

## 磁気コンプトン散乱を用いた物性研究

### KEK・AR, SPring-8, New SUBARU における実験 と LCS ガンマ線源への期待

兵庫県立大学大学院 理学研究科

小泉 昭久

はじめに、コンプトン散乱についての簡単な説明を行いたい。コンプトン散乱の一般的な説明では、静止した電子と光子 (X 線) の散乱として取り扱われ、散乱前後におけるエネルギー保存と運動量保存の式から、散乱 X 線の波長 (エネルギー) と散乱角の関係式を求めることができる。この場合、散乱後の X 線は、入射 X 線に比べて、波長が長くなって (エネルギーが低くなって) 観測されるが、そのエネルギーは一定になっている。これは、光電効果と同様に、光子の粒子性を説明するためのもので、そのような測定を行ったとしても物理的な情報として得られるものは少ない。現実の物質中では、電子は静止することなく運動しているので、散乱された X 線は、電子の運動によるドップラーシフトを受け、エネルギー幅のあるプロファイルとして観測される。実験的には、エネルギースペクトルとして測定されるが、エネルギーから運動量へ変換することにより、コンプトン・プロファイル:  $J(p_z)$  が得られる。これを式で表すと

$$J(p_z) = \iint |\varphi(\mathbf{p})|^2 dp_x dp_y \quad (1)$$

となる。ここで、 $\varphi(\mathbf{p})$  は運動量表示の波動関数で、その二乗は運動量密度分布を意味する。また、 $p_z$  は散乱ベクトル方向の運動量成分である。(1)式から分かるように、コンプトン・プロファイルは運動量密度分布の二重積分であるので、これを解くため、複数の結晶方位での測定 と 運動量密度分布の再構成解析 を行えば、物質の電子状態やフェルミ面構造を調べることが可能である。

上記の説明は電子の電荷による散乱であり、その測定では、試料中の全ての電子によるコンプトン・プロファイルが観測される。一方で、試料が強磁性体の場合には、入射光として円偏光 X 線を用いることにより、スピン磁化によるコンプトン散乱を観測できる。これが磁気コンプトン散乱で、電荷による散乱も含めた散乱断面積は、

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = C_{charge} J(p_z) + C_{mag} P_c \vec{s} \cdot (\vec{k} \cos \theta + \vec{k}') J_{mag}(p_z) \quad (2)$$

式(2)のように表される。ここで、 $C_{charge}$ 、 $C_{mag}$  は、電荷散乱と磁気散乱の係数、 $P_c$  は円偏光度、 $\vec{s}$  は スピン・ベクトル、 $\vec{k}$ 、 $\vec{k}'$  は入射・散乱 X 線の波数ベクトル、 $\theta$  は散乱角である。また、 $J_{mag}(p_z)$  は、磁気コンプトン・プロファイルを意味している。測定で得られる磁気コンプトン・プロファイル (MCP) は、試料の磁化を担う電子のみのプロファイルであるが、その積分値はスピン磁気モーメントに比例しており、軌道磁気モーメントは観測しない。各電子のコンプトン・プロファイルは、その電子が占有している軌道によってプロファイル幅が異なっており、また、単結晶試料で測定を行えば、波動関数の対称性を反映した構造を示すという特徴をもっている。上記のように MCP は磁性電子のみのプロファイルであるから、その特徴が鮮明に表れやすく、軌道別のスピン磁化や軌道占有状態の研究に用いられてきた。

実際の磁気コンプトン散乱実験においては、円偏光の向きか、あるいは、試料の磁化方向か、

いずれかを反転させて測定する必要がある。一般には、円偏光の反転は容易ではないため、外部磁場により、試料の磁化を反転させて測定を行っている。固定された円偏光の向きに対して、試料磁化の向きが平行と反平行のときの散乱強度を測定し、それらの差を取ることで磁気散乱強度が得られる。(和を取ると、磁気散乱成分は打消され、電荷による散乱強度が得られる。)

