様式 C-19

科学研究費補助金研究成果報告書

平成　21 年　6 月　5 日現在

研究種目：基盤研究（C）
研究期間：2007～2008
課題番号：19540383
研究課題名（和文）　蛍光収量 XMCD 実験によるウラン化合物のメタ磁性転移の研究

研究課題名（英文）　Fluorescence Yield XMCD Study for Metamagnetic Transition in Uranium Compounds

研究代表者
岡根　哲夫（OKANE TETSUO）
独立行政法人　日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
研究者番号：10391278

研究成果の概要：
大型放射光施設SPring-8 の原子力機構専用ビームラインBL22XUにシリコンドリフト検出器を備えたXMCD計測系を構築し、その立ち上げを行った。このXMCD計測システムを用いて、磁性アクチナイド化合物に対する$M_{4,5}$吸収端でのXMCD実験による研究を開始し、メタ磁性転移を示すアクチナイド化合物として重要なNp115 型化合物に対する$M_{4,5}$吸収端でのXMCD実験を行った。実験の結果、測定物質の異なる磁気秩序相の間の 5f磁性状態の相違点についての重要な知見を得た。
以上の実験結果をまとめた論文を現在 Physical Review B 誌に投稿中である。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合　計
2007 年度	3,100,000	930,000	4,030,000
2008 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総　計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：数物系科学
科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ
キーワード：アクチナイド，メタ磁性，X 線吸収，磁気円二色性，放射光

１．研究開始当初の背景

(1) 外部磁場の印加によって系の持つ磁性状態が変化するメタ磁性転移のメカニズムの解明は、基礎物理学の問題として、さらに機能性材料の開発からも、重要な課題とされている。ウランを初めとするアクチナイド化合物では 5f 電子の性質に起因する多様で複雑な磁性が観測されているが、メタ磁性転移を示す化合物が数多く見つかっている点が特徴的である。そのため、メタ磁性転移の発現機構を明らかにすることは 5f 電子の性質とそれに起因する多様で特異な物性の全体像を理解する上で不可欠な課題となっている。

(2) 円偏光放射光を利用したＸ線吸収磁気円二色性（X-ray absorption Magnetic Circular Dichroism；以下 XMCD）測定実験は、化合物中の特定の元素の特定

の電子軌道に関する磁性情報を選択的に抽出することができ、かつ磁気モーメントの軌道成分とスピン成分を分離して値を求めることができる強力な実験手法である。強いスピン軌道相互作用を持ち、軌道モーメントが支配的な役割を果たしているという点が 5f 電子磁性の特徴であるため、軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントを分離して求めることは 5f 電子磁性の理解する基礎となる重要な知見である。特に軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントの比は、5f 電子の遍歴・局在性の変化の一つの指標となると考えられるので、これを定量的に定めることはメタ磁性転移での 5f 電子状態の変化を議論する指針を与える。

(3) この研究の開始時点では、国内にアクチナイドの$M_{4,5}$吸収端付近のエネルギー領域でXMCDを測定できる実験施設は全く存在せず、先行する海外の放射光施設の研究グループに遅れを取っていた。海外のグループにおいても、これまでにXMCDが測定されたアクチナイド化合物はウラン化合物だけで、ネプツニウムといった超ウラン元素も含む化合物に対するXMCD実験の例は無かった。そのため、国内の放射光施設において、超ウラン元素を含めたアクチナイドの$M_{4,5}$吸収端付近のエネルギー領域でXMCD測定設備の整備が強く望まれていた。

２．研究の目的

(1) 大型放射光施設 SPring-8 の原子力機構専用ビームライン BL22XU に蛍光収量 XMCD 検出システムを構築する。

(2) メタ磁性転移を示すウラン化合物或いはアクチナイド（A_n）化合物に対して、A_n $M_{4,5}$吸収端での蛍光収量法でのXMCD測定実験を行い、5f電子の軌道モーメントとスピンモーメントの大きさが磁気転移においてどのように変化するかを明らかにする。

３．研究の方法

(1) ウラン化合物を初めとするアクチナイド化合物は放射性を有するため、安全上，非放射性試料と同様の簡便な取り扱いが許されない。そのため、放射光実験を行うに際しては、金属ベリリウムを使った X 線透過用の窓を備えた密閉容器に封入した「密封試料」として取り扱うという方法が最も運用しやすい。この状況で X 線吸収スペクトルを測定しようとする場合に、全電子収量法の適用は技術的に難しいため、「蛍光収量法」での測定を採用した。

(2) XMCD 測定は、円偏光のヘリシティを変えた際の吸収スペクトルの間の差分を取る実験であるので、高い統計精度でのスペクトル計測が求められ、このために高計数可能な X 線検出器が必要である。さらに、硬 X 線領域での XMCD 実験に用いる検出器については、バックグラウンドを低減させる方法として必要な蛍光成分のみを抽出することが有用であることから、高いエネルギー分解能を有していることも望まれる。高計数性と高エネルギー分解能という相反する性能を両立させた検出器が「シリコンドリフト検出器(Silicon Drift Detecter ; 以下 SDD)」であり、本研究では SDD を中心とした XMCD 計測システムを整備した。

