

令和 3 年 5 月 6 日現在

機関番号：11301  
研究種目：基盤研究(C) (一般)  
研究期間：2018～2020  
課題番号：18K03531  
研究課題名(和文) 梯子型銅酸化物におけるストライプ型反強磁性秩序を起源とする新しい超伝導体の開発

研究課題名(英文) Study on stripe-type antiferro magnetic cuprates with the two-leg ladder structure

研究代表者  
今井 良宗 (Yoshinori, Imai)  
東北大学・理学研究科・准教授

研究者番号：30435599  
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、2本足梯子構造を持つ銅酸化物 $ACu_2O_3$ の電子物性に関する研究を行なった。高圧合成法を用いて、MgをLiで置換した $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$ を作製する手法を確立し、Liの固溶限界を $x = 0.12$ から $x = 0.60$ まで大幅に拡大することに成功した。Li置換によってホールをドーピングすると、電子比熱の有限な寄与が現れるにも関わらず、電気抵抗率の温度依存性は絶縁体的であるという特異な振る舞いが現れることを見出した。これは、原子サイトの化学的な乱れによるものであり、 $Cu_2O_3$ 梯子面内に非磁性イオンが導入され、ドーピングされたホールキャリアが局在化することに起因するものであることを突き止めた。

#### 研究成果の学術的意義や社会的意義

鉄系梯子型超伝導体と全く同じストライプ型反強磁性秩序を示す屈曲した梯子面を有する銅酸化物に関する研究を行なった。その結果、試料作製技術に関して、高圧合成法を用いることによって、従来困難であった高いホール濃度を実現する手法を確立した。また、広いホール濃度にわたって系統的な物性測定を実施したことによって、屈曲した梯子面を有する銅酸化物の電子状態に関する知見を得た。特に、原子サイトの乱れによって、ドーピングしたホールキャリアが局在化しており、この物質の電子状態に大きな影響を与えていることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In this study, we investigated the electronic properties of a copper oxide  $ACu_2O_3$  with a two-legged ladder structure. By using a high-pressure synthesis method, we have established a method to prepare  $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$ , and have succeeded in extending the solid solution limit for Li from  $x = 0.12$  to  $x = 0.60$ . The temperature dependence of the electrical resistivity in  $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  is insulator-like, despite the finite contribution of the electronic specific heat. This is due to the localization of the doped hole carriers, which is caused by the chemical disorder of the atomic sites.

研究分野：低温物理学

キーワード：銅酸化物超伝導体 鉄系超伝導体 高圧合成

### 1. 研究開始当初の背景

水素化合物における超高压下の超伝導を除けば、超伝導転移温度が 50 K を超える物質群は、銅酸化物高温超伝導体と鉄系超伝導体に限られる。この 2 つの物質群に共通する性質が見られるかどうかを明らかにしていくことは、各系のメカニズムを明らかにする上でも、また、より高い超伝導転移温度を目指すためにも、極めて重要であると考えられる。その観点で、重要なキーワードが「梯子構造」である。一般に、銅酸化物高温超伝導体は  $\text{CuO}_2$  面を、鉄系超伝導体は鉄の正方格子を有しており、超伝導はそこを舞台に実現していると考えられている。しかし、その例外的な物質が、銅酸化物鉄系梯子型超伝導体  $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  (M. Uehara, J. Phys. Soc. Jpn. 1996) と鉄硫化物  $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  (H. Takahashi, Nat. Mater. 2015) である。これらの物質は、非常によく似た梯子構造を有しており、常圧下では絶縁体であるが、圧力を印加することで超伝導を発現するという共通点がある。しかし、 $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  では圧力を印加することによってバンド幅が変化し金属化、超伝導化がもたらされる一方で、 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  では  $\text{Cu-O}$  鎖に局在したキャリアが、圧力印加に伴って梯子面に移動することによって、超伝導が実現する。このように、これらの二つの梯子構造を持つ物質は、よく似た特徴と異なる特徴を併せ持っている。梯子構造を持つ物質系に関する議論をより深めていくためには、類似構造を持つ物質の研究が欠かせない。そこで本研究で着目したのが、図 1 のような 2 本足梯子構造を持つ銅酸化物  $\text{ACu}_2\text{O}_3$  ( $A = \text{Mg}, \text{Ca}$ ) である。この物質において、Cu 原子は横木部分が蛇腹状に折れ曲がった梯子構造を形成しており、 $\text{Cu-O}$  鎖構造などの他の構造は持たない。とりわけ興味深いのは磁気構造であり、低温でストライプ型の反強磁性秩序を示す。これは、 $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  の磁気秩序と全く同じであり、鉄梯子型超伝導体の対照物質として興味深い。また、 $\text{MgCu}_2\text{O}_3$  においては、Mg サイトを Li で部分置換することによってホールをドープすることができることが知られている。しかし、 $\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  における Li の固溶限界は  $x = 0.12$  と考えられており、反強磁性秩序を抑制するのに十分な量のキャリアを注入することはできないと考えられてきた。

