2. 吸収端近傍のX線を使って—(4) 磁気的な性質を調べるには—

放射光で磁気的性質を調べる

—白色X線磁気回折法による磁気モーメントの研究—

姫路工業大学理学部 伊藤正久

Masahisa ITO: White X-Ray Magnetic Diffraction and Its Application to Magnetic Form Factor Measurements.

This paper presents a white X-ray magnetic diffraction method, a new tool for studying microscopic magnetic moments in ferromagnetic materials which utilizes circularly polarized synchrotron radiation. First an overview is given on synchrotron radiation researches of magnetic materials, and then the white X-ray magnetic diffraction is introduced. Two examples of the application to ferromagnets are shown; one is the magnetic form factor measurement of Fe by Collins et al. who have developed the method, and the other is the measurement of form factors of the orbital and spin magnetic moments of uranium in UTe by the authors.

1. 緒言 —放射光を用いた磁性研究法の概略—

現在、世界各地の放射光施設で行なわれている、放射光X線を用いた磁性研究法は(筆者の認識では)、次の3つに大別される。(1) 吸収を利用するもの、(2) 非弾性散乱(コンプトン散乱)を利用するもの、(3) 弾性散乱(ブラッグ散乱)を利用するもの。本稿の主題はX線結晶学と最も関係の深い(3)であるが、それに入る前に(1)、(2)にも簡単にふれておこう。

(1) の吸収を利用する方法は、一般にX線磁気吸収と呼ばれ、円偏光を用い、強磁性体を対象とする実験である。外部磁場で磁化の向きを反転させ、反転前後の吸収係数の差を測定する。最初のX線磁気吸収実験はFeのK吸収端でSchütz等¹⁾によりなされた。吸収端からのエネルギーが数十eVの範囲では、磁気吸収スペクトルは電子が遷移する先の空準位の状態密度(スピンも含む)を反映している。これは一般にMCD(磁気円二色性)と呼ばれる。磁気光学総和則²⁾が適用できると軌道およびスピン磁気モーメントを個別に求めることができる。吸収端からのエネルギーが数十eVをこえると、磁性原子どうしの相関が大きくなり、磁性原子間の距離や磁気モーメントの向き等に関する情報が得られるようになる。これは磁気EXAFSと呼ばれる。

(2) の非弾性散乱も円偏光を用い強磁性体を対象とした実験である。磁化の反転に伴うコンプトンプロファイルの差(磁気コンプトンプロファイル)を測定する。最初

の磁気コンプトン散乱実験はSakai等^{3), 4)}により、低温で偏極した原子核から放射される円偏光ガンマ線を用いて行なわれた。円偏光放射光を用いた最初の実験はCooper等⁵⁾による。この実験から得られる情報は、ネットのスピン磁気モーメントに寄与する電子の運動量分布であり、また、そのプロファイルの積分値からスピン磁気モーメントが得られる(磁気コンプトン散乱はスピンのみを見る)。マクロスコピックな磁化の測定と組み合わせ、軌道磁気モーメント成分を特定するという試みもなされている。⁶⁾

(3) の弾性散乱は、さらに、共鳴効果を(a)利用するものと、(b)利用しないものに分けられる(非弾性散乱についても、共鳴効果を利用するものもあるが、ここでは割愛する)。(a)は共鳴磁気散乱と呼ばれ、(b)と比べ磁気散乱強度が大きく増大するのが特徴である。この増大効果を最初に発見したのがNamikawa等⁷⁾である。彼等は3d遷移金属のK吸収端でこの効果を見つけたが、希土類のL吸収端ではより大きな増大効果が観測され共鳴交換散乱^{8), 9)}と呼ばれている。共鳴磁気(交換)散乱の断面積は、電子が遷移する先の空準位の状態密度項と磁気モーメント項からなる。分光学的には、前者を反映した情報が得られるので、MCDと等価となる。回折学的には、散乱強度が微視的磁気モーメントを直接には反映しないものの、増大効果を利用して磁気モーメントの配列の周期を精密に決定する¹⁰⁾等に用いられる。

(b)は非共鳴磁気ブラッグ散乱と呼ばれ、さらに、(イ)

