1 のデータをとることは困難であった。そのため低温では ^{69}Ga を高温では ^{71}Ga を利用した。結果は ^{59}Co とほぼ同じであることが明らかとなった。すなわち低温領域で単純な金属のように $T_1 T = \text{const}$ であり、高温では揺らぎが飽和するかのようになり、途中臨界領域で緩和率が增大するが、全体として紺谷の式にフィットするのは無理であることが明らかとなった。

$\text{Mn}_{1.07}\text{Co}_{0.92}\text{Ge}$ の磁性と構造

東北大金研強磁場センター 小山 佳一

三元金属間化合物 $\text{Mn}_{1.07}\text{Co}_{0.92}\text{Ge}$ はキュリー温度 $T_C=280\text{K}$ を示す強磁性体である。その結晶構造は室温で六方晶 Ni_2In 型の構造をとり、温度低下に伴い $T_M=220\text{K}$ 付近で斜方晶 TiNiSi 型構造にマルテンサイト変態する。今回我々のグループではこの物質の構造相転移と磁気特性との関係、磁場誘起構造相転移等を詳しく調べるため、13T までの強磁場磁化測定および 5T までの強磁場・低温 X 線回折実験を行った。その結果、 $T=4\text{K}$ における自発磁気モーメントは $3.54 \mu_B / \text{f.u.}$ である。温度上昇とともに減少し、逆マルテンサイト変態温度 (250K) 近傍で急激に減少する。一方、室温から冷却すると自発磁化はマルテンサイト変態温度 (200K) で急激に増加する。熱ヒステリシスが観測され、マルテンサイト相の自発磁化がオーステナイト相のそれに比べ約 20% 大きい。これはマルテンサイト変態に伴う原子間距離の増加と対称性の変化等から磁性原子の up スピンバンドと down スピンバンドの分極が大きくなっていることを示唆している。さらに、マルテンサイト変態温度付近では強磁場によって六方晶 Ni_2In 型から TiNiSi 型構造に磁場誘起マルテンサイト変態も観測された。このときの体積変化は約 5% を超える極めて大きいことを見出した。

L1₀型 Mn 合金の電子状態とスピントロニクス

産業技術総合研究所 東北センター 梅津 理恵
東北大工学部 深道 和明、佐久間昭正

スピントロニクスの分野において、高いネール温度を有する反強磁性合金の重要性が認識されてきた。そこで、1000 K 程度のネール温度を有する L1₀ 型 Mn 合金の電子状態と磁性との関連性について議論する。Mn と白金族元素 (Ni, Pd, Pt, Rh および Ir) で構成される等比組成合金は L1₀ 型構造を有し、コリニアな反強磁性的磁気秩序を示す。そのバンド構造において、フェルミ面近傍に擬ギャップを形成するのが特徴的である。実験から得られる電気抵抗ならびに低温比熱測定の結果はバンド計算の結果とよく対応する。すなわち、電気抵抗率の温度依存性においてネール温度以下でギャップ型反強磁性体特有のランプが観測され、また、低温比熱測定から求められる電子比熱係数の値は、MnPt 等比組成合金の場合で約 0.2 mJ/mol·K² と非常に小さな値を示す。また、この合金系の中で、MnIr 系合金が Mn 系合金の中で最も高いネール温度を有することを実験、理論の両面から明らかにする。さらに、L1₀ 型 Mn 合金のスピントロニクスに関連する重要な基礎物性のうち電気抵抗特性ならびに結晶磁気異方性に着目し、応用の観点から望まれる反強磁性材料の性質についても議論する。特にセンス電流を膜面に対して垂直に流すとき、デバイス素子の磁気抵抗比を向上させるためには素子全体の電気抵抗率をできるだけ低くする必要があり、反強磁性合金の元素ならびに組成選択が重要である。また、実験的に困難な反強磁性体の結晶磁気異方性に関する理論計算の結果を示し、さらに、MnPt 系合金だけが示す磁気相転移と結晶磁気異方性との関連についても議論する。

MnAs_{1-x}Sb_x の磁場誘起構造相転移

新潟大院自然科学 石川 文洋

MnAs はキュリー温度 $T_C=317\text{K}$ の強磁性体である。 T_C における常磁性-強磁性転移は結晶構造の変化を伴っており、また一次相転移であることが知られている。結晶構造は T_C 以下で六方晶 NiAs 型、 T_C 以上で斜方晶 MnP 型となる。As を Sb で置換を行うと、構造相転移が消失し全温度領域で六方晶 NiAs 型構造をしめす。また MnAs_{1-x}Sb_x は T_C 以上においてメタ磁性的な挙動を示す。本研究においては MnAs 及び MnAs_{0.9}Sb_{0.1} の磁場誘起の結晶構造相転移を詳細に調査した。ゼロ磁場における MnAs の X 線回折パターンは 285 K で NiAs 型の単相、319 K で MnP 型の単相であることを示した。常磁性領域である 319 K において、ゼロ磁場では MnP 型の単相を示すが、3T の磁場中では NiAs 型との二相共存を示し、それ以上の磁場では NiAs 型の単相となった。これは磁場により MnP 型から NiAs 型への構造相転移が一次転移で生じていることを示している。また MnAs においては強制、自発のいずれの強磁性状態でも NiAs 型結晶構造を示すことが明らかになった。MnAs_{0.9}Sb_{0.1} は低温、高温相においていずれも NiAs 型構造をしめす。しかし、体積の大きな低温相と小さな高温相がキュリー点近傍で共存しており、この転移が一次相転移であることを示唆した。 T_C 以上の温度領域では磁場の印加によって高温（常磁性）相から二相共存領域を介して低温（強磁性）相へ転移することが明らかになった。

MnAs 及び CrTe の磁性

信州大工学系研究科 中田 謙吾

NiAs 型構造を持つ遷移金属カルコゲナイドである CrTe と MnAs は、その磁氣的性質が原子間の距離に大変敏感であることなどから、多くの研究がなされてきた。これらの化合物は強磁性金属であり、自発磁気モーメントとキュリー温度の圧力依存がとても強いことが良く知られている。

最近、NiAs 型 MnAs において、その磁気モーメントが a 軸方向に敏感であることが実験・理論共に報告された。しかし、NiAs 型においては Mn-Mn 間の隣接距離は、 a 軸方向より c 軸方向の方が近い。そのため、 c 軸方向ではなく隣接距離が遠い a 軸方向の変化に対して、磁気モーメントが敏感であることが、以前から NiAs 型 MnAs の磁性を理解する上で疑問視されていた。同様のことが CrTe においても報告されており、本研究では、磁気モーメントの格子パラメータ a と c の依存を議論するために、MnAs 及び CrTe の伝導電子の電荷密度分布を self-consistent full potential LAPW (FLAPW) 法により計算した。その結果、 c 面内においては Mn の電荷密度はほぼ球形であるが、Mn-3d と As-4p、Cr-3d と Te-5p のボンディングが非常に強く、磁気モーメントはボンド間の距離よりその角度に強く依存していることが示された。

遍歴電子強磁性体のエントロピーおよび比熱の温度、磁場依存性

兵庫県立大物質理 高橋 慶紀、中野 博生

弱い遍歴電子強磁性体などのようにスピンゆらぎの寄与が磁気比熱の増強に大きく関与する系の理論的な取り扱いには未解決な問題が残されていた。その後の状況の変化により、ようやくその困難を克服できる環境が整ってきた^[1]。ここでは、特に磁気秩序状態における比熱の温度、磁場依存性についての我々の最近の研究について紹介する。

