

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 27 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26400290

研究課題名(和文) 中重核領域の中性子過剰核の磁気モーメント測定と希土類不純物の超微細場の研究

研究課題名(英文) Studies on hyperfine fields of rare-earth-element impurities and the measurements of magnetic moments of neutron-rich nuclei in medium-mass region

研究代表者

谷垣 実 (Tanigaki, Minoru)

京都大学・原子炉実験所・助教

研究者番号：90314294

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性体中の希土類不純物の超微細場を精密に測定し、中重核領域の中性子過剰核の磁気モーメント決定の際の基準となる原子核の磁気モーメントを再評価することで、この領域全体の原子核の磁気モーメントの精度向上を目指した。鉄中のPm-147および鉄中のCe-140の摂動角相関測定を行い、高分解能のCdZnTe検出器を採用した新しい摂動角相関測定系を完成させたが、法規制で研究期間の大部分において京大の研究炉が期間稼働せず、精度向上に必要なデータ取得まで至らなかった。

研究成果の概要(英文)：Re-evaluations of the magnetic moments of unstable nuclei in medium-mass region were intended by improving the reliability of the magnetic moment of reference nucleus through the re-measurement of hyperfine field of rare-earth elements in ferromagnetic materials. TDPAC measurements of Pm-147 and Ce-140 in Fe, and the development a new TDPAC measurement system were performed, but magnetic moments of unstable nuclei in medium-mass region were not performed due to the operation of the nuclear reactor at Kyoto University were terminated by legal regulations for most of the period in this study.

研究分野：原子核物理

キーワード：摂動角相関 核磁気モーメント 超微細場 RIビーム

## 1. 研究開始当初の背景

質量数が 100~160 程度の中性子過剰核は原子核の多様な性質が顕著になる領域で、 $Z=50$ 、 $N=82$  の二重閉殻  $^{132}\text{Sn}$  近傍や集団運動の効果が現れるランタノイド領域を含んでいる。この領域の核は核分裂生成片として容易に得られ、小型の加速器・原子炉と組み合わせたオンライン質量分析器で高純度・高強度 RI ビームとして取り出せるが、近年まで、その取り扱いの難しさから定性的な説明が中心であり、測定も余り進んでいなかった。

しかし近年 Brown らによって精度の良い計算が行われ、大きな芯偏極や中間子交換流効果がみられる可能性が指摘され、この領域の励起準位の磁気モーメントの精度改善が求められる状況となり、実験による再評価が世界各地で始まりつつある状況であった。

原子核の磁気モーメント測定では磁場中における原子核の歳差運動を観測することになるが、一般に励起準位の寿命は極めて短いため、通常の磁石で生成される磁場では十分な歳差運動が得られない。そこで、これまで行われたこの領域の磁気モーメント測定では、強磁性体をイオンが高速に通過する際に発生する磁場である Transient Field を利用して測定が行われていた。この Transient Field は  $kT$  におよぶ極めて大きな磁場が得られる一方、未だ理論的には定量的な説明に成功しておらず、経験的に知られている現象論的な評価式に則って見積もられている状態である。そこで、多くの実験では磁気モーメントが既知の特定の原子核の特定の励起準位を基準として Transient Field を校正し、目的の原子核の磁気モーメントを決定している。しかし、校正に使われる原子核の磁気モーメントには数十%にもおよぶ大きな誤差があることが知られている。たとえば、Nd 同位体などで利用されている基準である  $^{148}\text{Nd}$  の 302 keV 準位の核磁気モーメントは  $\mu = +0.64 \pm 0.08 \sim +0.83 \pm 0.09 \mu_N$  となっており、この磁気モーメントの精度が改善されれば系統誤差の改善の効果が大きいことがわかる。

一方強磁性体中の希薄不純物原子の原子核位置には強力な超微細場（希土類元素では数百 T にも及ぶ）が発生する。この超微細場は結晶構造やその電子構造で決まるものであり、強磁性体中に希薄に存在し、不純物原子同士が相互に影響せず孤立した状態にある時の不純物原子中の原子核の感じる超微細場は、物性理論においても電子構造の第一原理計算検証に最適な例とされており、従来より理論計算と実験による測定の両面から研究が精力的に進められている。特に f 電子により特異な物性の発現するランタノイドでは、超微細場も f 電子からの大きな寄与をうけ元素 (f 電子の数) に応じて  $\pm$  数百 T で変化する格好の対象として注目されている。