強磁性体を対象とするものと、(ロ) 反強磁性体を対象とするもの、に分けられる。両者には次のような違いがある。(イ) では、磁気モーメントの配列の周期と原子(電荷)の配列の周期が一致するため、逆格子空間で磁気散乱と電荷散乱のピークが常に重なる。(ロ) では、磁気モーメントの配列周期が電荷のそれよりも長いので、逆格子空間で磁気散乱と電荷散乱のピークが必ずしも重ならず、磁気散乱ピークを電荷散乱から独立に測定できる。歴史的には(ロ)の実験が先に行なわれ、X線管球を用いて3日間の測定でNiOの磁気散乱ピークが観測されたとされている。¹¹⁾ (イ) ではX線管球を用いた実験(粉末のマグネタイトとFe)¹²⁾ および、円偏光放射光(単色光)を用いた実験(粉末Znフェライト¹³⁾ Feの多結晶¹⁴⁾ および単結晶¹⁵⁾)が行なわれた。これらの放射光を用いた実験は、円偏光が非共鳴磁気ブラッグ散乱に極めて有効であることを示した。しかし、実験から直接得られる重要な物理量である磁気形状因子を、すでに高精度な実験がなされている中性子回折の結果と直接比較するには少々荒い(誤差の大きい)データであった。中性子回折、あるいは、理論計算と直接比較しうようなX線による磁気形状因子の測定は、白色X線磁気回折法により可能となった。本稿では、この新しい実験手法の概略を示し、2つの実験例(この手法を開発したCollins等のFe実験、および、筆者等が行なったUTe実験)を紹介する。

なお、本特集号のサブテーマ“吸収端近傍のX線を使って”に沿えば共鳴磁気散乱を取り上げるべきかもしれないが、次の3つの理由で本稿の主題を白色X線磁気回折(非共鳴磁気散乱)とする次第である。(1) 白色X線磁気回折法は共鳴磁気散乱よりも新しい実験手法である(そのためわざわざ、“非共鳴”と銘打たなければならない)。(2) 共鳴磁気散乱では微視的磁気モーメントの情報を直接には引き出せないが、非共鳴磁気散乱はそれができる。さらに、(3) 非共鳴磁気散乱は、磁気モーメントの構成要素である軌道およびスピン磁気モーメントを原理的に実験のみで分離できる、現在のところ唯一の実験方法である。

2. 白色X線磁気回折

2.1 概略

本稿の主題は、強磁性体を対象とした非共鳴型X線磁気ブラッグ散乱である。特に白色円偏光X線を用いる手法をここでは、白色X線磁気回折、と呼ぶ。これは、1990年代に入ってから英国Daresbury研究所のLaundy等¹⁶⁾やCollins等¹⁷⁾により開発され、放射光の偏光特性をフルに利用した新しい実験手法である。具体的には、強磁性体の磁化反転に伴う回折強度の変化を測定するもので、次の4項で特徴づけられる。(1) 白色X線(放射光)を用いる、(2) 円偏光を用いる、(3) 散乱角を90°に固定

する、(4) 強磁性体の単結晶を対象とする。

ここで、白色X線を使う理由にふれておく。磁場の反転により磁化が反転するとき、強磁性体試料が動くことがある。単色X線と単結晶試料との組み合わせでは、回折のブラッグ条件が変わり回折強度が変化する可能性がある。このようなときは、観測される回折強度の変化が磁氣的なものなのか、あるいは、ブラッグ角のズレによるものなのか区別がつかない。しかし、白色X線を使えば、ブラッグ角がわずかにズレても、回折にあずかるX線のエネルギーと回折方向がわずかに変化するだけで、回折強度の変化はほとんどない。放射光は白色光で、わずかなブラッグ角のズレによるエネルギーのズレ程度の範囲内では強度スペクトルは一定とみなすことができるからである。したがって、回折強度の磁気効果を抽出できる。