比熱の取り扱いの際に注意した点は、次の通りである。a) スピンゆらぎの寄与を表す自由エネルギーには量子ゆらぎの寄与も含まれること。b) ただし、自由エネルギーは量子ゆらぎを含めたスピン振幅の温度、磁場変化が小さいことを保証するものでなくてはならない。c) 自由エネルギーは、そこに含まれるパラメータについて極値の条件を満たすことなどである。磁気秩序状態の場合や外部磁場をかけたことにより系にモーメントが発生した場合にこれらの条件をすべて満たすには、常磁性状態の比熱の取り扱いに用いた自由エネルギー^[2] に、さらに余分の項の追加が必要であることがわかった。得られた自由エネルギーから導かれるエントロピーは、熱力学のマックスウェルの関係を満たすことを示せる。このようにして磁気比熱に関して多くの興味ある温度、磁場依存性を導くことができた^[3]。たとえば比熱の温度依存性には必ず臨界温度でカスプ状の異常が現れること、低温で温度に比例する係数に余分な増強が存在すること。この温度係数は低温において磁場によって大きく抑制されることなどである。これらの結果が今後の研究で確認されることを期待している。

[1] Y. Takahashi: *J. Phys.:Condens. Matter* **13** (2001) 6323

[2] Y. Takahashi: *J. Phys.:Condens. Matter* **11** (1999) 6439

[3] Y. Takahashi and H. Nakano: submitted to *J. Phys.:Condens. Matter*

3d 電子系の磁気励起と交換定数

東北大学大学院工学研究科 佐久間昭正

3d 電子系の有限温度磁性を記述する上で有用となる汎関数（経路）積分法について概説し、単一サイト近似のもとで s-d 模型（局在スピンは古典スピンとする）の磁化、電気抵抗の温度依存性の計算結果を示す。次に、磁気転移温度 (T_C, T_N) を簡便に見積もる目的のもと、汎関数積分の鞍点（分子場）解から一つのモーメントに働く交換定数（交換磁場） J_0 を求める方法について述べる。この J_0 は、基底状態において一つのモーメントの方向を安定解から僅かにずらしたときのエネルギーの変化率に対応し、local force theorem により鞍点（分子場）解から多重散乱理論を用いて表すことができる。従って、 J_0 は基底状態における情報（グリーン関数）だけで記述することができ、基底状態における磁気構造がノンコリニアの場合は、スピン量子化軸が各サイトの磁気モーメントの方向に局所的に回転（局所ゲージ変換）されたグリーン関数を用いて表される¹⁾。この J_0 を用いて（分子場近似から）見積もられる磁気転移温度 $T_{C,N} = 2 J_0 / (3k_B)$ と、上述した汎関数積分法の単一サイト近似下で得られる値を比較することにより、 J_0 の有効性に関する考察を行う。最後に、上のモデル

ハミルトニアンから導かれた表式を第一原理計算の枠組みで記述し²⁾、3d 遷移金属合金や磁性人工格子などの J_0 および $T_{C,N}$ を第一原理計算から評価した結果を紹介する。

- 1) A. Sakuma: J. Phys. Soc. Jpn. 69 (2000) 3072.
- 2) A. I. Leichtenstein, et al.: Solid State Commun. 54 (1985) 327.

1次元系 YMn_4Al_8 と 3次元フラストレート系 YMn_2 の類似性

兵庫県立大物質理 中村 裕之

頂点共有四面体格子を持つ遍歴電子磁性体 YMn_2 は最近接原子が反強磁性的に強く結合した典型的な3次元フラストレート系である。以前から主張しているように、この系は反強磁性1次元鎖が弱く結合した系と見なすことができる。これは、強いフラストレーションの必然的帰結である。実験的には、中性子散乱実験やNMRの緩和時間測定で異方的なスピンの揺らぎが観測される。一方、これまで、磁性原子が1次元配列を持つ遍歴電子磁性体のふるまいを、正面から取り扱った研究はほとんど見あたらない。そこで、Mn原子が1次元配列を持つ YMn_4Al_8 と $LaMn_4Al_8$ の磁性を詳しく検討した。これらの物質は、正方晶の $ThMn_{12}$ 型の結晶構造から派生した構造を持ち、Mn原子は1次元鎖を形成する。また、低温まで磁気秩序を持たず、低温まで相関の強い常磁性体としてふるまう。ところで、 YMn_2 の常磁性領域の磁化率は、温度とともになだらかに増大し700K程度で飽和する傾向を示す。これは典型的な遍歴電子磁性体 YMn_2 のスピンの縦揺らぎが温度と共に増大するため、すなわち局在モーメントが回復するため、と説明されている。しかし、一方で、室温付近で既にモーメントがある程度回復していると期待されるのに対し、少なくとも700Kまで、Curie-Weiss的な温度変化が観測されないのは不思議である。本研究では、 YMn_4Al_8 および $LaMn_4Al_8$ の実験結果との比較から、フラストレーションに伴う次元性の低下と YMn_2 の磁化率の温度変化との関連を議論する。また、 $LaMn_4Al_8$ で観測された電気抵抗の異常なふるまいも報告する。

ハーフメタリック反強磁性

大阪大学大学院理学研究科 赤井 久純

ハーフメタルとは、例えば上向きスピン状態は金属状態でフェルミ面を持つが、下向きスピン状態は絶縁体もしくは半導体でありフェルミ面を持たないような物質である。ホイスラー合金が古くから知られているが、スピントロニクスとの関連で注目を浴びるようになった理由は100%スピン偏極したフェルミ面が得られるために、このような材料を使えば効率良くスピンの選択ができるからである。これまでのところ良く知られているハーフメタルはすべて強磁性であるが、このことはハーフメタルの意味からも当然のことのようにも思える。しかし実は反強磁性ハーフメタルも原理的には可能であって（厳密に言えば磁化が完全に相殺したフェリ磁性）、van Leuken と de Groot によってその可能性が指摘されている。今までそのような物質が見つかったという報告はないが、候補と考えられる物質は最近指摘されている。このような反強磁性ハーフメタルでも、そのフェルミ面が完全スピン偏極していることに変わりはなく、外部磁場の影響を受けることがないという観点からは強磁性スピントロニクス材料とは異なった機能を持つスピントロニクス材料の候補であることは勿論である。この講演では、ハーフメタリック反強磁性を含むハーフメタルの発現の機構、希薄磁性半導体をベースにしたハーフメタルの考え方と可能性について議論する。

ハーフメタル・ホイスラー合金の物質設計

東北大学電気通信研究所 白井 正文

磁気ランダムアクセスメモリなどに利用される磁気トンネル接合の性能向上のために、フェルミ準位でのスピン偏極率が大きな強磁性材料が求められている。最近、ホイスラー合金 $\text{Co}_2(\text{Cr,Fe})\text{Al}$ や Co_2MnAl を強磁性電極に用いたトンネル磁気抵抗デバイスが室温で比較的大きな磁気抵抗比を示すことが報告されているが、これらホイスラー合金は完全な規則構造ではないことが実験的に確かめられている。そこで、 Co_2CrAl において原子配列不規則性がスピン偏極率や磁気モーメントに及ぼす効果を第一原理計算に基づいて検証した。その結果、Cr と Al 原子の不規則性はスピン偏極率にも磁気モーメントの大きさにもほとんど影響を及ぼさないことが確認された。一方、Co と Cr 原子が不規則に置換した場合、スピン偏極率も磁気モーメントも著しく減少することが見出された。スピン偏極率の低下は、Cr サイトを占めた Co 原子の 3d 状態からなる不純物バンドが、少数スピンバンドのフェルミ準位付近のエネルギーギャップ中に形成されることに起因している。また、磁気モーメントの減少は、Co サイトを占めた Cr 原子の局所磁気モーメントが最隣接 Cr 磁気モーメントと反強磁性的に結合するためである。ただし、Co-Cr 原子置換による系のエネルギー損失は Cr-Al 原子置換に比べて大きいので、適当な結晶成長プロセスにより Co-Cr 原子置換を抑制することができれば、 Co_2CrAl において高いスピン偏極率を実現することが期待できる。