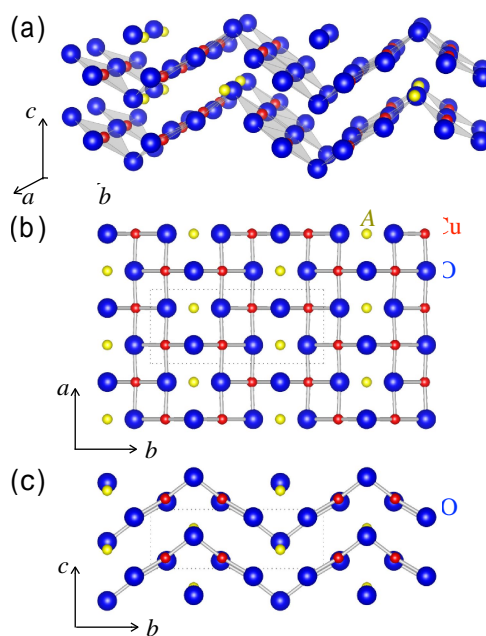


図 1 .  $\text{ACu}_2\text{O}_3$  ( $A = \text{Mg}, \text{Ca}$ ) の結晶構造：  
(a) 全体像, (b)  $ab$  面, (c)  $bc$  面 .

### 2. 研究の目的

本研究では、高原子価の化合物作製に非常に有効な手法である高压合成法を積極的に活用して、以下のような目的で、 $\text{ACu}_2\text{O}_3$  ( $A = \text{Mg}, \text{Ca}$ ) に関する研究を行う。予備的な研究の結果によって、高压合成法を用いると  $\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  における Li の固溶域を拡大することが可能であることが明らかとなったことから、系統的に Li 量を変化させた  $\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  を作製し、その電子物性を測定することによって、その電子状態を明らかにすることを主たる目的として、研究を推進する。 $\text{MgCu}_2\text{O}_3$  は 94 K でストライプ型の反強磁性秩序を示すが、Li 置換によるホールドープや静水圧力印加によって、反強磁性秩序が抑制されるかどうか、金属的な伝導がもたらされるか否かを調べる。さらに、A サイトを Ca に拡張し、様々な元素で部分置換を行うことによって、キャリアを  $\text{Cu}_2\text{O}_3$  梯子面に注入し、磁気構造、電気伝導、超伝導特性などを広いキャリア濃度、圧力範囲にわたって調べる。得られた結果に基づいて、 $\text{ACu}_2\text{O}_3$  の折れ曲がった  $\text{Cu}_2\text{O}_3$  梯子面の電子状態を、銅酸化物梯子超伝導体、鉄系梯子超伝導体と比較して議論を行う。

### 3. 研究の方法

$\text{ACu}_2\text{O}_3$  ( $A = \text{Mg}, \text{Ca}, \text{Li}, \text{Na}, \text{Sc}$ ) の試料作製は、常圧下における固相反応法、および、キュービックアンビル型圧力発生装置を用いた高压合成法により行った。X 線回折により相の同定、および、格子定数の決定を行った。電子物性測定として、電気抵抗率 (常圧下および高压下)、磁化率、比熱の測定を行った。圧力下で電気抵抗率を測定するためのシステムは、研究グループで保有していなかったため、市販のピストンシリンダーを用いて、圧力下で電気抵抗を測定可能なシステムを構築する。

