

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 12 日現在

機関番号：82110

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654113

研究課題名(和文) アルファ崩壊で探る固体内電子状態

研究課題名(英文) Electronic states of materials investigated by alpha decay process

研究代表者

芳賀 芳範 (Haga, Yoshinori)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・研究主幹

研究者番号：90354901

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円、(間接経費) 840,000円

研究成果の概要(和文)：固体内の電子状態を微視的に探るプローブとして、ガンマ線及びベータ線は広く用いられているが、アルファ線は資料に対する自己照射や発熱をもたらすため、用いられてこなかった。本研究では、アルファ放射体であるアクチノイド元素を主たる対象として、アルファ線測定技術の開発を行った。極低温及び磁場中における整列からのアルファ線放出の角度依存性の検出を目的として、(1)アクチノイド化合物単結晶を作成し、(2)極低温で動作する小型アルファ線検出用カロリメータの設計制作、(3)角度回転機構の制作を行った。これを用いて、極低温環境下でのアルファ線の検出に成功し、十分な性能を有していることを実証した。

研究成果の概要(英文)：Although gamma-ray and beta-ray spectroscopy techniques are widely used as a microscopic probe for electronic state investigations, alpha-ray has not been utilized because of the radiation damage or the self-heating effect. In the present study, a technique for the possible alpha-ray spectroscopy is proposed and an apparatus for the alpha-ray detection at low-temperature was developed. The principal idea is to detect anisotropy of alpha-ray emission from the oriented nuclei at low temperature and under magnetic field. For this purpose, (1) a single crystal of actinide material has been prepared, (2) a micro calorimeter working at low temperature under magnetic field was designed and fabricated, and (3) a rotation mechanism was implemented. Using these systems, alpha-particles emitted from the single crystal sample were successfully detected.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学

キーワード：アルファ崩壊 アクチノイド 電子状態

## 1. 研究開始当初の背景

固体の電子状態を探る様々な測定手段の中で、原子核を用いた分光は、電子系が核位置に与える情報を微視的に検出する極めて有効な手段である。現在までに、核磁気共鳴 (NMR) 無反跳線共鳴吸収 (メスバウア効果) 崩壊に伴う線放出の温度測定への応用等が行われている。

歴史的には、NMR (1938年) が最初に試みられた。現在では物性科学、構造解析から医療における核磁気共鳴画像法 (MRI) まで、その応用範囲は極めて広い。

また、メスバウア効果は、崩壊に伴い放出された線を、固体内の同じ核種が無反跳で受け止め、しかもドップラー効果を利用して極めて高いエネルギー分解能を達成し、これにより固体内の電子状態の検出に成功している。

NMR 及びメスバウア効果は、ともに核エネルギー準位のゼーマン分裂及び四極子分裂を利用するため、核スピンを持つ原子核だけに適用可能である。メスバウア効果に関しては、さらに、線源として、同核を娘核として持つ崩壊核種が必要とされる。幸い、生体や有機物は水素原子 (核スピン 1/2) を含むため、NMR が適用可能である。一方メスバウア分光の代表的核種は  $^{57}\text{Fe}$  であり、Fe の磁性そのものだけでなく、Fe を含む合金や化合物等に適用可能であった。

これに対して、線が固体内電子状態研究のプロープとして用いられる事はこれまでなかった。その理由として、

- (1) 放射体自身が非常に取り扱いにくく、物質科学の対象となりにくいこと、及び、
- (2) 真空が要求されるなど、線検出そのものが難しいこと
- (3) 線の異方性を検出するためには核を十分整列させなければならず、極低温が必須である。

が挙げられる。

前者に関して、放射体の代表例はウランをはじめとするアクチノイド元素である。ウラン及びプルトニウムは核燃料を構成する代表的な元素である。また、これらは不完全殻 5f 電子を持つ元素であり、f 電子による磁性が現れるだけでなく、大きな核電荷ポテンシャルによる相対論効果の影響が顕著な系であり、これらが固体内でどの様に振る舞うかは、核燃料という応用的見地のみならず、多電子系の電子状態の理解という点で、固体物性研究の大きなテーマとなっている。特に最近ではプルトニウム、ネプツニウム化合物における特異な超伝導状態や、ウラン化合物における未知の自由度の相転移の発見がなされ、理論、実験ともに精力的な研究が行われている。

後者の点は、実際の実験上の問題として残るが、後で詳しく述べるように、固体物性の技術を放射線計測に応用する事により、比較的コンパクトな測定装置が構築可能である。

## 2. 研究の目的

物質の性質を特徴づける電子は、その情報を原子核に伝える。その情報は、特定の原子位置の情報を抽出する事が可能で、かつ、対象物質以外のプローブを導入する必要がない、理想的な測定方法である。始めに述べたように、NMR やメスバウア効果の応用範囲は極めて広く、日常的に用いられている。

その一方で、この種の測定は核の性質に依存する。具体的には、NMR は内部磁場や電場勾配が核エネルギー準位を分裂させるため、期待状態で有限の核スピンを持つ核種のみが対象となる。メスバウアも同様であるが、その性格上、線源となる親核種の存在が必須である。