ハーフメタルと強磁性トンネル接合

名古屋大学大学院工学研究科 松井 正顕

ハーフメタルはスピントロニクスにおける強磁性トンネル接合 (MTJ) の最重要物質となりつつある。しかし、期待されるような MTJ は未だにどこも成功していないのが現状である。MTJ では、最低限、強磁性層と絶縁層のきわめて薄い三層膜を作製し、急峻で歪みのない均一な整合界面を持つ接合を作製する必要がある。多くのブレイクスルー技術が必要と考えられているが、一方で、1~2nm ほどの超薄膜にしたときに絶縁体のバンド構造や界面バンドギャップがバルクとどのように異なるかとか、ハーフメタルの界面分極率はどれほどか、などといったナノ構造素子という特殊性に対する基礎的アプローチもきわめて重要である。本研究では各ハーフメタル超薄膜とその MTJ の例を示し、そこで明らかになった問題点についてまとめた。

ハーフメタルと言われている物質は、ペロブスカイト型 Mn 酸化物が代表的であるが、ほかに、パイライト型化合物、二重ペロブスカイト型酸化物、ルチル、マグネタイト、ホイスラー型化合物などを挙げることができる。それらの中で、 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 、 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ 、 Fe_3O_4 、 Co_2MnSi 、 Co_2MnGe についてスパッタリング法によって薄膜、三層膜を作製し、フォトリソグラフィ法で素子を作製した。その結果、いずれのハーフメタル強磁性体も、数十 nm 程度であれば高品質薄膜作製条件の最適化が可能であること、三層膜では絶縁層と強磁性層の薄膜作製雰囲気がほぼ一致していることが必要であること、少し複雑な結晶構造を持つ $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ や Fe_3O_4 では、接合面において絶縁体と向かい合う磁性原子サイトが問題になること、絶縁体は 1~2nm の超薄膜であるので、上部電極強磁性層の作製雰囲気によって変質しやすいことなどが判明した。これらの問題解決ができればスピントロニクス分野の飛躍的発展が可能となるだろう。

Co_2MnGe のスピン・軌道磁気モーメントおよびそのハーフメタル性の検証

広島大学大学院理学研究科 木村 昭夫

Mn をベースとしたホイスラー型合金は、キュリー温度が高く、理論的にハーフメタル強磁性体と予言されている物質

が多く、注目されている。ハーフメタル強磁性体では伝導電子のスピンの偏極度が 100%であり、それらで絶縁層を挟んだトンネル磁気抵抗 (TMR) 素子では、その磁気抵抗比が発散的に増大すると期待され^[1]、MRAM 等の次世代磁気記憶媒体の有力な候補となっている。さらに、半導体表面にそれをエピタキシャル成長させることができれば、高いスピン偏極度をもった電子の半導体中への注入が期待できる。我々は、Ishida らによればはじめてハーフメタルと予言された充填ホイスラー型合金 Co_2MnGe について 2p 内殻吸収磁気円二色性 (XMCD) 実験を大型放射光施設 SPring-8 の円偏光アンジュレータービームライン BL-25SU で行い、Co, Mn, Ge 各元素に対してスピンおよび軌道磁気モーメントを実験的に求めた^[2,3]。その結果、磁気光学総和則から評価した Co3d および Mn3d スピン磁気モーメントの値は、LDA バンド計算で得られた値とほぼ一致しているが、Co3d の軌道磁気モーメントが、理論値と比較して 3 倍程度大きな値を示すことがわかった。この物質の電子構造を理解する際、LDA 近似では過小評価されているスピン軌道相互作用が重要になると考えられる^[3,4,5]。

様々な強磁性体について予言されているハーフメタル性は、そのほとんどが理論からの予言でとどまっており、ハーフメタル性の実証されている例は CrO_2 や $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ の様な酸化物系に限られている^[6,7]。そこで我々は直接的に電子構造を観測し、ハーフメタル性を実験的に明らかにするために、 Co_2MnX (X=Si, Ge) 等の単結晶試料および薄膜単結晶試料について「スピン分解光電子分光」実験を行なう計画である。スピン分解光電子分光装置は、広島大学放射光科学研究センターのアンジュレータービームラインに設置を予定しており、現在では実験室光源を用いた性能評価が終了したところである。講演ではその概要についても触れたい。

- [1] M. Julliere, Phys Lett. A **54** (1975) 225.
- [2] S. Ishida et al., J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 2152.
- [3] K. Miyamoto et al., Solid State Commun. **128** (2003) 163.
- [4] S. Picozzi et al., Phys. Rev. B **66** (2002) 094421.
- [5] K. Miyamoto et al., Physica B (2004), in press.
- [6] R.J. Soulen et al., Science **282** (1998) 85.
- [7] J. H. Park et al., Nature **392** (1998) 794.

高圧力下 FeS の半導体－金属－半導体転移

兵庫県立大大学院物質理学研究科 小林 寿夫

一般に 3d 遷移金属カルコゲナイドにおいてはその強い共有結合性から、遷移金属 d 軌道と配位子 p 軌道との混成効果が酸化物よりも大きい。従って、加圧による結合状態およびバンド幅の変化による基底状態の変化が注目される。室温・高圧力下で FeS は構造相転移を 3.5, 6.5 GPa で起こす。その構造相転移にともない半導体－金属－半導体へとその電子構造も変化する。このような構造相転移をともなう強相関電子系の電子構造の変化においては、電子相関のみならずフォノンも重要な役割を演じていると考えられる。そこで、放射光 X 線を利用した室温・高圧力下での ^{57}Fe 核共鳴非弾性散乱により FeS 中の Fe が直接関与するフォノンを実験的に求めた。また、低温での圧力誘起半導体－金属－半導体転移と結晶構造との関係を放射光を用いた X 線回折測定により調べた。

実験、バンド計算から求めた FeS のフォノン状態密度から平均力定数の圧力依存性を求め、圧縮率との比較を行った。その結果、金属相では伝導電子が圧縮率へ 40%程度寄与していると推定される。また、Fe の平均力定数は Fe の 3d 電子状態を強く反映することが分かった。一方、低温での高圧力下 X 線回折測定結果から 17K、2.3 GPa で構造相変態をともなわずに FeS は金属状態へと転移する。その低温・金属相においては、電気抵抗は 2 次の温度依存性を示し、その係数が半導体－金属転移に向かって発散する傾向がある。従って、この相転移は 2 次転移的であり、電子数一定のもとでの金属－絶縁体転移における臨界現象を研究できる可能性を示している。

形状記憶合金 TiNi 中の第三遷移元素のサイト優先性

鹿児島大学 理 石田 尚治、藤井 伸平
鹿児島大大学院 理工 水谷 聡
東京大学 名誉教授 浅野 節郎

Ti-Ni 合金に少量の遷移元素を添加すると、転移温度が変化したり、新たに中間相が現れたりすることが報告されている。少量の X 原子を添加した Ti-Ni-X において、X 原子として 3d, 4d, 5d 遷移元素を選び、これらのサイト優先性を調べた。Ti-Ni-X 合金のモデルとしては、母相の B2 構造、マルテンサイト相の B19' 構造に対して、4通りのモデル ($B2\cdot TiNi_{8/9}X_{1/9}$, $B2\cdot Ti_{8/9}NiX_{1/9}$, $B19'\cdot TiNi_{7/8}X_{1/8}$, $B19'\cdot Ti_{7/8}NiX_{1/8}$) が仮定され、それらの電子構造が計算された。