なぜ円偏光なのか、なぜ散乱角を90°に固定するのか、については、X線磁気散乱理論の紹介のなかでふれることにする。

2.2 X線磁気散乱理論

第3世代の放射光施設では、アンデューレーターやウイグラー等の挿入光源¹⁸⁾が一般的となりつつあるが、ここではまず、基本的な偏向磁石(ベンディングマグネット)で発生する放射光(ベンディング光)を対象とする。ベンディング光は、蓄積リングのビーム軌道面内では、水平直線偏光であるが、軌道面から斜め上方あるいは斜め下方に放射される光には円偏光が混じってくるようになる。白色X線磁気回折では、この水平直線偏光成分と円偏光成分が適度に混じった放射光を用いる。ベンディング光の偏光状態は2つのパラメーター(水平直線偏光度 P_1 と円偏光度 P_2)で表される。

X線磁気散乱理論^{19), 20)}によると散乱断面積は次のように表される。

$$d\sigma/d\Omega = r_e^2 \left| n(\mathbf{k}) \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}' - i\gamma [\mathbf{L}(\mathbf{k}) \cdot \mathbf{A} + 2\mathbf{S}(\mathbf{k}) \cdot \mathbf{B}] / 2 \right|^2 \quad (1)$$

ここで、記号の意味は次の通りである。 i は虚数単位、 $r_e (= e^2/mc^2)$ は電子の古典半径、 $\gamma = \hbar \omega / mc^2$ ($\hbar \omega$ は入射X線のエネルギー、 mc^2 は電子の静止質量エネルギー=511keV)、 $\boldsymbol{\varepsilon}$ および $\boldsymbol{\varepsilon}'$ は入射および散乱X線の電場ベクトル方向の単位ベクトル、 $n(\mathbf{k})$ は電荷密度のフーリエ変換(電荷散乱因子)、 $\mathbf{L}(\mathbf{k})$ および $\mathbf{S}(\mathbf{k})$ はそれぞれ軌道およびスピン磁気モーメント密度のフーリエ変換、 $\mathbf{k} = \mathbf{k}_0 - \mathbf{k}'$ ($\mathbf{k}_0$ および $\mathbf{k}'$ は入射および散乱X線の波数ベクトル)である。 $\mathbf{A}$ 、 $\mathbf{B}$ は $\boldsymbol{\varepsilon}$ 、 $\boldsymbol{\varepsilon}'$ 、 $\mathbf{k}_0$ 、 $\mathbf{k}'$ からなるベクトルで詳しくは文献¹⁹⁾を参照されたい。ここでベクトル量 $\mathbf{L}(\mathbf{k})$ 、 $\mathbf{S}(\mathbf{k})$ は、量子化軸方向の単位ベクトルを ρ として、 $\mathbf{L}(\mathbf{k}) = L(\mathbf{k}) \rho$ 、 $\mathbf{S}(\mathbf{k}) = S(\mathbf{k}) \rho$ 、と表され、スカラー量 $L(\mathbf{k})$ 、 $S(\mathbf{k})$ がそれぞれのモーメントの磁気形状因子となる。なお、逆格子空間の原点での値 $L(0)$ 、 $S(0)$

は、全角運動量子数 J およびランデの g 因子と、 $L(0) = (2 - g) \mu_B J$, $S(0) = (g - 1) \mu_B J$ の関係にある (μ_B はボーア磁子)。観測される全磁気モーメント $g\mu_B J$ のうち、 $L(0)$, $2S(0)$ がそれぞれ軌道分、スピン分を表す。

(1) 式の (1) 中の第1項が通常の電荷散乱 (トムソン散乱) 振幅, 第2項が磁気散乱振幅を表す。(1) 式は,

$$| \text{電荷散乱} |^2 + i(\text{電荷散乱})(\text{磁気散乱}) + | \text{磁気散乱} |^2 \quad (2)$$

という形をしている。第1項が電荷散乱項, 第2項が電荷散乱と磁気散乱の干渉項, 第3項が純磁気散乱項である。電荷散乱項に対する干渉項, 純磁気散乱項の大きさは、それぞれおよそ、 10^{-3} , 10^{-6} のオーダーである。入射 X 線が直線偏光であると、干渉項は虚数のままで観測にかからず、 10^{-6} オーダーの純磁気散乱項しか得られないが、入射 X 線に円偏光成分が入ると干渉項に実数部分が生じ、これは観測可能となる。円偏光を用いる理由はこの 10^{-3} オーダーの干渉項を利用するためである。干渉項は磁化の反転により符号が変わるので、反転前後の回折強度の差より、磁気散乱項を特定できる。