Torumba らはランタノイドの超微細場に

ついて信頼性の高いデータが少なく理論計算の検証が難しい事、理論計算のモデルにより 500 ~ 800 T と大きく予想の異なる Fe 中の Ho の超微細場の値が実験的に決定される事、Fe 中の Pr ~ Sm についてより信頼性の高い実験値が決定されることが第一原理計算の検証に極めて有効であると指摘している。このように強磁性体中の希土類元素不純物の超微細場の実験的な研究への要求が高い状態にある。

この超微細場の大きさは ps ~  $\mu\text{s}$  のような短寿命の原子核の励起準位で十分な歳差運動を得られる強さであることから、ランタノイド領域の原子核の励起準位の核磁気モーメントの測定のためにも強磁性体中の希土類元素不純物の超微細場の実験的な研究が求められている状況にある。

## 2. 研究の目的

質量数が 100~160 程度の中性子過剰核の励起準位の磁気モーメントは Transient Field の校正に使っている磁気モーメントの精度向上で系統的に精度を向上できる可能性がある。またそのためには磁性体中の超微細場を利用できる可能性があると考えられる。また、ランタノイド領域では超微細場の測定の信頼性にも問題がある。

このことから、本研究では Fe 中のランタノイド元素の超微細場を精度よく測定して超微細場の理解を進める。特に Trumba らが信頼できる実験値の必要性を指摘している Pr~Sm の測定を行い、すでに行われている第一原理計算の結果との比較を行う。希土類元素は f 電子がその特徴的な物性に重要な役割を果たしており、超微細場でも重要な役割を担っていることから、希土類元素の超微細場の精密測定により希土類元素の特異な電子構造に関する知見が得られることも期待される。

そして Transient Field の校正に使われている  $^{145}\text{Nd}$  の 73keV 準位、 $^{148}\text{Nd}$  の 302 keV 準位の磁気モーメントを摂動角相関法を用いて測定しその精度向上を試みる。その結果をもとにこれまでの 100~160 程度の中性子過剰核の励起準位の磁気モーメントの再評価を行う。多くの研究の採用する基準値の信頼性を向上し、この領域の磁気モーメント測定の系統的な再測定と同様の効果が得られる。その他中重核領域での Brown らの計算の検証のため、 $^{130}\text{Te}$  の 1815 keV 準位についても摂動角相関による測定を試みる。

## 3. 研究の方法

原子核と物性という一見関係なさそうな分野を結ぶのが摂動角相関法である。これは、磁気モーメントを持つ不安定核の励起準位の静磁場中での歳差運動に伴う放出線力スケードの異方性変化を利用した手法で、既

知の磁場下の測定で磁気モーメント、また磁気モーメント既知の原子核を使って磁場を決定できる。放射線で歳差運動を観測するため、通常の NMR より極端に少ない ( $\sim 10^{11}$  個/cc) 程度の測定対象となる原子核があれば検出可能な事、NMR などのように高周波でのスピン操作が不要で表皮効果や共鳴周波数探索の困難がない利点がある。

今回の研究では、よく定義された結晶場である強磁性体中の超微細場を利用する点も重要である。寿命の短い励起準位の磁気モーメント測定で使われる Transient Field は動的場であり、理論的な取扱いが難しく現象論的な経験則で推定されている。そのためしばしば磁気モーメントが既知の準位で校正されるが、この基準となる磁気モーメントが校正無しの Transient Field で決定されている上に、これまでの報告値にも食い違いがあり系統誤差が大きい。一方、超微細場は物質中の不純物核の位置に静的に発生する磁場であり、Transient Field と比べても、数多くの不純物元素で精度よく決定されている。たとえば、

Fe 中の Nd :  $+304 \pm 71$  T

Fe 中の Sm :  $+314 \pm 35$  T

Ni 中の Nd :  $+167 \pm 39$  T

Ni 中の Sm :  $+177 \pm 17$  T

(K. Krane Hyp. Int. 15/16(1983)1069 より)

となっており、その機構も経験則ではなく第一原理計算で一定の精度で与えられる程度に理解されている。磁気モーメント測定に適している。この超微細場で Transient Field 校正用の磁気モーメントを精度よく決定する。