常磁性状態で、上記4つの系で X 原子が Ti と Ni を占める場合の全エネルギーを比較した結果、X 原子の優先占有サイトは、3d (4d, 5d) 遷移元素に対して X 原子の原子番号が Ti (Zr, Hf) と Ni (Pd, Pt) の原子番号の間では、ほぼ Ni サイト、Ni (Pd, Pt) の原子番号より大きければほぼ Ti サイトであることが予測された。実験結果がある 3d 遷移元素の場合だと、この結果は、X=Mn 以外の場合に実験結果とよく一致している。

X=Ni を境にして、それより原子番号が小さい X=V, Cr, Mn, Fe, Co 原子の場合には、X 原子はスピン分極し、Ti サイトを占有する傾向が強まった。その傾向は Mn の場合に最も大きかったが、スピン分極によるエネルギー利得を考慮に入れても、Mn 原子の優先占有サイトは Ti サイトにはならなかった。

内殻 MCD で見た遍歴磁性体

東大新領域 藤森 淳

遷移金属の内殻 p 準位から価電子帯 d 準位への軟 X 線吸収の磁気円二色性 (MCD) は、各元素について、スピン成分と軌道成分に分離された磁気モーメントを調べることができる点でユニークであり、遍歴磁性研究の実験手法として重要な情報を提供する。最近 SPring-8 の原研専用軟 X 線ビームライン BL23-SU で稼動状態にはいった MCD 実験ステーションでは、MCD 装置としては非常に高い磁場 (< 10 T) における測定を低温 (~10K) まで行なえるために、メタ磁性の研究、常磁性状態・反強磁性状態における誘起磁化の研究が可能である。本講演では、SPring-8 で最近行なわれた $Ca_{1-x}Sr_xRuO_3$ における遍歴強磁性、 $SrFe_{1-x}Co_xO_3$ におけるヘリカル反強磁性 - 強磁性転移、 $Co(S_{1-x}Se_x)_2$ におけるメタ磁性、 UGe_2 における強磁性と超伝導の共存についての MCD を用いた研究について述べる。本研究は、岡本淳、間宮一敏、岡根哲夫、斉藤祐児、吉井賢資、村松康司 (原研放射光)、高野幹夫、川崎修嗣 (京大化研)、武田保雄 (三重大工)、宮台朝直 (道都大)、芳賀芳範、山本悦嗣 (原研先端研)、大貫惇陸 (阪大理) の各氏との共同研究である。

遍歴電子磁性と超伝導

京都大学大学院理学研究科 吉村 一良

遍歴電子磁性と超伝導に関して、(Y-Lu)(Co-Al)₂ 系および Y(Mn-Al)₂ 系の遍歴電子強磁性と Na_xCoO_{2y}H₂O 系の超伝導に関して、NMR を中心的な手段として調べた結果についてレビューする。(Y-Lu)(Co-Al)₂ 系に関しては、交換増強されたパウリ常磁性体から遍歴電子強磁性体へ遷移する系であり、遍歴電子メタ磁性を示す系としてもよく知られている系である。最近では YCo₂ の単結晶を用いた詳細な NMR 研究が行われている。また、YMn₂ を中心とした Mn 系は、パイロクロア格子という頂点共有の四面体ネットワーク上に反強磁性相互作用の Mn が大きなフラストレーション効果を示している系である。Na_xCoO_{2y}H₂O 系は水を CoO₂ 三角格子の層間に挿入することで超伝導となることが見いだされ注目されて

いる系であり、フラストレーションと超伝導機構の関係が問題となっている系である。遍歴電子系では、同じ結晶構造の化合物系において、Co系の弱い遍歴電子から中間領域（インバー的）を経て、Mn系の局在スピンの振る舞いへと変化するが、その際に、AlのNMRで観測したときのスピンドイナミクスは特徴的であることが知られている。また、Co系では、 YCo_2 の単結晶や $\text{Na}_{0.035}\text{CoO}_2 \cdot 1.7\text{H}_2\text{O}$ についてのNMR実験から、スピン・軌道相互作用が超微細相互作用に大きく寄与して軌道角運動量の物性への寄与が示唆される。また、フラストレーション効果の期待される三角格子Co酸化物系では、 ^{59}Co や ^2D のNMR測定を行った結果、spin-triplet超伝導の可能性が有ることが明らかになってきている。

Ni₃AlB: 遍歴弱強磁性と超伝導の掛け橋

産総研エレクトロニクス 長谷 泉

最近発見された超伝導体 MgCNi_3 ^[1]は強磁性元素Niを多く含むことから Sr_2RuO_4 と同じく奇パリティ超伝導の候補とされており、実際トンネル分光の結果は非s波を示唆している。一方、金属間化合物 Ni_3Al は非常に堅い金属磁性材料として知られており、また遍歴弱強磁性を示す典型物質でもある。この物質には炭素やホウ素などをドーピングすることができ、このとき体積が膨張するにも関わらず磁気モーメントがドーピングとともに急激に減少して消失することが知られている^[2]。高ドーピング極限の Ni_3AlB は上記の MgCNi_3 と同じ構造を持ち、電子数も同じであることから両者の性質を持つことが期待される。今回我々は Ni_3AlX (X=B,C,N,H)、および ACNi_3 (A=Mg,Zn,Ca)について系統的にFLAPW-LDA法によるバンド計算を行ったので報告する。

Ni_3Al への軽元素ドーピングによってモーメントが減少する原因は、主にドーパントからNiへの電荷移動によるものである。これは MgCNi_3 においても同様に見られる。また MgCNi_3 と Ni_3AlB は等電子系であるが、 Ni_3AlB においては状態密度のピークが鋭くならないために強磁性は生じない。しかし MgCNi_3 と Ni_3AlB のフェルミ面の形状はよく似ており、もし Ni_3AlB でも超伝導が発現すれば、特異な超伝導状態^[3]が期待できる。

[1] T.He et al. Nature 411,54(2001).

[2] 三浦他、日本物理学会第58回年会29aPS23(2003); 鹿又武、私信。

[3] K.Voelker and M.Sigrist, cond-mat/020836.

梯子格子銅酸化物の磁性と超伝導

京都大学大学院人間環境研究科 藤原 直樹

$\text{Sr}_2\text{Ca}_{12}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ は超伝導を示す唯一の梯子格子銅酸化物である。しかし、超伝導は3GPa以上の高圧ではじめて実現される。高温超伝導体と同じく超伝導ペアリングの対称性やスピンギャップといった問題を解決するためには、様々な実験手段によって研究されなければならないにもかかわらず、3GPa以上の高圧が大きな障害となっているため、輸送現象のようなバルクの情報しか得られていなかった。今回我々は、NiCrAlを用いたクランプセルを用いて3.5GPaの圧力下で核磁気共鳴をすることに成功し、1996年の超伝導発見以来初めてこの系の超伝導についてマイクロな観点から調べることができた。

緩和率($1/T_1$)は高温で指数関数的振る舞いを示し、スピンギャップが明確に観測された。その一方、超伝導状態では、 T_c 直下にピークが現れる。このことは、準粒子励起に有限のギャップが存在することを意味している。つまり、超伝導ギャップとスピンギャップは異なる温度領域に現れる。更にこのピークは高磁場まで存在し、超伝導が高磁場まで安定であることを意味している。NMRシフトは局所的な帯磁率を反映したものであるが、本来一重項超伝導体であれば、 T_c 以下でシフトの値は小さくなるはずであるが、現実には T_c 以下でも変わらない。高磁場で超伝導が安定であることもあわせて、p波を想定するほうが実験を説明し易い。一重項超伝導体であれば、なぜ超伝導になる遥か高温でスピン一重項が形成されスピンギャップとして観測されるのかについて説明が必要となる。