ここで、磁化が散乱面内にあるとし、磁化方向と入射 X 線方向のなす角を α とする (図1)。磁化の向きが土のときの回折強度を $I_{\pm}$ としてフリップ比 (flipping ratio) を、 $R = (I_{+} - I_{-}) / (I_{+} + I_{-})$ と定義すると R は、ブラッグ角を θ , $k = |\mathbf{K}|$ とし、純磁気散乱項を無視して、

$$R = [2\gamma_P (1 - \cos 2\theta)] / [n(k) \{1 + \cos^2 2\theta - P_1 \sin^2 2\theta\}] \times \{L(k) \cos^2 \theta \{\cos \alpha + \cos (2\theta - \alpha)\} + S(k) \{\cos \alpha \cos 2\theta + \cos (2\theta - \alpha)\}\} \quad (3)$$

図1 白色 X 線磁気回折法における試料の回折格子面, 磁化 μ , 入射 X 線, および回折 X 線の関係。(Experimental configuration of a specimen crystal with magnetization μ , and the incident and diffracted X-rays.) α は入射 X 線方向と磁化方向の間の角度, また、 $\hbar\omega$, および、 P_1 と P_c は、それぞれ、入射 X 線のなかで回折にあずかる X 線のエネルギー、および、そのエネルギーの X 線の水平直線偏光度と円偏光度である。

と表される。ここで、測定は R を最大にする条件で行いたい。このため (3) 式分母の電荷散乱項 ($= n(k) \{1 - (1 + P_1) (\sin^2 2\theta) / 2\}$) を最小にしたい。そのためには、 $(1 + P_1) \geq 0$ なので、散乱角 $2\theta = 90^\circ$ とすればよい。散乱角を 90° に固定する理由はここにある。このときは、

$$R = \gamma f_P \{L(k) (\cos \alpha + \sin \alpha) + 2S(k) \sin \alpha\} / n(k) \quad (4)$$

と表される。ここで、 $f_P = P_c / (1 - P_1)$ は偏光因子 (polarization factor) と呼ばれ、白色 X 線磁気回折では重要な因子である。

(4) 式より、実測値 R から、 $L(k)$ と $S(k)$ を含んだ磁気形状因子を求めることができる。さらに、 $L(k)$ と $S(k)$ に掛かる係数の角度 α の依存性が互いに異なっていることから、2つの異なる角度 α で R を測定することにより、 $L(k)$ と $S(k)$ を分離することができる。これが、X 線磁気回折の最大の特徴である。中性子磁気回折では常に全磁気形状因子 $\mu(k) = L(k) + 2S(k)$ が観測され、原理的に $L(k)$ と $S(k)$ の分離はできない。

なお、Fe などのように、軌道磁気モーメントが凍結されている場合 ($L(k) \approx 0$) は、磁気形状因子 $\mu(k) \approx 2S(k)$ として、

$$R = \gamma f_P \{\mu(k) / n(k)\} \sin \alpha \quad (5)$$

と簡単な式で表される。

2.3 偏光因子 f_P と電子ビームの垂直角度発散 σ_y

(4) 式を用いて実測される R から磁気形状因子を求めるときに、あらかじめ知っておかなければならない最も重要な因子は f_P である。 f_P は P_1 と P_c からなり、偏向磁石の各種のパラメーター (磁場の強さ等) が決まれば、蓄積リング軌道面上下の各位置で P_1 と P_c の値は決まる。例えば、計算プログラム SPECTRA²¹⁾ を使えば、任意の位置、任意のエネルギーでの P_1 と P_c を計算することができる。SPECTRA で用いられている無限遠近似のもとでは、 P_1 と P_c を決める最大の要因は蓄積リングの電子ビームの垂直角度発散 σ_y である。