### 4. 研究成果

(1) ピストンシリンダーを用いた圧力下電気抵抗率測定システムの開発

市販の Ni-Cr-Al 製のピストンシリンダーを用いて、圧力下電気抵抗率測定システム（最大到達圧力：3 GPa）を作製した。ピストンシリンダー圧力セル内部で発生する圧力を評価する手法としては、マンガニン線の抵抗や鉛の超伝導転移温度を利用するのが一般的である。しかし、本研究では、ピストンシリンダー内にプラスチックファイバーとルビー片を挿入することによって、より圧力変化に敏感で、簡便に発生圧力を評価することができるルビー蛍光を用いて、内部圧力を評価する手法を確立した（図1）。

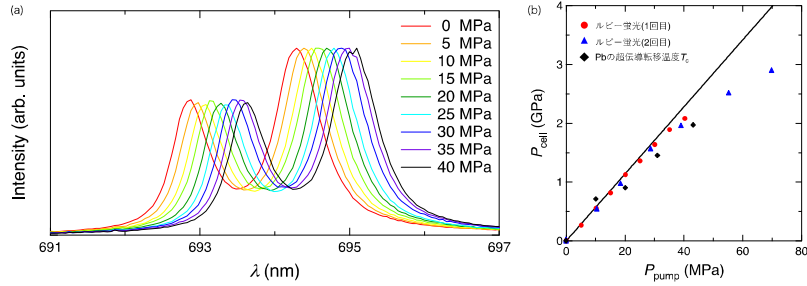


図2 .(a) ルビー蛍光の波長 ( $\lambda$ ) スペクトルとピストンシリンダーに加える荷重の関係 .(b) ピストンセル内部の圧力  $P_{cell}$  とプレス機の圧力  $P_{pump}$  の関係 .

(2)  $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  の系統的な電子物性による電子状態の解明

$MgCu_2O_3$  の Mg サイトを Li で置換した試料を高圧合成法によって作製した。X 線回折の結果、不純物ピークは  $x=0.60$  まで観測されなかった。また格子定数を評価したところ、Li 量の増大に伴って系統的に変化していたことから、原料の仕込み組成通り、Li が置換されていると判断した。従来、固相反応法で  $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  が作製可能であることは知られていたが、その固溶限界は、 $x=0.12$  とされていた。本研究によって、固溶限界は少なくとも  $x=0.60$  まで増大させることに成功したといえる。高圧合成は高原子価の化合物作製に有利であることから、高圧合成によって、固溶域が拡大したものと考えられる。一方、 $x=0.6-1$  の粉末 X 線回折像は  $x=0-0.60$  のそれとは大きく異なっており、結晶構造が大きく変化したものと考えている。

$Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  ( $x=0-0.60$ ) の電気抵抗率測定を行ったところ、室温付近の電気抵抗率は  $x=0$  において  $10^6 \Omega cm$  のオーダーであるのに対し、 $x=0.60$  においては  $10^1 \Omega cm$  のオーダーであり、Li 置換によって 5 桁という大幅な電気抵抗率の減少を確認した。しかしながら、温度依存性は全組成で半導体的な性質を示した。電気抵抗率に対して、熱活性化型の温度依存性 ( $\exp(E_g/2k_B T)$ ) を仮定してフィッティングを行い、エネルギーギャップを求めた（図3(a)）。さらに、 $x=0.60$  の試料に対して、圧力下での電気抵抗率測定を実施したところ、圧力に印加に伴い、電気抵抗率の減少は見られたものの、3 GPa までの圧力範囲では金属化には至らないことがわかった。これは、2 本足梯子型銅酸化物  $Sr_{0.4}Ca_{13.6}Cu_{14}O_{41}$  が 3.5 GPa の圧力下で金属化、超電導化するのとは対照的な振る舞いである。一方、 $MgCu_2O_3$  では中性子回折実験から、94 K でストライプ型の反強磁性秩序を形成することが知られている。磁気転移温度の Li 置換に伴う変化を明らかにするために、 $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  ( $x=0-0.60$ ) の磁化率の温度依存性を測定した。磁気転移温度付近では、磁化率に折れ曲りが見られる。磁化率の温度微分が極小値を示す温度を反強磁性転移温度  $T_N$  とし、組成に対してプロットした（図3(b)）。Li 量の増加に伴い、 $T_N$  は減少するものの、 $x=0.60$  においても  $T_N=4$  K 程度であり、反強磁性転移を完全に抑制することはできないことがわかった。磁気転移温度  $T_N$  では、比熱の温度依存性にピークが現れることがわかった。比熱において、電子とフォノンの寄与を分離するために、比熱のデータを、 $C = \gamma T + \beta T^3$  でフィッティングを行なった。その結果、得られた電子比熱係数  $\gamma$  を図3(c)に示した。 $x=0$  では  $\gamma \approx 0$  であり、これはこの物質がモット絶縁体であること矛盾しない。しかし、 $x=0.30-0.60$  では電気抵抗率の温度依存性が絶縁体的なものでも関わらず、有限の電子比熱係数が存在することがわかった。