高圧下における磁性金属の超伝導探索

大阪大学極限科学研究センター 清水 克哉

我々のグループでは、極低温・超高压下における超伝導探索の研究を行っているが、その一つに、磁性金属の典型である鉄に超伝導が起こらないかといった挑戦があった。鉄は常圧、常温下では強磁性体であるが、圧力下では構造相転移に伴って非磁性に転移をすることが古くから知られていたため、その非磁性領域で超伝導を探索してきた。その結果、Fig.1 に示すように、非磁性相で超伝導性を示す事が解った。^[1]

しかし、鉄で発見された超伝導が、単に格子振動を媒介とした超伝導ではない可能性を示唆する実験報告がなされている。つまり、近年注目されている重い電子系化合物でのいわゆる量子臨界点近傍—強磁性または反強磁性秩序が例えば圧力の印加によって抑制された状態—で発現する超伝導との比較がなされている。すなわち D. Jaccard らは超伝導を示す圧力域での電気抵抗に $T_{5/3}$ 依存性を見出し、超伝導が発現する圧力域でも強磁性的であると主張している。^[2] このように単体の磁性金属においても、重い電子系化合物同様に超伝導の発現機構の解明に重要な手がかりを与えるものと期待している。

講演では、鉄の他、マンガン(α -Mn)、及びクロム(Cr)についても圧力下の超伝導探索の現状について報告する。 α -Mn、Cr はともに常圧で反強磁性を示すが、加圧により T_N は低温側にシフトする。 α -Mn の場合、Fig.2 に示すように電気抵抗の温度依存性カーブから決定した T_N の圧力依存性は 2 GPa 以上では決定できなくなり、新たにカーブには別に異常 T_A が観測される。

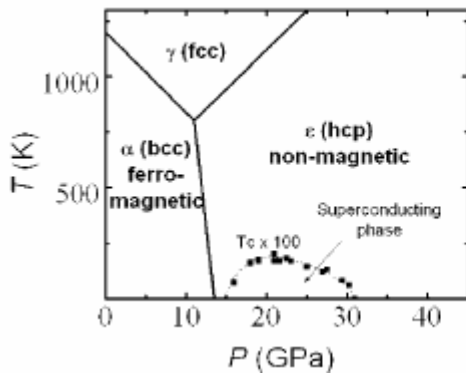


Fig.1 鉄の温度—圧力相図

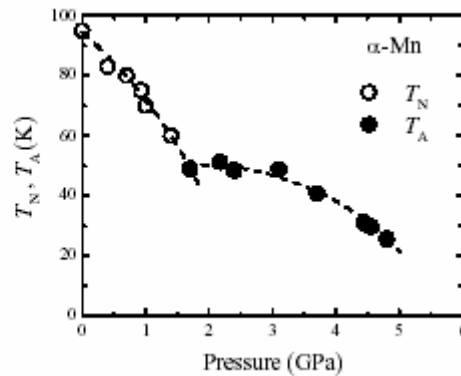


Fig. 2 α -Mnの温度—圧力相図

参考文献

- [1] K. Shimizu *et al.*, Nature **412** (2000) 316.
- [2] D. Jaccard *et al.* Phys. Lett. **A 299** (2002) 282.

Metal-Insulator Transition of the Hubbard Chain with Next-Nearest-Neighbor Hopping

兵庫県立大物質理 中野 博生、高橋 慶紀

我々は、金属強磁性の発現機構や性質を明らかにする目的で、次近接ホッピングを持つ1次元ハバード模型を数値対角化法で調べている。この模型の基底状態については、オンサイトのクーロン斥力が弱い領域で非磁性であるのに対し、強相関極限で完全強磁性となることが知られていた^[1]。我々は、ハーフフィリング近傍において完全強磁性と非磁性の状態の間に部分スピン偏極の基底状態が相互作用の幅広い領域で明瞭に現れることをこの模型に見出した^[2]。これが発端で現

在一連の研究を進めている。自明でないこのような部分偏極基底状態を、相互作用を近似しない直接計算によって実際に得ることが出来ることの意義は大きい。この模型の部分強磁性を良く調べることで、金属強磁性をより良く理解するための格好の題材になると期待できるからである。我々が進めてきた研究の結果、この部分偏極基底状態はホールの周りにスピンプラズマが形成されて出現していること^[2]、常磁性状態である有限温度から強磁性相転移している基底状態の絶対零度まで温度を下げていく時の局所スピンモーメントの温度依存性が非常に小さいこと^[3]がすでに明らかになっている。さらに、ホールドープされた金属状態からモット絶縁体であるハーフフィリングに至るこの模型の金属絶縁体転移（モット転移）に、興味深い振る舞いが現れることが分かってきた^[4]。モット転移に関するこれまでの研究の多くは反強磁性的な基底状態を示す場合に行われているのに対して、この模型では、部分強磁性を持つ金属とモット絶縁体の間の転移を調べることが出来る。我々の計算は、この金属絶縁体転移の電荷圧縮率がこれまでに知られていたものと異なる指数で発散する結果となっている。講演では、部分強磁性に関して直接数値計算で得られたこのような我々の最近の成果を紹介する。

[1] S. Daul and R. M. Noak: Phys. Rev. B **58** (1998) 2635.

[2] H. Nakano and Y. Takahashi: J. Phys. Soc. Jpn. **72** (2003) 1191.

[3] H. Nakano and Y. Takahashi: J. Mag. Mag. Mat. **272-276** (2004) 487.

[4] H. Nakano and Y. Takahashi: J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 983.

物性研究所談話会

日時：2004年4月19日(月) 午後1時30分～

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：E.V. Sampathkumaran

(物性研究所外国人客員所員)

題目：Thermal, transport and magnetic anomalies in new class of spin-chain oxides and intermetallics

要旨：

In the field of strongly correlated systems, the discovery of novel compounds remains an important direction of research. In this talk, some of the main findings on the spin-chain oxides of the type, $C_{a3}CoXO_6$ ($X= Co, Rh$ and Ir), and intermetallics of the type, $RCuAs_2$, will be reviewed to bring out anomalous behavior of these compounds. For instance, the former class of compounds, believed to exhibit the so-called “partially disordered antiferromagnetic structure” arising out of geometrical frustration effects, shows an unusual spin-dynamics as measured by ac susceptibility. In $RCuAs_2$, there is a minimum in the temperature dependent electrical resistivity even for Sm, Gd, Tb and Dy compounds, while for the Ce compound, the temperature coefficient of resistivity is negative in the entire temperature range of investigation with an unusual non-Fermi liquid behavior below 5 K. These puzzling findings offer a challenge both for theoreticians and experimentalists.