本研究で提案しようとしている線を利用した分光では、原子核が変形しており、線の放出確率が異方的であれば良い。典型例としては、アクチノイド系列の核が挙げられる。アクチノイド元素は、同時にほとんどが崩壊を起こすため、この種の測定に適している。また、アクチノイド元素及びその化合物の電子状態に関する研究は近年急速に発展して来ている。すなわち、アクチノイドの 5f<sub>s</sub> 電子が持つ大きなスピン・軌道角運動量に由来する多自由度、及び大きな核電荷ポテンシャルに由来する相対論効果が引き起こす電子の非局在化が、他の元素では見られない特異な電子秩序状態を形成する事がわかって来た。これらの現象を解明する手段として、核分光は極めて有力であるが、これまでにアクチノイド核からの情報はほとんど得られていない。235-U、237-Np、239-Pu はいずれも核スピンを有するが、この中で固体 NMR に成功しているのは 235-UO<sub>2</sub> 及び 235-USb<sub>2</sub> だけである。これらはいずれも絶縁体またはキャリア濃度の低い金属であり、その結果核スピンの緩和時間が非常に長いため、観測に成功している。逆に、特異な電子秩序状態を持つ物質は電子密度が高い、「重い電子系」と呼ばれる物質群に属し、その緩和時間は極めて早く、測定は困難である。一方、238-U、237-Np はメスバウア分光の対象核である。特に 237-Np は放射性物質であるにもかかわらず、メスバウアに適した核であり、広く研究が行われている。238-U も研究例が多いが、核準位の寿命が短いためエネルギー分解に劣り、また線源として Pu が必要のため専用施設での測定が必須である。

これに対して、線による分光は核スピンの有無によらず、原理的に上記全ての核種に適用可能である。

事実、同様のアイディアによる測定は、核物理研究グループにより、2000 年頃から行

われている。

しかしながら、前述の通り、放射体からの線を、電子状態研究のプロープとして利用する事は試みられたことがなかった。

- (1) 放射体自身が非常に取り扱いにくく、物質科学の対象となりにくいこと、及び、
- (2) 線の異方性を検出するためには核を十分整列させなければならず、極低温が必須である。
- (3) 真空が要求されるなど、線検出そのものが難しいこと

これらは、しかし以下の方法で克服できると考えられる。

まず、申請者はアクチノイドを対象とした物性研究を行っており、これを実験的に取り扱う環境は整っている。核整列に関しては、極低温と磁場の両方が必要となるが、アクチノイド核の強い超微細相互作用は電子系の磁気モーメントを増幅し、核位置に非常に強い内部磁場を作り出すことを利用すれば、比較的「高温」での検出も期待できる。最後に問題となるのは低温磁場中という限られた環境での線検出である。ここでは低温環境を逆手にとる。すなわち、線エネルギーを直接熱に変換し、マイクロカロリメトリーによりこれを検出する。この手法もまた、物性研究で利用する比熱測定技術を応用することで達成可能であるし、事実、高エネルギー分解線測定法として国際的にも開発が進んでいる。

以上のように、科学的に興味が高まりつつあるアクチノイド電子状態の研究の新たなプロープとして、核物理及び放射線計測の最新の発展を導入した線分光法を提案する。

### 3. 研究の方法

この研究の着想のきっかけとなったのは、核物理研究グループによる線放出確率の測定実験である。ここでは、加速器で生成した同位体を複数の半導体検出器でかつ極低温で検出する極めて大掛かりな物であった。

代表者は、これまでの経験をふまえて同様の測定が実験室レベルで可能であると考え、比熱測定装置の製作経験を生かしてカロリメータを設計、製作した。さらに、カロリメータ自身を可能な限り小型化し、極低温、磁場中、かつ異方性測定を可能にすることを計画した。

### 4. 研究成果

まず予備実験を行い、アルファ線検出部の測定パラメータを検討した。線検出部に相当するボロメータの熱容量は、測定温度 0.3K 付近で 14 nJ/K、ボロメータと熱浴間の熱伝導度は 32 nJ/K である。1 個の粒子のエネ

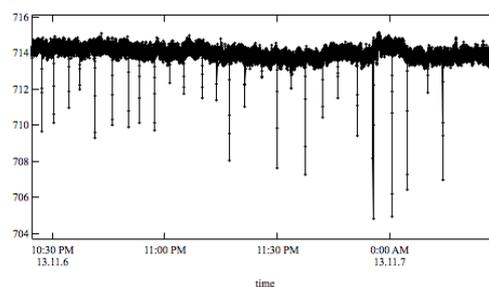
ルギーは 1 pJ 程度であるため、予備実験からさらに感度をあげる必要がある。

まず、ボロメータの熱容量を減らし、アルファ線のエネルギーによる温度上昇を大きくすることを試みた。しかし、これは同時に様々なノイズによる発熱も増やす結果となった。そこでさらに熱浴との結合を強くし、発熱しにくい状況を作ると、今度は熱の緩和が非常に早くなり、データ収集時のサンプリング速度を上げる必要が生じる。様々な最適化を加えた結果、アルファ線検出に十分な性能を達成することができた。