次に、図3に示した物理量の Li 量依存性に基づいて、 $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  ( $x=0-0.60$ ) の電子状態

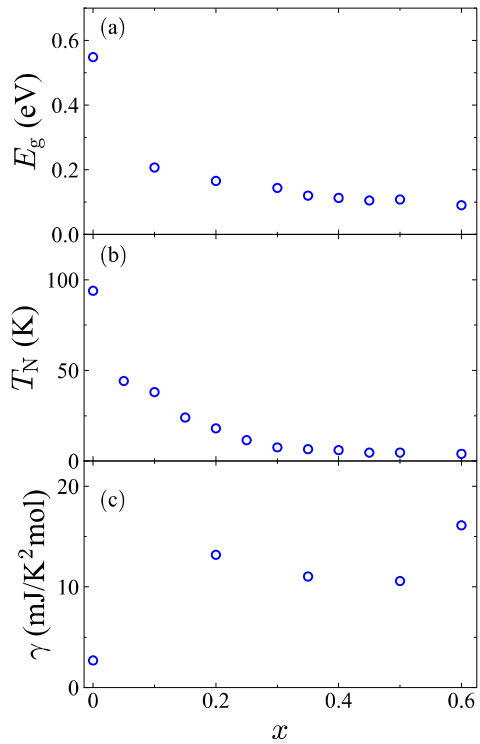


図3  $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  の (a) エネルギーギャップ  $E_g$  ,(b) 反強磁性転移温度  $T_N$  ,(c) 電子比熱係数  $\gamma$  の Li 量  $x$  依存性 .