日時：2004年4月21日(水) 午後4時00分～

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：山本 量一

(京都大学理学研究科・物性研究所客員所員)

題目：ガラスの非平衡・非線形ダイナミクス：計算機シミュレーションによるアプローチ

要旨：

液体を急冷すると融点以下の過冷却状態でも液体相が安定に存在し、さらに温度を下げると液体的なアモルファス構造が凍結された固体、つまりガラスになる。ガラス転移と呼ばれるこの現象に関してはこれまでに膨大な研究がなされているが、未だにその本質的なメカニズムについては解明されていない。モード結合理論がガラスに応用されて以来、平衡に近い状態での線形応答に研究が集中した。しかし最近になり、エイジングや流動下等の平衡から大きく離れた状態での非線形応答に関心が集まっている。ガラスのような複雑な系の非平衡・非線形の応答など複雑すぎて手も足も出ないと思われるが、最近のシミュレーションにより意外なほど簡単な性質を示すことがわかってきた。

日時：2004年5月10日(月) 午後1時30分～

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：加藤 岳生

(東京大学物性研究所)

題目：長いジョセフソン接合における巨視的量子効果

要旨：

長いジョセフソン接合は sine-Gordon 方程式で記述される典型的な系であり、古典非線形動力学が古くから議論されている。近年、微細加工技術の発展とともに、ジョセフソン接合の位相の巨視的量子効果に興味もたれるようになってき

た。長いジョセフソン接合におけるソリトンの量子トンネル効果^[1]の提案を受けて、つい最近になり実験が行われるようになってきたので、これを報告する^[2]。

またソリトンの量子トンネル効果を利用した、量子ビットの作製にも触れる。長いジョセフソン接合では、ソリトンの巨視的量子効果のほかにも多彩な量子効果が期待される。その一例として、ソリトン-反ソリトン対の量子生成と不純物効果に関する理論^[3]と実験^[4]も紹介する。

[1] T. Kato and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 65 (1996) 2963.

[2] Wallraff et.al., Nature 425 (2003) 155.

[3] T. Kato, Phys. Rev. B 64 (2001) 134106.

[4] M. V. Fistul et.al., Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 257004.

日時：2004年5月28日(金) 午後2時~3時30分

場所：物性研究所本館6階 A612号室

講師：楠瀬 博明

(東北大学理学部)

題目：超伝導ギャップ構造と比熱の磁場角度依存性について

要旨：

近年、外磁場の角度に依存した熱伝導率や比熱の振動的振る舞いから超伝導ギャップの構造を決定する実験が盛んに行われている。実験では、明らかに超伝導状態に起因する振動が観測されており、多くの場合、磁束周りに流れる局所超伝導電流による準粒子エネルギーのシフトを取り入れた Doppler シフト法に基づいて解析されている。しかしながら、Doppler シフト法は一つの磁束によるギャップ・ノード付近の励起準粒子への影響に着目した理論であり、温度・磁場相図においてどの程度の領域まで有効であるかは明らかでない。また、フェルミ面の異方性が振動に及ぼす影響など未知な要素も多い。

講演では、超伝導の準古典理論における解析的な近似解を用いて、ギャップ構造やフェルミ速度の異方性と上部臨界磁場 H_{c2} や比熱 C の磁場角依存性との関係を議論する。まず、解析的近似解の手法とその有効性を述べる。次に、一バンド超伝導模型を用いて、ギャップ構造やフェルミ速度の異方性が振動に及ぼす影響を議論する。最後に、その応用として、有効二バンド超伝導模型を用いてスピン三重項超伝導体 Sr_2RuO_4 のギャップ構造を決定する試みを紹介したい。 Sr_2RuO_4 では、 H_{c2} の角度依存性が異常な温度変化を示すことが知られているが、この現象が二つのギャップの極小位置が45度だけ異なるとすると理解できることを示す。これは、 T_c 近傍で二次誘起ギャップの影響が増すため、実験的に観測が難しい二次誘起ギャップの極小位置に対する一つの有力な証拠であると考えられる。

日時：2004年5月31日(月) 午後1時30分~

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：山室 修

(東京大学物性研究所)

題目：中性子散乱と熱容量測定によるガラス・過冷却液体の物性研究

要旨：

一般に、液体を冷却すると結晶化するが、その冷却速度が十分速いと、粘性の高い過冷却状態を経て非晶性固体（ガラス）になる。この過程を「ガラス転移」と呼ぶが、液体が大きな構造変化を伴わず有限温度で固化する不思議な現象として、古くから興味もたれてきた。また、固化する前後の過冷却液体とガラスにも、「 β 緩和」や「ボゾンピーク」など構造不規則性・不均一性に由来すると考えられる重要な未解決問題が存在する。これらの研究に中性子散乱と熱容量測定の組み合わせは非常に有効である。この談話会では、講演者がこれまで行ってきた研究の中から、ガラス転移の謎を解く

鍵になると考えられている CRR (Cooperatively Rearranging Region) の実験的定量化の研究を紹介する。また、時間があれば、最近開発した低温蒸着法によって作成した単純分子 (CCl₄, CS₂, H₂O など) のガラスのボゾンピーク (特にそのエイジング効果) についても話したい。

日時：2004年6月1日(火) 午後1時30分～

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：P.V. Satyam

(Institute of Physics, Bhubaneswar)

題目：Embedded Nanostructures and Nanoscale-Mixing in Au/Si and Ag/Si Eutectic Systems

(Au/Si、Ag/SiにおけるSi中に埋め込まれたナノ構造)

要旨：

Au and Ag nanoislands are grown on silicon substrate at room temperature and irradiated with 1.5 MeV Au²⁺ ions at various fluences. Cross-sectional high resolution transmission electron microscopy and Rutherford backscattering spectrometry are used to study the ion beam mixing in Au/Si and Ag/Si systems. We observe metastable mixed phase for Au-Si system at a fluence of 1x10¹⁴ ions cm⁻², while no mixed phase is formed for Ag-Si system. For both Au-Si and Ag-Si systems, a part of the island is pushed into the substrate at lower fluences and at higher fluences, whole nano islands can be pushed inside the matrix. The mixed phase of Au-Si system is found to be crystalline in nature. The higher eutectic temperature and lower heat of mixing of the Ag-Si system compared to the Au-Si system could be responsible for the lack of mixing and silicide formation in the Ag-Si system. The above observations yield a novel method to fabricate new nanostructures and tailor their structural aspects with energetic ions.

日時：2004年6月4日(金) 午前11時～12時30分

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：北 孝文

(北海道大学理学部)

題目：第二種超伝導体の上部臨界磁場 H_{c2} に対する第一原理計算

要旨：

上部臨界磁場 H_{c2} は、第二種超伝導体における最も基本的物理量の一つである。 H_{c2} にフェルミ面の形状が大きな影響を及ぼすことは、古く 1960 年代より知られてきた。しかし、フェルミ面の詳細を取り入れた H_{c2} の計算は、これまでほとんど行われて来なかった。その結果、我々の H_{c2} に対する定性的・定量的理解は、古典的第二種超伝導体に対してさえ、極めて不満足な状態に止まっている。今回の講演では、 H_{c2} の定量的・系統的理解を目指した我々の最近の研究結果を報告する。

まず、 H_{c2} を決定する方程式を新たに導出した。この方程式は、フェルミ面の形状、エネルギー・ギャップの異方性、不純物散乱、強い電子格子相互作用などの効果をすべて記述可能である。次に、この方程式を、Nb, NbSe₂, MgB₂ に適用し、密度汎関数法による電子構造計算から得られたフェルミ面を用いて、これらの物質の H_{c2} を計算した。計算結果は、 H_{c2} の温度依存性と角度依存性の両方において、実験とのよい定量的一致を示す。特に、NbSe₂ の T_c 近傍において観測される大きな positive curvature が、フェルミ面の異方性により説明できることが明らかになった。

参考文献

T. Kita and M. Arai, cond-mat/0403314.

M. Arai and T. Kita, cond-mat/0404628.

日時：2004年6月4日(金) 午後1時30分～

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：Peter Brusov

(Low temperature laboratory, Physical Research Institute, Russia)

題目：Novel sound phenomena in impure superfluids and superfluids in aerogel

要旨：

We calculate the coupling between temperature and pressure oscillations and show that the coupling between these two kinds of oscillations is governed by terms proportional either to impurity or to aerogel density rather than by thermal expansion coefficient, which is enormously small in pure superfluids. This replacement plays a fundamental role in all sound phenomena in impure superfluids. It enhances the coupling between the two sound modes (first and second sounds) that leads to the existence of such phenomena as the slow mode and heat pulse propagation with the velocity of first sound observed in superfluids in aerogel.