図2に、KEK-PF-BL3C でいくつかの σ_y の値に対して計算された、軌道面上下での f_P のプロファイルを示す。図2の横軸は軌道面を基準にして観測点から光源への見込み角 ψ にとってある。図2から次のことがいえる。(1) $\sigma_y = 0$ (エミッタンスがゼロの理想的なリング) の場合、 f_P は軌道面位置で発散する。しかし実際の蓄積リングは必ず有限のエミッタンス (従って有限の σ_y) を持ち、軌道面位置で $f_P = 0$ となり発散しない。(2) f_P は特定の ψ_m でピーク値 f_{Pm} を持つ。(3) ψ_m と f_{Pm} は σ_y に依存し、 σ_y が小さいほど ψ_m は小さく、 f_{Pm} は大きくなる。(3) から、

X線磁気回折実験は f_p が最大となる $\psi = \psi_m$ で行うのが最も効果的であること、さらに、低エミッタンスのリングほど f_{pm} が大きくなり、X線磁気回折に有利であるこ

図2 PF-BL3Cにおける偏光因子 $f_p (= P_c / (1 - P_l))$ のプロファイル。(Profile of the polarization factor f_p as a function of viewing angle ψ .) 電子ビームの垂直角度発散 $\sigma_y = 0 \sim 18 \mu\text{rad}$ で計算されたプロファイルが示されている。

図3 PF-BL3Cにおける、実測(○)および計算(—)の垂直偏光X線強度プロファイル D_v .²³⁾ (Observed (○) and calculated (—) vertical photon flux density D_v .) 計算プロファイルは5つの σ_y の値(12.0～14.0 μrad)で計算されたものをしてある。 $\sigma_y = 13.0 \mu\text{rad}$ の計算プロファイルが実測プロファイルを最もよく再現している。

とがわかる。すなわち、偏光因子 f_p はX線磁気回折における増大(エンハンス)因子といえる。

正確な f_{pm} , ψ_m を知るには正確な σ_y を知らなければならない。しかし、 σ_y は偏向磁石設置の際のわずかな不整合等の予期せざる要因により生じ、まえもって正確に知るのはきわめて難しい。Laundy等は粉末回折法により、主にベンディング光の水平偏光X線強度 D_h の、軌道面上下でのプロファイルを実測し、それを計算プロファイルと比較してSRSリング(BL7.6)の σ_y を求めた($\sigma_y = 44 \mu\text{rad}$, $\psi_m \approx 50 \mu\text{rad}$, $f_{pm} \approx 4$).²²⁾ しかし、 D_h プロファイルは σ_y にあまり敏感でない。筆者等はより σ_y に敏感な垂直偏光X線強度プロファイル D_v を、単結晶の90度散乱法により測定し、計算プロファイルと比較してPFリング(BL3C)の σ_y を求めた($\sigma_y = 13 \mu\text{rad}$, $\psi_m \approx 15 \mu\text{rad}$, $f_{pm} \approx 10$).²³⁾ 図3に、PF-BL3Cにおける D_v の実測および計算のプロファイルを示す。 $\sigma_y = 13 \mu\text{rad}$ の計算プロファイルが実測プロファイルを最もよく再現している。このように実験から正確な σ_y を知ることができたので、正確な f_p を得ることが可能となった。

3. 白色X線磁気回折法による磁気形状因子の測定

ここでは、白色X線磁気回折法による磁気形状因子の測定例を2つ紹介する。1つはこの実験手法を開発したCollins等によるFeの実験、2つ目は筆者等がKEK-PF-BL3Cで行なったアクチナイド化合物 UTe の実験である。

図4 Collins等により測定されたFeの磁気形状因子(I), および、中性子回折(■)とLCAO法によるバンド理論計算(▲)との比較(文献17) Fig.4より転載). (Magnetic form factor of Fe by Collins et al. (I) compared with the results of neutron diffraction experiment (■) and band calculation (▲) (from Fig.4 in reference 17)).)