に関して得られた知見を述べる． $x=0-0.30$  では、エネルギーギャップ  $E_g$  や反強磁性転移温度  $T_N$  は  $x$  の増加とともに急激に減少し、反強磁性秩序が急速に抑制されることがわかる．一方、 $x=0.30-0.60$  では、 $E_g$  や  $T_N$  は Li 量が増加してもほぼ一定の値を取り、反強磁性秩序は完全には抑制することはできない．ここで、注目したいのは、 $x=0.60$  におけるホール濃度は Cu サイトあたり  $0.30$  という大きな値に達していることである．これは、この系を金属化するのに十分なホール濃度と考えられ、 $\text{CuO}_2$  面を有する 2 次元銅酸化物超伝導体では、Cu サイトあたり  $0.05$  程度のホールドーピングで、モット絶縁体から金属へと変化し、長距離反強磁性秩序が破壊されるのとは対照的な振る舞いである．この原因として、第一に考えられるのは、銅の価数がリチウムや酸素欠損によって、原料の仕込みから予想される値よりも小さな値になっているという可能性が考えられる．しかし、X 線回折像に不純物ピークは認められず、格子定数も組成に対して系統的に変化することから、得られた試料の組成は、原料の仕込みとほぼ同程度であり、銅の価数は  $x=0.60$  では  $+2.30$  であると考えられる． $x=0.30-0.60$  における特異な性質を理解するために、重要な手がかりは、比熱の測定結果で見られた有限の電子比熱係数である． $x=0.30-0.60$  では、絶縁体にも関わらず、 $\gamma \approx 10.6-16.1 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$  という比較的大きな電子的な寄与が比熱に現れる．これは、一見すると絶縁体である  $x=0.30-0.60$  の組成領域では、フェルミエネルギーにおいて有限の状態密度を持っていると結論される．ここから考えられる  $x=0.30-0.60$  の電子状態を説明する候補の一つは、アンダーソン絶縁体である．実際、これらの組成領域の電気抵抗率は、熱活性化型よりも、1 次元広範囲ホッピング (VRH) でよりよく説明することができることがわかった．したがって、 $x=0.30-0.60$  では、ドーブされたキャリアが強く局在した電子状態が実現しているものと考えられ、これが、 $\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  に見られる有限の電子比熱係数と絶縁体的な温度依存性の起源であると結論できる．この強い局在効果は、低次元の結晶構造の原子サイト間の乱れによるものと考えられる． $\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  に含まれる 3 つの陽イオン  $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Li}^+$ 、 $\text{Cu}^{2+}$  はイオン半径がほぼ同程度であり、原子サイトに乱れが生じることが想定される．つまり、Mg/Li サイトに  $\text{Cu}^{2+}$  イオンが、Cu サイトに  $\text{Mg}^{2+}$  イオンや  $\text{Li}^+$  イオンが存在する可能性がある．特に、Cu 原子と Li 原子の間のサイト混合については、いくつかの無機物質で報告がある．そのため、 $\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  の  $\text{Cu}_2\text{O}_3$  梯子面は  $\text{Mg}^{2+}$  イオンや  $\text{Li}^+$  イオンといった非磁性イオンによって乱された状態にあり、その結果、ドーブされたホールキャリアが局在し、金属的な振る舞いが阻害されたものと考えられる．特に、 $\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  の  $\text{Cu}_2\text{O}_3$  梯子面は梯子の横木にあたる部分が折れ曲がっており (梯子の横木方向の Cu-O-Cu 角は  $105$  度)、 $\text{Cu}_2\text{O}_3$  梯子面の 1 次元性が強く、平坦な  $\text{Cu}_2\text{O}_3$  梯子面を持つ 2 本足梯子型銅酸化物  $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  (梯子の横木方向の Cu-O-Cu 角は  $180$  度) と比べて、輸送特性に対する乱れの影響が顕著に現れる．

一方、 $x=0.30-0.60$  の領域では、 $T_N$  以下でのスピン状態にも乱れの影響を示唆する実験結果を得た．この組成では、 $T_N = 3-6 \text{ K}$  とほぼ一定の値をとるが、 $\text{Li}^+$  のイオン半径は  $\text{Mg}^{2+}$  のイオン半径よりも  $\text{Cu}^{2+}$  のイオン半径に近いので、Li 量の増大に伴って、ホール濃度だけでなく原子乱れの効果も増加する．ホール濃度が小さい領域では、前者がより顕著であり、Cu のスピン相関はホール濃度の増加とともに急速に減少する．さらに、Li 量を増やすと後者の乱れの効果が無視できなくなり、ホール濃度が高いにも関わらず、短距離反強磁性秩序状態が存在するものと考えられる．実際、 $x=0.35$  の試料に対して、低磁場下で磁化率を測定したところ、スピングラス状態に特有の振る舞い (ゼロ磁場冷却と磁場中冷却の不可逆性) が観測された．これは、 $x=0$  のストライプ型反強磁性から、 $x=0.35$  ではスピングラス的な状態へと変化したことを示唆している．