歴史的に、磁気コンプトン散乱実験が初めて報告されたのは、1976年の N. Sakai & K. Ôno による研究に遡る。<sup>1)</sup> この実験では、<sup>57</sup>Co 線源を極低温に冷やすことによって得られる円偏光ガンマ線を利用し、Fe の MCP を測定している。運動量の分割点数も粗く、散乱強度も弱い測定データであったが、磁気コンプトン散乱を初めて観測した研究例として意義深いものと言える。

その後、放射光 X 線が利用できるようになると、物性研究への適用が現実的なものになった。

以下では、放射光を利用した磁気コンプトン散乱実験の研究例を、いくつか紹介したい。図1に、高エ研・ARにおいて測定された SmCo<sub>5</sub> の MCP を示す。<sup>2)</sup> SmCo<sub>5</sub> は、実用磁石材料として強い磁力と高い保持力を持っており、通常の電磁石では磁化を反転させることが難しいため、パルス・マグネットを用いて磁化反転を行い、その残留磁化において測定を行った。実験的に得られている Co 単体の MCP とハートリー・フォック計算による Sm 4f のプロファイルを用いてフィッティング解析を行い、それぞれのスピン磁気モーメントを求めている。Co のプロファイルが正、Sm-4f のプロファイルが負に現れていることより、両者のスピン磁気モーメントが逆向きであることが分かる。

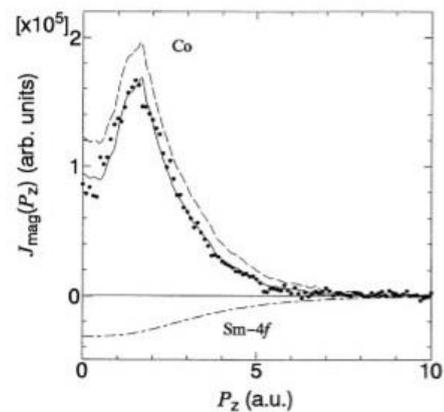


図1 高エ研・AR で測定された SmCo<sub>5</sub> の MCP

次に、SPring-8 BL08W において行った層状 Mn 酸化物の軌道占有状態についての測定・解析結果を紹介する。層状 Mn 酸化物は、金属・絶縁体転移を示し、金属相では二重交換相互作用により強磁性になる。この強磁性金属相において巨大磁気抵抗効果を起こすのであるが、その起源を探るため Mn の 3d 軌道の占有状態を調べた。<sup>3)</sup>

図2は La<sub>2-2x</sub>Sr<sub>1+2x</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (x=0.35) 単結晶の [001] 軸方向で測定された MCP である。図中の右側に示されているのは、3d 軌道 (*t<sub>2g</sub>*, *e<sub>g</sub>*) の水素用波動関数から計算したプロファイルを用いてフィッティング解析を行ったものであるが、物理的に不適な結果となっている。一方、左側の図は、MnO<sub>6</sub> クラスタに対する分子軌道計算から導出したプロファイルを用いて解析した結果で、実験の MCP を良く再現しており、MCP は Mn-3d 軌道と O-2p 軌道の混成を反映していることを示している。この解析結果から、2つ *e<sub>g</sub>* 軌道: *x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup>* と *3z<sup>2</sup>-r<sup>2</sup>* が、どのような軌道占有状態になっているかを、定量的に決めることができた。