白色X線磁気回折法を考案したLaundy, CollinsおよびRollasonは、最初にこれをFeの単結晶へ適用した。^{16), 17)} (110), (100), (211)の回折面でフリップ比 R を測定し、(4)式より磁気形状因子比 $\mu(k)/n(k)$ を得た。結果を図4に示す。図4には、Collins等の実験値¹⁷⁾とともに、偏極中性子回折実験²⁴⁾およびLCAO法によるバンド理論計算²⁵⁾の結果も示されている。この実験結果から次のことがいえる。(1) 白色X線磁気回折の実験結果は中性子回折およびバンド理論計算の結果をほぼ再現しており、この手法の有用性が示された。(2) 中性子回折に比べ、 $k(=\sin\theta/\lambda)$ の大きい領域まで($k=1.3\text{\AA}^{-1}$)測定できている。

最後に、アクチノイド化合物UTeへの適用例²⁶⁾を紹介する。白色X線磁気回折のアクチノイド化合物への適用としては初めてのものである。UTeはNaCl型結晶構造を持ち、104K以下で強磁性体となる。結晶磁気異方性が非常に強く、電磁石の発生する磁場程度では磁化は常に $\langle 111 \rangle$ 軸方向を向く。回折面を(100)にとつたので、入射X線方向と磁化方向のなす角 α は 10° になる。 $h00$ ($h=2, 4, 6, \dots$)の逆格子点での磁気形状因子が同時に測定される。このときのフリップ比 R は、

$$R = 1.158 \gamma_F \{L(k) + 0.3S(k)\} / \{n_U(k) + n_{Te}(k)\} \quad (6)$$

と表わされる。Teは非磁性と考えられるので、 R の測定からUの $L(k) + 0.3S(k)$ の磁気形状因子が求まる。 $n_U(k)$ と $n_{Te}(k)$ はそれぞれUとTeの原子(電荷)散乱因子である。

逆格子点 $h00$ ($h=4, 6, 8, 10$)で得られた $f_X(k) = L(k) + 0.3S(k)$ の磁気形状因子を図5に示す。200逆格子点は、回折X線エネルギーが 2.9keV と低く測定できなかった。図5には中性子回折²⁷⁾よりすでに得られている全磁気形状因子 $f_N(k) = L(k) + 2S(k)$ も一緒に示してある。 $f_X(k)$ と $f_N(k)$ の形状の違いは明らかに $S(k)$ の係数の違いによる。 $f_X(k)$ は $f_N(k)$ よりも強く $L(k)$ を反映している。このように、X線によりアクチノイド元素の、軌道磁気モーメントを強く反映した磁気形状因子を測定することに成功した。

次に、 $f_X(k)$ と $f_N(k)$ から $L(k)$ と $S(k)$ を分離することを試みる。 $h00$ ($h=4, 6, 8, 10$)の4点で、 $f_X(k)$ と $f_N(k)$ の値から、 $L(k) = \{2f_X(k) - 0.3f_N(k)\}/1.7$ 、および、 $S(k) = \{f_N(k) - f_X(k)\}/1.7$ より、 $L(k)$ と $S(k)$ を分離し

図5 白色X線磁気回折法で測定されたUTe化合物のUの磁気形状因子、 $L(k) + 0.3S(k)$ (○), および、中性子回折による全磁気形状因子,²⁷⁾ $L(k) + 2S(k)$ (---) との比較。²⁶⁾ (X-ray magnetic form factor of $L(k) + 0.3S(k)$ (○) measured by the white X-ray magnetic diffraction method in the present study, which is compared with the neutron magnetic form factor of $L(k) + 2S(k)$ ²⁷⁾ (---).²⁶⁾)

図6 X線磁気回折と中性子磁気回折²⁷⁾の結果を組み合わせ得られた、UTe中のUの軌道磁気モーメントの形状因子 $L(k)$ (○)とスピン磁気モーメントの形状因子 $S(k)$ (□).²⁶⁾ (Form factors of the orbital (○) and spin (□) magnetic moment of uranium in UTe derived by combining the results of X-ray and neutron²⁷⁾ magnetic diffraction experiments.²⁶⁾) ●および■は、それぞれ、磁気コンプトン散乱実験と磁化測定の組み合わせより得られたUTe中のUの軌道およびスピン磁気モーメントの値。²⁸⁾ 実線および点線は、それぞれ、 U^{3+} イオンで双極子近似のもとで計算された軌道およびスピン磁気モーメントの形状因子である。