### (3) $\text{ACu}_2\text{O}_3$ に対するドーピング効果の検証

$\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  におけるキャリアの局在化の要因は原子サイトの乱れであった．つまり、この系において、 $\text{Cu}_2\text{O}_3$  面に本質的な性質を調べるためには、その乱れを取り除く必要がある．化学的な原子サイトの乱れは 3 つの陽イオン  $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Li}^+$ 、 $\text{Cu}^{2+}$  のイオン半径が近い値であることに起因することから、Mg サイトを Ca に置換することは乱れを抑制する有用な方法になりうると考えられる．なぜなら、 $\text{Ca}^{2+}$  のイオン半径は  $\text{Cu}^{2+}$  のイオン半径よりもずっと大きいのである．そこで、常圧下における固相反応法、および、高压合成法によって、母物質  $\text{CaCu}_2\text{O}_3$  とホールをドーブした  $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  の作製を行った．常圧下では、母物質の  $\text{CaCu}_2\text{O}_3$  は単相で作製することができるものの、Na 置換は困難であることがわかった．他方、高压合成を用いた場合には、無限層構造を持つ  $\text{CaCuO}_2$  が析出し、梯子構造を持つ  $\text{CaCu}_2\text{O}_3$  や  $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  を作製することはできないことがわかった．

次に、 $\text{Mg}_{1-x}\text{Li}_x\text{Cu}_2\text{O}_3$  の乱れを軽減することを目的とした研究を実施した．乱れが比較的少なく、反強磁性転移温度が低減された状態にある、Li 量  $x=0.30$  の組成において、Mg を Ca で部分置換した  $\text{Mg}_{0.7-y}\text{Ca}_y\text{Li}_{0.3}\text{Cu}_2\text{O}_3$  を高压合成法により作製した．イオン半径から  $\text{Ca}^{2+}$  イオンが Cu サイトに入ることはないため、Cu サイトに入り込む  $\text{Mg}^{2+}$  の量を軽減できる可能性があるのでは無いかと考えた．粉末 X 線回折実験から、 $y=0-0.20$  において  $\text{Mg}_{0.7-y}\text{Ca}_y\text{Li}_{0.3}\text{Cu}_2\text{O}_3$  の単相試料が得られたことを確認した．磁化率測定から、反強磁性転移温度を見積もったところ、 $1 \text{ K}$  程度の減少は見られるものの、Ca 置換による変化は小さいことがわかった．これは、原子サイトの乱れの主たる原因は、 $\text{Li}^+$  イオンと  $\text{Cu}^{2+}$  イオンによるサイト間置換であることを示唆している．

#### (4) 鉄系梯子型超伝導体，銅酸化物梯子型超伝導体との比較

本研究で得られた  $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  の電子物性を，鉄系梯子型超伝導体  $BaFe_2S_3$ ，銅酸化物梯子型超伝導体  $Sr_{14-x}Ca_xCu_{24}O_{41}$  と比較する．これらに共通するのは，磁気転移における比熱の振る舞いである． $BaFe_2S_3$  や  $Sr_{14-x}Ca_xCu_{24}O_{41}$  ( $x = 9-11.5$ ) では，反強磁性転移により放出されるエントロピーは  $100 \text{ mJ/K Cu-mol}$  以下の値であることが知られており，Cu のスピン状態 ( $S = 1/2$ ) から予想される磁気エントロピーと比べて，はるかに小さい．これは物質の低次元性を反映して，梯子間の長距離秩序が形成される温度よりも高温において，梯子内の短距離秩序が順次形成されていることによるものと考えられる． $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  の比熱においては，反強磁性転移温度付近にピークが観測されており，磁気転移の伴って放出されるエントロピーを計算したところ， $90-120 \text{ mJ/K Cu-mol}$  であった．したがって， $BaFe_2S_3$  や  $Sr_{14-x}Ca_xCu_{24}O_{41}$  と似通った値であることから， $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  においても低次元性を反映した電子状態が実現している．

その一方で，電気抵抗率や磁化率の温度依存性には大きな違いが見られる． $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  の電気抵抗率は，室温常圧下において， $BaFe_2S_3$  や  $Sr_{14-x}Ca_xCu_{24}O_{41}$  と比べて， $10^3-10^4$  倍大きな値を持ち，圧力印加によって，金属化や超伝導化しないという点で異なっている．また， $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  の磁化率は，Curie-Weiss 的な温度依存性を示す．これは， $BaFe_2S_3$  の磁化率が，低次元系に特有な Bonner-Fisher 型の温度依存性（高温部分にブロードなピークが見られる）を示すこととは対照的である．これらの違いは， $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  の梯子面が折れ曲がっていることによるものというよりは，前述の化学的な原子サイトの乱れによるものであり，この化学的乱れの除去が， $Mg_{1-x}Li_xCu_2O_3$  における梯子面の本質的な理解には必要であると考えられる．