今回の研究では測定対象となる不安定核の親核を生成し、その後不純物として磁性体中に導入する必要がある。そのため、京都大学複合原子力科学研究所の保有するオンライン型質量分離装置 (KUR-ISOL) を使用することとした。この KUR-ISOL は京都大学複合原子力科学研究所の保有する 5 MW 原子炉に設置されており、原子炉で発生した熱中性子を純度 93% の  $^{235}\text{U}$  に照射して誘導した核分裂により生成した核分裂生成片をガスジェットによりイオン源に輸送、イオン源でイオン化したあと加速・質量分離することで、目的核を最大 100 keV の RI ビームとして取り出すことができる装置である。今回の研究では、この RI ビームを磁性体試料に照射することで力学的に測定対象の原子核を磁性体中に注入する。

#### 4. 研究成果

##### (1) Fe 中 Pm の超微細場測定

Trumba らにより信頼できる超微細場測定の必要性が指摘されている Pr~Sm 領域の元素の一つである Pm の超微細場測定を行なっ

た。

測定は Fe 試料中に注入した  $^{147}\text{Pm}$  ( $^{147}\text{Nd}$ ) の 91 keV 準位 ( $I = 5/2^+$ ,  $T_{1/2} = 2.5$  ns) について、角相関の非対称度が歳差運動とともに変化する周期を観測する時間微分型摂動角相関法によりおこなった。 $^{147}\text{Pm}$  の親核である  $^{147}\text{Nd}$  (半減期 10 日) は KUR-ISOL で酸化物法により RI ビームとして取り出し、100 keV まで加速して多結晶状態の Fe 箔に注入、 $^{147}\text{Nd}$  のベータ崩壊に伴い生成される  $^{147}\text{Pm}$  の 91 keV 準位を挟む 440 keV - 91 keV カスケードについて、 $\pm 135$  度の角度の角相関で測定を行う 3-counter 法、90 度と 180 度の角相関で測定を行う 4-counter 法の両方でおこなったが、今回観測された角相関では有意な時間変化パターンを得ることができず、時間微分型で観測可能な磁場の上限である概ね 100 T 以上が示唆される結果となった (図)。

そこでより早い歳差運動である場合に適用可能な時間積分型摂動角相関実験を試みようとしたが、京都大学の原子炉が法規制対応のための運転停止となり、研究最終年度まで利用ができなかった。最終年度に原子炉が

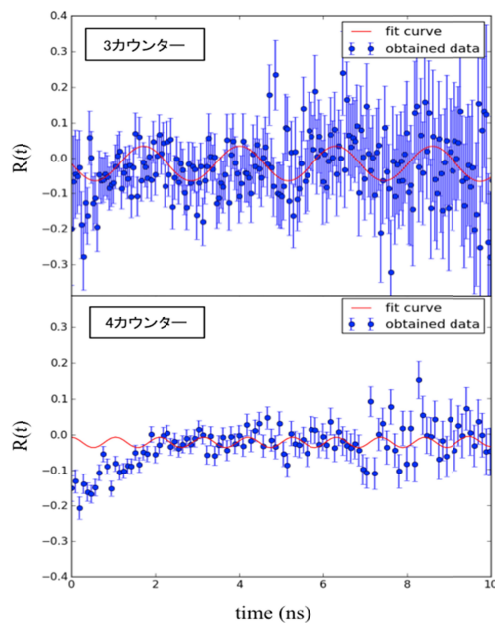


図. Fe 中  $^{147}\text{Pm}$  の TDPAC スペクトル。

再稼働した際にマシンタイムの割り当ても受けたが、その際に KUR-ISOL が故障、年度内のマシンタイム再割り当ても、その後の原子炉緊急停止に伴う点検対応で原子炉の研究利用の運転が中止されたため実施できなかった。

##### (2) Fe 中 $^{140}\text{Ce}$ ( $^{140}\text{Cs}$ ) の超微細相互作用

希土類元素の超微細場測定研究の一環として、超微細場測定の際の不純物原子核位置周辺の結晶構造の状態が与える影響を評価した。超微細場は不純物周囲の電子構造によって決まるため、格子欠陥の存在などで結晶の状態が変わると大きな影響を受けることが考えられる。そこで、ビームによるふあ定