The enhancement of the coupling between the two sound modes decreases the threshold values for nonlinear processes as compared to pure superfluids. Sound conversion, which has been observed in pure superfluids only by shock waves should be observed at moderate sound amplitude in impure superfluids. Cerenkov emission of second sound by first sound (which has never been observed in pure as well as in impure superfluids) could be observed in impure superfluids. We have shown that the enhanced coupling between first and second sound changes even the nature of the sound modes in impure superfluids. It leads as well to significant shift in fast mode frequency at transition temperature. We also discuss the nonlinear hydrodynamic equations, derived by us for the first time, for superfluid helium in aerogel.

1. Peter Brusov, et al, Phys. Rev. B Rapid Commun., 63, 140507 (2001).

2. Peter Brusov, Paul Brusov et al., Physics Letters, A, 310, 311 (2003).

3. Peter Brusov, Paul Brusov, Physics Letters, A, 314, 239 (2003).

日時：2004年6月10日(木) 午後1時30分～3時

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：河合 伸

(九州大学理学研究院)

題目：Ge(001)表面でSTM電流によりコヒーレントに励起されるダイマー振動

要旨：

Ge(001)表面では、Si(001)表面と同様に、ダイマーが形成されている。低温でのダイマー配列は、共に、 $c(4\times 2)$ 構造である。最近、Sb-doped Ge(001)基盤でバイアス電圧の極性と大きさにより $p(2\times 2)-c(4\times 2)$ 間の局所的・可逆的な phasemanipulation が可能であることが80Kで観測された。サンプルバイアス電圧 V_s が $0.8V < V_s$ で、 $c(4\times 2) \rightarrow p(2\times 2)$ の構造変換が観測され、その変換の時間レートがSTM電流の一乗に比例することが実験により示された。

我々は、80Kという低温で観測される構造変換は、STM電流によって励起されるダイマー振動が重要な役割を果たしていると考えている。我々は、既に、電子-振動系の結合を持ったハミルトニアン^[1]を用いて、B-doped Si(001)基盤では、20K以下の温度で、STM電流による振動準位の incoherent ladder climbing が重要であることを示している。しかし、Sb-doped Ge(001)基盤では、6K程度の温度より高温では、incoherent ladder climbing による高振動準位への励起は期待できない。そこで、Ge(001)表面においてこの温度領域で支配的になる coherent process による高振動準位への励起レートのバイアス電圧依存性を求めた。coherent process では、励起レートは電流の一乗に比例する。結果から得られたサンプルバイアス電圧依存性、バイアス極性によるレートの2次元的空间依存性は、実験結果とよい対応を示している。

参考文献

1. H. Kawai and O. Narikiyo, J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004) 417.

(Errata: J. Phys. Soc. Jpn. Vol.73 No.6 (2004))

日時：2004年6月18日(金) 午前10時30～12時

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：Dehong Yu

(Bragg Institute, Australian Nuclear Science and Technology Organisation)

題目：Probing electron confinement in ultrathin metal films

- From spin-polarized quantum-well states to surface resonances -

要旨：

The unoccupied electronic structures of bilayer Co/Cu(100) and trilayer Cu/Co/Cu(100) structures have been investigated by spin-resolved inverse photoemission. The spin-polarized quantum-well states confined in Co and Cu layers have been observed. The exchange splitting of the quantum-well states and the bulk-like sp band of Co (100) have been determined. For the sandwich structure of Cu/Co/Cu(100), in addition to the polarized quantum-well states, surface states and a surface resonance at the copper/vacuum interface, and bulk-like minority d contributions from the underlying ferromagnetic Co layer have also been identified. The quantum-well states are shown to develop into a surface resonance as a function of the electron momentum, as evidenced by a vanishing exchange splitting. The loss of spin polarization is caused by a decoupling of the electron wave function from the ferromagnetic Co at the inner interface.

日時：2004年6月18日(金) 午後1時30分～3時

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：L. Bulaevskii

(Los Alamos National Laboratory)

題目：Tunneling Spectroscopy of Two-Level Systems and Interacting Spins inside Josephson Junctions.

要旨：

I consider a two-level (TL) system with energy level separation $\hbar\omega_0$ inside the Josephson junction. The junction is in parallel with the resistor R and is current I biased. If the TL system modulates the Josephson energy and/or is optically active, at the resonance condition $2eIR = \hbar\omega_0$ the resistor voltage oscillates with the Rabi frequency determined by the strength of the coupling between the TL system and the phase difference. This effect provides the option to fully characterize the TL systems and to find the TL's contribution to the decoherence when junction is used as a qubit for quantum computation. I consider also the magnetic system inside intrinsic Josephson junctions in layered superconductors in the presence of the magnetic field parallel to the layers. Then measurements of the c-axis DC current-voltage characteristics provide information on the spectrum of magnetic excitations. Namely, there is enhancement of the tunneling current at the voltages $2eV$ which coincide with the excitation energies of the system.

日時：2004年6月21日(月) 午前10時30分～12時

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：M. A. Tanatar

(Institute of Surface Chemistry, National Ukrainian Academy of Sciences)

題目：k-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]I: What can the third salt tell us about k-phase organic superconductors?

要旨：

The family of the high T_c organic superconductors, k-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]X, where X stands for halogen atoms Cl, Br, or I, was discovered at the beginning of 90's, but still attracts notable interest. What makes the transition temperature so high (up to 12.8 K)? Is superconductivity magnetically mediated, due to proximity to magnetically

ordered phase? These questions are still intensely debated.

Since the beginning, studies of $k\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu[N(CN)}_2\text{]X}$ family focused on Cl and Br salts, culminating in establishing generic phase diagram. The third salt, with $X=\text{I}$, was originally reported as non-superconducting, and the difficulty in obtaining high quality single crystals hampered its study.

I will review the properties of I salt, which lead to discovery of superconductivity in this compound ^[1] and finding of unusual relation to other members of the family^[2]. Role of structural disorder for superconductivity and normal state properties will be highlighted.

[1] N.D. Kushch, M.A.Tanatar, E.B.Yagubskii, and T.Ishiguro, JETP Lett. 73, 429

[2] M.A. Tanatar, T. Ishiguro, S. Kagoshima, N.D. Kushch, E.B.Yagubskii, Phys. Rev. B 65, 064516

受 賞

三浦名誉教授 文部科学大臣賞受賞

三浦登東京大学名誉教授（元：物性研究所教授、現：科学技術振興機構・シニアフェロー）が、研究功績者として文部科学大臣賞を受賞されました。

文部科学省では、科学技術に関しいくつかの文部科学大臣賞を設けて功績者の表彰を行っています。三浦先生は優れた研究成果をあげた「研究功績者」として表彰されることになりました。

受賞の対象となった研究業績は「超強磁場発生とその応用に関する研究」です。これは、三浦先生が物性研究所で長年、電磁濃縮法などの超強磁場発生技術を開発し、室内実験としては世界最高の磁場を作り出して、さまざまな物性研究を進めてこられたことが高く評価されたものです。