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yoshinori Imai, Koya Sasaki, Takuya Aoyama, Kenji Shirasaki, Tomoo Yamamura, and Kenya Ohgushi	4. 巻 101
2. 論文標題 High-pressure synthesis of heavily hole-doped cuprates Mg <sub>1-x</sub> Li <sub>x</sub> Cu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> with quasi-one-dimensional structure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245112/1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.245112	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Satoshi Imaizumi, Takuya Aoyama, Ryota Kimura, Koya Sasaki, Yusuke Nambu, Maxim Avdeev, Yasuyuki Hirata, Yuka Ikemoto, Taro Moriwaki, Yoshinori Imai, and Kenya Ohgushi	4. 巻 102
2. 論文標題 Structural, electrical, magnetic, and optical properties of iron-based ladder compounds BaFe <sub>2</sub> (S <sub>1-x</sub> Se <sub>x</sub> ) <sub>3</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035104/1-13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.102.035104	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Imai Yoshinori, Konno Katsuya, Hasegawa Yoshinao, Aoyama Takuya, Ohgushi Kenya	4. 巻 99
2. 論文標題 Hydrated lithium intercalation into the Kitaev spin liquid candidate material $\text{RuCl}_3$	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.99.245141	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計24件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 野島 倫斗, 青山 拓也, 今井 良宗, 大串 研也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物 BaFe <sub>2</sub> (S <sub>1-x</sub> Se <sub>x</sub> ) <sub>3</sub> における圧力下電気抵抗測定-II
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 角田卓弥, 島岩泰暉, 溝川貴司, 今野克哉, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, N. Saini
2. 発表標題 八二カム格子磁性体RuCl <sub>3</sub> の光電子分光
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今井良宗, 山田和奏, 藤原秀行, 青山拓也, 高橋遼太郎, 那波和宏, 萩原雅人, 奥山大輔, 鳥居周輝, 川股隆行, 後藤弘匡, 加藤雅恒, 佐藤卓, 大串研也
2. 発表標題 Kitaevスピン液体候補物質ルテニウムハライドの高圧合成
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高橋遼太郎, 那波和宏, 萩原雅人, 奥山大輔, 鳥居周輝, 今井良宗, 山田和奏, 藤原秀行, 青山拓也, 後藤弘匡, 大串研也, 佐藤卓
2. 発表標題 Kitaev模型候補物質ルテニウムハライドの結晶構造と磁気構造
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今井良宗
2. 発表標題 新しいKitaevスピン液体候補物質ルテニウムハライドの高圧合成
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」 量子物質開発フォーラム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 青山拓也, 野島繪人, 山内徹, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物 $BaFe_2X_3$ ( $X = S$ および $Se$ ) における圧力誘起軌道スイッチング
3. 学会等名 第61回高圧討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 H. Fujihara, Y. Imai, W. Yamada, T. Aoyama, R. Takahashi, K. Nawa, M. Hagihara, D. Okuyama, S. Torii, T. Kawamata, H. Gotou, M. Kato, T. J. Sato, K. Ohgushi
2. 発表標題 Ligand substitution effect of Kitaev-spin liquid candidate materials $RuX_3$ ( $X=Cl, Br, \text{ and } I$ )
3. 学会等名 令和2年度 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」領域研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takuya Aoyama, Rinto Nojima, Yoshinori Imai, and Kenya Ohgushi
2. 発表標題 Pressure-induced orbital switching in iron-based ladder material $BaFe_2(S_{1-x}Se_x)_3$
3. 学会等名 令和2年度 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」領域研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 天野辰哉, 大橋拓純, 川上洋平, 伊藤弘毅, 今野克哉, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, 若林裕助, 後藤貫太, 中村優斗, 岸田英夫, 米満賢治, 岩井伸一郎