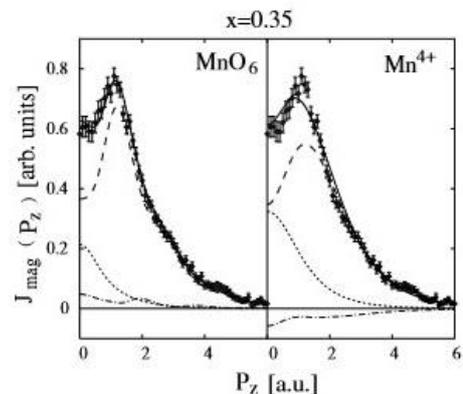


図2 SPring-8 BL08W で測定された 層状 Mn 酸化物の MCP

もう一つ、SPring-8 BL08W で行ったスピン磁気ヒステリシス測定について紹介する。上述のように、MCP はスピン磁気モーメントのみを反映し、軌道磁気モーメントは観測しないという特徴をもっており、これを用いて、MCP の積分強度の磁場依存性測定を行った結果を図3に示す。<sup>4)</sup> 試料は  $\text{SmAl}_2$  単結晶で、希土類化合物では珍しく強磁性を示す。磁化は Sm が担っているが、スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの向きが反対で打ち消しあっているため、図中の実線で示されているように、試料の磁化自体は小さい。各磁場で測定された MCP の積分値をプロットしたものが図中の黒丸で示されたデータであるが、試料磁化のヒステリシス・ループと比べると、上下が反転しているように見えるであろう。これは、軌道による磁化の方がスピン磁化より大きく、試料の磁化に対して、スピン磁化が逆向きになっていることを反映している。また、白丸で示されたデータは、試料の磁化とスピン磁化の差を取り、軌道磁化を求めたものである。

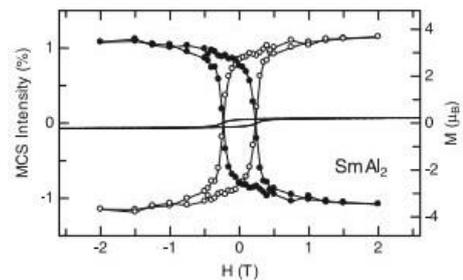


図3 SPring-8 BL08W で測定された  $\text{SmAl}_2$  のスピン磁気ヒステリシス

上記の研究例では、いずれも試料の磁化を反転させて磁気コンプトン散乱の測定を行っているが、NewSUBARU BL01 においては、レーザーコンプトン散乱により発生された高エネルギー円偏光  $\gamma$  線 (LCS- $\gamma$ ) を利用した実験が行われている。<sup>5)</sup> ご存じのように、電子とレーザー光のコンプトン散乱において、レーザー光の偏光が保存されるため、左右の円偏光を切り替えることにより、発生する LCS- $\gamma$  線の円偏光を高速にスイッチすることが可能になる。一般に、超伝導マグネットの磁場反転には長時間が必要であるが、LCS- $\gamma$  線源の導入により、試料に印加する磁場を反転する必要がなくなり、より高磁場を発生できる超伝導マグネットを利用することが現実的になる。また、理論的には、磁気コンプトン散乱測定における入射光のエネルギーが高くなれば、電荷散乱に対する磁気散乱の比率が高まるものと予想されており、この点においても LCS- $\gamma$  線源の有効性が伺える。高エネルギーの円偏光 LCS- $\gamma$  線を利用できれば、現在、開発中であるコンプトン散乱を用いたイメージング測定において、磁気イメージングの観測も可能になるであろう。ただし、現状では、計数率が低いため、測定には長時間を要し、また、十分な統計精度を得るのも難しい。上記のような物性研究に加え、新たな実験・研究を実施できるように、LCS- $\gamma$  線源の益々の発展を期待する。

#### 参考文献

- 1) N. Sakai, and K. Ôno, Phys. Rev. Lett. **37**, 351(1976).
- 2) A. Koizumi, N. Sakai, N. Shirai, and M. Ando, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 318(1997).
- 3) A. Koizumi, S. Miyaki, Y. Kakutani, H. Koizumi, N. Hiraoka, K. Makoshi, N. Sakai, K. Hirota, and Y. Murakami, Phys. Rev. Lett. **86**, 5589(2001).
- 4) M. Itou, A. Koizumi, and Y. Sakurai, Appl. Phys. Lett. **102**, 082403(2013).
- 5) 山口将志, 武元亮頼, 小泉昭久, 天野壮, 橋本智, 堀史説, 宮本修治, 第12回日本加速器学会(2015).  
山口将志, 武元亮頼, 杉田健人, 小泉昭久, 天野壮, 橋本智, 堀史説, 宮本修治, 第13回日本加速器学会(2016).