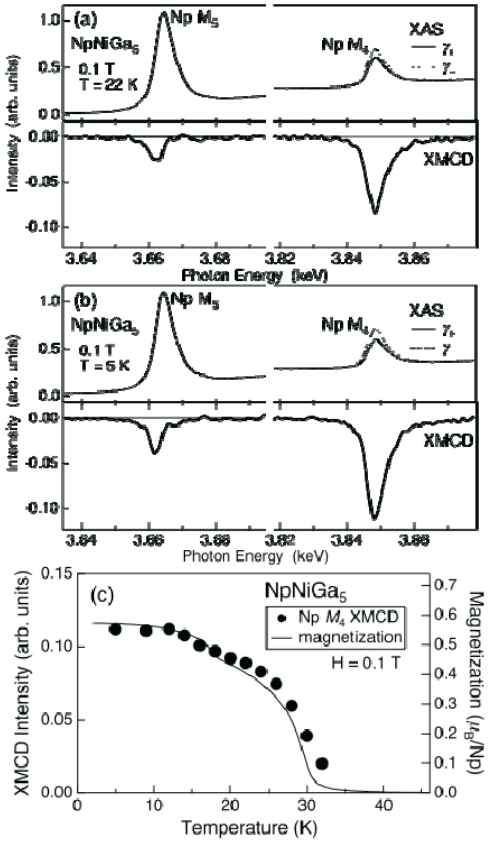
(3) 得られるスペクトルの統計精度を上げるためには、SDD の検出部の取り込み立体角を大幅に大きくすることが重要なポイントであるが、本研究での XMCD 測定系は超伝導マグネット槽内の狭い空間に設置するため、検出器本体を試料位置に近づけることには限界があった。そこで、SDD の検出器本体から先端検出部までの距離を 300mm と長くした設計を採用するとともに、超伝導マグネット槽内において試料位置のできるだけ近くに検出器先端部を設置できるように設置治具を製作した。これにより、検出能を大幅に向上させることに成功した。

(4) アクチナイドの 5f電子の磁気的性質を調べるためには、A_n $M_{4,5}$吸収端でのXMCD測定が有効である。これは 3.5ー5keVのエネルギー領域に当たるが、このエネルギー領域を使った実験を行える放射光ビームラインは世界的に見ても多くない。SPring-8 の原子力機構専用ビームライン BL22XUは、3.5ー5keVのエネルギー領域での単色X線の利用が可能なビームラインであり、XMCD測定に不可欠である円偏光X線を生み出すためのダイヤモンド位相子を備えている。さらに実験ステーションには、試料に 0ー6Tの磁場を印加できる超伝導マグネットを備えるとともに、ヘリウムクライオスタットによる試料冷却機構（室温ー5K））を備えている。これ

らを用いて、XMCDスペクトルの磁場依存性，温度依存性の測定行うことにより、メタ磁性転移や多段磁性転移における 5f磁性状態の変化についての知見を得ることに成功した。

４．研究成果

当初計画で最初に実験する予定であったUCu_2Si_2試料については、単結晶試料の育成が成功せず、今年度に確保したビームタイムへの試料供給が間に合わない見込みとなったため、メタ磁性転移を示すアクチナイド化合物の関連物質として緊急に実験を行うことが求められていたNp115 型化合物に対するXMCD実験を繰り上げて行うこととした。今回測定した$NpNiGa_5$は、温度効果とともに強磁性からcant反強磁性へと二段階の磁気転移を示すことから興味が持たれている物質である。容易軸に垂直な面に強磁場をかけるとcant反強磁性がそろえられて強磁性となるメタ磁性的振る舞いが観測されている。今年度の実験では$NpNiGa_5$の二つの磁気秩序における 5f電子の磁性状態の違いを明らかにすることを目的として、Np $M_{4,5}$吸収端でのXMCD



の温度依存性の詳細測定を行った。

図１：$NpNiGa_5$のNp $M_{4,5}$吸収端で測定したXMCDスペクトル
(a) 高温磁気秩序相でのスペクトル
(b) 低温磁気秩序相でのスペクトル
(c) M_4 XMCD強度の温度依存性

実験の結果、$NpNiGa_5$が磁気秩序を起こす温度において明瞭なNp $M_{4,5}$ XMCDスペクトルを観測することに成功した。これはNp化合物に対する$M_{4,5}$吸収端でのXMCD 測定の初めての実験例である。XMCDスペクトルの解析から、この物質の二つの磁気秩序状態のそれぞれについて、軌道磁気モーメントをスピン磁気モーメントの大きさを分離して定量的に求めることに成功し、その結果から期待されるNp 5f電子数を定めた。また、二つの磁気秩序状態間で軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントの比が変化する傾向にあることを明らかにし、二つの磁気秩序状態の発現機構がNp 5f電子の遍歴・局在性の変化と密接に結びついている可能性を示唆する重要な結果を得た。

５．主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔学会発表〕（計　1 件）

<u>岡根哲夫</u>，他，「$NpNiGa_5$のNp $M_{4,5}$吸収端でのX線吸収磁気円二色性測定」日本物理学会 2008 年秋季大会　2008 年 9 月 21 日　岩手大学

６．研究組織

(1)研究代表者
岡根　哲夫（OKANE TETSUO）
独立行政法人　日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
研究者番号：10391278

(2)研究分担者
竹田　幸治（TAKEDA YUKIHARU）
独立行政法人　日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・任期付研究員
研究者番号：50399416

大河内　拓雄（OHKOCHI TAKUO）
独立行政法人　日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・博士研究員
研究者番号：00435596

稲見　俊哉（INAMI TOSHIYA）
独立行政法人　日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
研究者番号：30354989

(3)連携研究者
山上　浩志（YAMAGAMI HIROSHI）
京都産業大学・理学部・教授
研究者番号：20239867