2. 発表標題 キタエフスピン液体候補物質 $-RuCl_3$ における超高速スピンドイナミクス III
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 那波和宏, 今井良宗, 藤原秀行, 高橋遼太郎, 萩原雅人, 鳥居周輝, 奥山大輔, 平岡巧, 山田和奏, 青山拓也, 後藤弘匡, 大串研也, 佐藤卓
2. 発表標題 層状八二カム構造を有する半金属RuI3の結晶構造と物性
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 藤原秀行, 今井良宗, 山田和奏, 平岡巧, 青山拓也, 高橋遼太郎, 那波和宏, 萩原雅人, 奥山大輔, 鳥居周輝, 川股隆行, 後藤弘匡, 加藤雅恒, 佐藤卓, 大串研也
2. 発表標題 Kitaevスピン液体候補物質RuX3 (X = Cl, Br, I)の配位子置換効果
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 清水康弘, 大橋尚将, 伊藤正行, 山田和奏, 藤原秀行, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 -RuX3(X=Br, I)における核四重極共鳴およびゼロ磁場NMR
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 神田智弘, 池田修悟, 永澤延元, 今泉聖司, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, 小林寿夫
2. 発表標題 単結晶BaFe2X3(X=S, Se)の57Fe核共鳴前方散乱法による研究
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 今野克哉, 今井良宗, 長谷川慶直, 青山拓也, 大串研也
2. 発表標題 Kitaevスピン液体候補物質 -RuCl <sub>3</sub> へのアルカリ金属インターカレーション
3. 学会等名 第4回固体化学フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 天野辰哉, 赤嶺勇人, 大橋拓純, 川上洋平, 伊藤弘毅, 長谷川慶直, 佐々木宏也, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, 岩井伸一郎
2. 発表標題 Kitaevスピン液体候補物質 -RuCl <sub>3</sub> における超高速スピンドYNAMICS
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 角田卓弥, 島岩泰暉, 溝川貴司, 今野克哉, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, N. Saini
2. 発表標題 RuCl <sub>3</sub> のスピン軌道結合状態
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yoshinori Imai
2. 発表標題 Hydrated alkali metal intercalation into Kitaev spin liquid candidate material -RuCl <sub>3</sub>
3. 学会等名 AIMR Workshop on Quantum Materials and Spintronics: Spin, Topology and Superconductivity (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Katsuya Konno, Yoshinori Imai, Yoshinao Hasegawa, Takuya Aoyama, Kenya Ohgushi
2. 発表標題 Alkali metal intercalation effect on a Kitaev spin liquid candidate material -RuCl <sub>3</sub>
3. 学会等名 GP-Spin Student Organized Seminar 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 天野辰哉, 赤嶺勇人, 大橋拓純, 川上洋平, 伊藤弘毅, 今野克哉, 長谷川慶直, 佐々木宏也, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, 若林裕助, 米満賢治, 岩井伸一郎
2. 発表標題 キタエフスピン液体候補物質 -RuCl <sub>3</sub> における超高速スピンドイナミクス II
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今野克哉, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 アルカリ金属インターカレーション化合物 $A_xRuCl_3 \cdot yH_2O$ (A = Li, K, Rb)の合成と物性
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 野島倫斗, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 梯子型鉄系化合物 $BaFe_2(S_{1-x}Se_x)_3$ における圧力下電気抵抗測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 工藤真裕, 江見知俊, 青山拓也, 今井良宗, 木村尚次郎, 大串研也
2. 発表標題 空間反転対称性の破れた磁性体Ba1-xKxMn2As2の磁気輸送現象
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今野克哉, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 K1 taevスピン液体候補物質 -RuCl3へのアルカリ金属インターカレーション
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 木村遼太, 今泉聖司, 佐々木宏也, 池本夕佳, 森脇太郎, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也
2. 発表標題 擬一次元梯子型鉄系化合物BaFe2(Se1-xSx)3 の赤外分光
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	大串 研也  (Ohgushi Kenya)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	青山 拓也  (Aoyama Takuya)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関