三浦 名誉教授

三浦名誉教授 島津賞受賞

三浦登東京大学名誉教授（元：物性研究所教授、現：科学技術振興機構・シニアフェロー）が、第 23 回島津賞を受賞されることが決まりました。

島津賞は、科学計測の基礎的な研究において近年著しい成果をあげた功労者に対して贈られるものです。

受賞の対象となった研究業績は「メガガウス超強磁場物性の開拓」。電磁濃縮法などの方法を開発することによって、620 テスラを超える超強磁場を発生することに成功しました。これは実験室内で実験に使える磁場としては世界最高の値です。磁場の持続時間は百万分の数秒と短い時間ですが、物質の磁氣的、電氣的、光学的計測を通常の磁場におけるものとあまり変わらない高精度で行うための各種の超高速測定手段を開発し、多くの物質において超強磁場下で起こる種々の新しい現象を見出しました。

小谷・辛研究室の研究が日本物理学会第9回論文賞を受賞

物性研理論部門の小谷章雄・名誉教授と小谷研所属だった松原雅彦氏、魚住孝幸氏、および物性研先端分光部門の辛埴教授と辛研所属だった原田慈久氏の連名による次の論文が、日本物理学会第9回論文賞を受賞されました。

題 目 : Polarization Dependence of Resonant X-Ray Emission Spectra in Early Transition Metal Compounds

著 者 : Masahiko Matsubara(松原雅彦)、Takayuki Uozumi(魚住孝幸)、Akio Kotani(小谷章雄)、
Yoshihisa Harada(原田慈久) and Shik Shin(辛埴)

掲載誌 : JPSJ, Vol. 69, No.5, pp.1558-1565 (2000)

この論文は、シンクロトロン放射光の高輝度でかつ偏光しているという特性を巧みに利用し、 ScF_3 と TiO_2 の共鳴軟 X 線発光分光の偏光依存性を実験的に明らかにして、それを理論的に説明することに成功した論文で、軟 X 線領域での共鳴 X 線発光分光として先駆的な仕事です。高輝度放射光を用いて軟 X 線分光の新しい実験を開拓してきた辛研究室と、遷移金属の分光スペクトルの理論に高い実績を持つ小谷研究室が共同することにより、高く評価される研究成果が生み出されました。



松原雅彦氏

(元小谷研院生・学振特別研究員、現職 : Postdoc at Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg)



魚住孝幸氏

(元小谷研院生、現職 : 大阪府立大学大学院工学研究科 数理工学分野 講師)



小谷章雄氏

(物性研究所名誉教授、独立行政法人理化学研究所播磨研究所客員主管研究員)



原田慈久氏

(元辛研院生、現職 : 理化学研究所播磨研究所 量子電子材料研究チーム 連携研究員)



辛埴氏

(物性研究所先端分光部門教授)

福山秀敏・元本所教授と妹尾仁嗣氏が日本物理学会第9回論文賞を受賞

物性研物性理論部門の福山秀敏・元教授（現職：東北大学金属材料研究所教授）と福山研の院生だった妹尾仁嗣氏による次の論文が、日本物理学会第9回論文賞を受賞されました。

論文題目：Antiferromagnetic Phases of One-Dimensional Quarter-Filled Organic Conductors

著者名：Hitoshi Seo(妹尾仁嗣)、Hidetoshi Fukuyama(福山秀敏)

掲載誌：JPSJ, Vol. 66, No.5, pp.1249-1252 (1997)

この論文は、擬一次元構造をもつ典型的な有機導体の $(\text{TMTTF})_2\text{X}$ および $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ ($\text{X}=\text{Br}, \text{SCN}$ など)において、電荷秩序を伴う絶縁体相が現れることを予言した理論の論文で、有機導体においても電荷自由度が重要な役割を担うことを認識させる発端となった先駆的研究です。この論文で予言された電荷秩序相の存在は、後に核磁気共鳴および誘電率測定の実験により実証され、その後、分子性固体における電荷秩序の理論および実験の研究が大きく進展するきっかけとなりました。



妹尾仁嗣氏

(元福山研院生、現職：産業技術総合研究所[AIST] 強相関電子技術センター[CERC] 強相関理論チーム・日本学術振興会科学技術特別研究員)



福山秀敏氏

(物性研究所理論部門元教授、現職：東北大学金属材料研究所教授)

人事異動

【研究部門等】

○ 平成16年4月30日付け

(辞職)

氏名	所属	職名	異動内容
池田 悟	極限環境物性研究部門	技術職員	辞職

○ 平成16年6月1日付け

(採用)

氏名	所属	職名	異動内容
松田 真生	新物質科学研究部門	助手	採用

○ 平成16年7月1日付け

(採用)

氏名	所属	職名	異動内容
石坂 香子	先端分光研究部門	助手	採用

東京大学物性研究所の教官公募の通知

下記により助手の公募をいたします。適任者の推薦、希望者の応募をお願いいたします。

1. 研究部門名等及び公募人員数

ナノスケール物性研究部門（大谷研究室） 助手1名

2. 研究内容

電子線リソグラフィやエッチング等の微細加工技術を用いて作製したナノスケールの微小磁性体及びそれらの半導体や超伝導体とのハイブリッド構造を用いてスピン注入やスピン蓄積に関わるナノ磁性やスピントロニクス等の物性研究を行う。極低温電気伝導測定や時間分解磁気光学効果測定による研究を遂行する。

3. 応募資格

修士課程修了、又はこれと同等以上の能力を持つ人。

4. 任 期

任期は5年とする。ただし、再任は可とし、1回を限度とする。

5. 公募締切

平成16年9月17日（金）必着

6. 就任時期

決定後なるべく早い時期を希望する。

7. 提出書類

(イ) 推薦の場合：

- 推薦書（健康に関する所見を含む）
- 履歴書（略歴で結構です）
- 業績論文リスト（必ずタイプし、特に重要な論文に○印をつけること）
- 主要論文の別刷（3編程度）

(ロ) 応募の場合

- 履歴書（略歴で結構です）
- 業績論文リスト（必ずタイプし、特に重要な論文に○印をつけること）
- 主要論文の別刷（3編程度）
- 健康診断書
- 所属の長又は指導教員等の本人についての意見書（宛先へ直送）

8. 書類提出先

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉5丁目1番5号
東京大学柏地区庶務課人事係
電話 04(7136) 3205
e-mail jijin-kakari@issp.u-tokyo.ac.jp

9. 本件に関する問い合わせ先

東京大学物性研究所 ナノスケール物性研究部門 教授 大谷義近
電話 04(7136)3488
e-mail yotani@issp.u-tokyo.ac.jp

10. 注意事項

ナノスケール物性研究部門（大谷研究室）「助手応募書類在中」、又は「意見書在中」の旨を朱書し、郵送の場合は書留で郵送のこと。

11. 選考方法

東京大学物性研究所教授会で審査決定いたします。ただし、適任者のない場合は、決定を保留いたします。

平成16年5月31日

東京大学物性研究所長
上 田 和 夫

編集後記

「物性研だより」の内容をおもしろくと、前所長からの天の声をいただいてから、2年近くたった。今回できあがった物を見ると一時よりは少しはおもしろくなったような気もしている。しかし、まだ往年の勢いは取り戻していない。これは物性研内部の人からの記事、特に研究室便りや研究の解説がまだ足りないためであろう。物性研のホームページや一般公開、市民講座など様々な研究室を紹介する媒体や行事も増えて、冊子体である「物性研だより」の存在意義もだんだん変わっていくのだろうか。そういえば、物性研を特徴づける冊子体であった ISSP テクニカルレポートも、去年は10件しかなく、発行件数が激減したために、今年から、廃刊となった。これは、cond, mat, の様なホームページから手際よく、しかも手早く取れるようになったために時代のスピードに追いつかなくなったためと思われる。今のところ、「物性研だより」は、内部の人や関係者が物性研に物を言える公の立場であり、役割は変わらないと考えている。

辛 埴