また、測定対象となる試料物質の選定及び単結晶育成を行った。

図には、アクチノイド化合物単結晶からのアルファ線検出の様子を示す。測定試料は、強磁性体として知られる URhGe (キュリー温度 10K) である。本物質の強磁性は強い一軸異方性を示すことが知られており、核の整列を行うにもふさわしいと考えられる。

縦軸はボロメータの温度測定に用いた抵抗センサ(Lakeshore 社製 Cernox)の抵抗値、横軸は時間である。抵抗センサの抵抗値は温度上昇とともに減少する。従ってアルファ線吸収による発熱イベントは下向きのスパイクとして観測される。測定温度は 0.3 K である。



得られたアルファ線のイベント数は、事前に検出器を用いて測定した結果とコンシステントであった。

以上により、実際のアクチノイド元素が放出するアルファ粒子を、低温、磁場中で検出可能であることを実証した。さらに検出器角度を変更する機能も付加しており、固体内電子状態の新たな微視的プロープとしてアルファ線を用いることが可能となった。まず、強磁性体などの典型物質についてデータを蓄積することにより、核位置における内部磁場及び電場勾配に関する情報が得られる。さらには、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>に代表される起源不明の相転移の本質解明にも応用できると期待される。一方、ここまでの議論は核スピンと磁気モーメント間の超微細相互作用に基づく核整列整列を前提として議論した。しかし、本測定が核スピンを持たない変形核にも適用可能であることを考慮すると、これまでほとんど議論されたことのない、電場勾配と変形核の相互作用に関する情報が得られる可能性がある。

## 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)

[雑誌論文](計 7 件)

Y. Haga, Y. Homma, D. Aoki, K. Nakajima, Y. Arai, T.D. Matsuda, S. Ikeda, H. Sakai, E. Yamamoto, A. Nakamura, N. Tateiwa, Y. Onuki and Z. Fisk, 査読有り、J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) SB007-1-4, DOI:10.1143/JPSJS.81SB.SB007

I. Kawasaki, S.-i. Fujimori, Y. Takeda, T. Okane, A. Yasui, Y. Saitoh, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto and Y. Onuki, 査読有り、Phys. Rev. B 87 (2013) 075142-1-6, DOI:10.1103/PhysRevB.87.075142

S. Kittaka, K. An, T. Sakakibara, Y. Haga, E. Yamamoto, N. Kimura, Y. Onuki and K. Machida, 査読有り、J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 024707-1-5, DOI:10.7566/JPSJ.82.024707

T.D. Matsuda, N. Tateiwa, E. Yamamoto, Y. Haga and Z. Fisk, 査読有り、J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) SB037-1-4, DOI:10.1143/JPSJS.81SB.SB037

Y. Onuki, R. Settai, T. Takeuchi, K. Sugiyama, F. Honda, Y. Haga, E. Yamamoto, T.D. Matsuda, N. Tateiwa, D. Aoki, I. Sheikin, H. Harima and H. Yamagami, 査読有り、J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) SB001-1-18, DOI:10.1143/JPSJS.81SB.SB001

M. Sakoda, K. Kubota, S. Tanaka, E. Matsuoka, H. Sugawara, T.D. Matsuda and Y. Haga, 査読有り、J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) SB011-1-4, DOI:10.1143/JPSJS.81SB.SB011

Y. Shimizu, Y. Haga, Y. Ikeda, T. Yanagisawa and H. Amitsuka, 査読有り、Phys. Rev. Lett. 109 (2012) 217001-1-5, DOI:10.1103/PhysRevLett.109.217001

[学会発表](計 1 件)

Y. Haga, "High-quality single crystal growth and electronic state investigation of actinide intermetallic compounds, Actinides 2013, Karlsruhe, Germany (July 21-26, 2013)

[図書](計 0 件)

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

[その他]

ホームページ : <http://asrc.jaea.go.jp>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

芳賀 芳範 (HAGA, Yoshinori)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門先端基礎研究センター・研究主幹  
研究者番号 : 9 0 3 5 4 9 0 1

(2)研究分担者

(3)連携研究者

立岩 尚之 (TATEIWA, Naoyuki)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門先端基礎研究センター・研究主幹  
研究者番号 : 5 0 3 4 6 8 2 1

松田 達磨 (MATSUDA, Tatsuma)  
首都大学東京・大学院理工学研究科・准教授  
研究者番号 : 3 0 3 7 0 4 7 2

山本 悦嗣 (YAMAMOTO, Etsuji)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門先端基礎研究センター・研究副主幹  
研究者番号 : 5 0 3 4 3 9 3 4

小浦 寛之 (KOURA, Hiroyuki)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門先端基礎研究センター・研究副主幹  
研究者番号 : 5 0 3 9 1 2 6 4

本間 佳哉 (HOMMA, Yoshiya)  
東北大学・金属材料研究所・助教  
研究者番号 : 0 0 2 6 0 4 4 8