格注入時に発生する格子欠陥の影響を評価するため、希土類元素の同位体である  $^{140}\text{Ce}$  の親核である  $^{140}\text{Cs}$  を単純な多結晶 Fe と He 照射をした Fe 中に注入、 $^{140}\text{Cs}$  のベータ崩壊で生成される  $^{140}\text{Ce}$  の 2083 keV 準位について摂動角相関による測定を行った。He 照射エネルギーは 4 keV で KUR-ISOL で 100 keV で注入した  $^{140}\text{Cs}$  の鉄中での注入深さと一致するようにした。測定にあたっては、He 照射で導入された He や格子欠陥の挙動の影響をしらべるため、単純に多結晶 Fe 中に  $^{140}\text{Cs}$  注入したものと、多結晶 Fe に He 照射を行った後に  $^{140}\text{Cs}$  を注入したものについて、それぞれ室温、200、400、500、800 で測定を行なった。室温においては、いずれもよく定義された単一の超微細場のもとで歳差運動する  $^{140}\text{Ce}$  のパターンが観測され、その摂動角相関の非対称度の時間変化の振幅の大きさから注入された  $^{140}\text{Ce}$  の約 40% がよく定義された結晶位置で静的な超微細場との相互作用を行っていると考えられた。また、単純に注入した Ce は 400 以上ではよく定義された超微細場を感じて摂動角相関の非対称度が著しく小さくなるか消滅する一方、He 照射後の試料中では 600 から非対称度が小さくなっていくことがわかった。

このことは、Cs や He の注入時に発生した格子欠陥は一定温度以上で移動しやすくなり、不純物と結合してしまうが、He をあらかじめ導入するとその He が注入時に生成される格子欠陥と結びつき、He のない場合に比べてより高い温度にならないと不純物の近くにまで到達しないことを意味すると考えられる。

### (3) 摂動角相関測定システムの改良

$^{147}\text{Pm}$  の摂動角相関実験により時間積分型摂動角相関の測定の必要性が出てきた。また  $^{147}\text{Pm}$  を含むランタノイド領域の原子核の励起準位は比較的複雑で、エネルギー分解能の高い摂動角相関測定システムが必要となる。

そこで、研究開始時点になって改良が著しく進んで利用可能になった CdZnTe 検出器を利用し、原子炉運転再開時に研究が再開できるよう積分型摂動角相関測定装置の整備を進めた。Kromek 社の CdZnTe 検出器 GR-1A は常温下で USB 電源で利用可能なコンパクトな CdZnTe 検出器であり、エネルギー分解能も常温下で 2.5% @662 keV と良い。

この検出器と時間分解能が極めて良い  $\text{BaF}_2$  検出器と組み合わせた摂動角相関測定装置を整備した。特に GR-1A からのタイミング信号の出力回路の仕様により、検出器～回路系間のトリガ信号伝送が不安定になる現象が見られたことから、伝送特性改善のためのデジタル回路を設計製作することで解決し、安定した測定ができることを確認した。

### 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)

[雑誌論文](計1件)

1. Y. Ohkubo, A. Taniguchi, Q. Xu, M. Tanigaki, and K. Sato  
TDPAC Studies of Interaction between He and A = 140 Elements in Fe  
Hyperfine Interact.(査読あり)230 (2015) 187-193.

[学会発表](計2件)

1. Y. Ohkubo, A. Taniguchi, Q. Xu, M. Tanigaki, and K. Sato  
TDPAC Studies of Interaction between He and A = 140 Elements in Fe  
JOINT INTERNATIONAL CONFERENCE ON Hyperfine Interactions AND SYMPOSIUM ON Nuclear Quadrupole Interactions 2014.September 25, 2014, Canberra, Australia
2. M. Tsuneyama, M. Tanigaki, A. Taniguchi, Q. Xu, Y. Ohkubo  
TDPAC measurement of hyperfine fields at Pm impurities in Fe  
JOINT INTERNATIONAL CONFERENCE ON Hyperfine Interactions AND SYMPOSIUM ON Nuclear Quadrupole Interactions 2014.September 25, 2014, Canberra, Australia

[図書](計0件)

[産業財産権]

出願状況(計0件)

なし

取得状況(計0件)

なし

[その他]

修士学位論文 1件

常山正幸「鉄中 Pm 不純物の超微細磁場」

### 6. 研究組織

(1)研究代表者

谷垣 実 (Minoru Tanigaki)

京都大学・原子炉実験所・助教

研究者番号：90314294

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

大久保嘉高 (Yoshitaka Ohkubo)

谷口秋洋 (Akihiro Taniguchi)

常山正幸 (Masayuki Tsuneyama)