た．その結果を図6に示す．図6の実線と点線は，双極子近似のもとに U^{3+} イオンで計算された $L_c(k)$ と $S_c(k)$ である．この計算では，磁気コンプトン散乱実験と磁化測定との組み合わせ²⁸⁾より得られた軌道磁気モーメント値 L_0 とスピン磁気モーメント値 S_0 を用い， $L_c(0) = L_0$ ， $S_c(0) = S_0$ としている．図6から，ここで得られた実測の $L(k)$ と $S(k)$ が，おおよそ理論の $L_c(k)$ と $S_c(k)$ を再現していることがわかる．子細にみると，実測の $L(k)$ ， $S(k)$ は $L_c(k)$ ， $S_c(k)$ よりも k に対する減衰が早い．これは，実空間で考えると，UTeの磁性に寄与しているUの5f電子が， U^{3+} イオンに比べより外側に広がっていることを示唆している．UTeが金属的であることを考え合わせると，この結果はUの5f電子の遍歴性と関連しているかもしれない．

4. おわりに

放射光の吸収，弾性・非弾性散乱を用いた磁性研究法を概観し，白色X線磁気回折（非共鳴X線磁気ブラッグ散乱）法の概略を紹介した．白色X線磁気回折法の2つの強磁性体（FeとUTe）への適用例を紹介し，この方法が軌道およびスピンモーメントの磁気形状因子の測定にきわめて有効であることを示した．

磁気回折といえば，中性子を抜きには語れない．中性子磁気回折は長い歴史を持ち，膨大なデータ蓄積があり，実験手法がほぼ確立しているのに比べ，X線磁気回折はやっと始まったばかりである．X線の磁気散乱断面積が中性子のそれに比べ非常に小さいことを考えると，これから磁気構造研究の中心は中性子であろう．X線は，軌道・スピン磁気モーメントの分離，共鳴効果の利用，微小結晶の磁気構造，あるいは高分解能の磁気構造研究等のX線が得意な領域で磁性研究に寄与していくものと思う．

最後に，SPRING-8等の第3世代放射光を用いたX線磁気回折を少々展望してみたい．第3世代放射光施設の中心は挿入光源，特に，アンデューレーターである．アンデューレーターは最も強力な放射光源である．しかしこれは，基本的に単色光源であり，本稿で紹介した白色法は使えない．すなわち単色法によるX線磁気回折にならざるを得ない．これを可能にするキーワードは次の2つであろう．(1) X線移相子，および，(2) 偏光解析．筆者もメンバーの一人であるSPRING-8の磁気散乱・吸収サブグループではこのような実験が可能となるよう準備をすすめている．

謝 辞

本稿のUTeの実験は次の皆様との共同研究のもとに行なわれたものです．次の共同研究者の皆様に感謝申し上げます．群馬大学工学部の伊藤文武教授および桜井浩博

士，高エネルギー物理学研究所の河田洋助教授および森文晴氏，理化学研究所の田中良和博士および大端通博士，日本原子力研究所の森浩一博士（現筑波医療看護大学），姫路工業大学理学部の小泉昭久博士，東北大学金属材料研究所（大洗）の落合明博士（現新潟大学）．また，貴重な御助言を戴きました次の皆様に御礼申し上げます．東京水産大学の塩谷亘弘教授，姫路工業大学理学部の坂井信彦教授，東北大学理学部の鈴木孝教授，高エネルギー物理学研究所の松下正教授および岩住俊明博士．本UTeの実験・研究は，文部省科学研究費補助金（05640427，07454086）の援助を戴き，また，KEK-PACのProposal No. 93-G294，および，95-G296のもとで行なわれました．

文 献

- 1) G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm and G. Materlik: *Phys. Rev. Lett.* **58** 737 (1987) .
- 2) P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli and X. Wang: *Phys. Rev. Lett.* **70** 694 (1993) .
- 3) N. Sakai and K. Ono: *Phys. Rev. Lett.* **37** 351 (1976) .
- 4) N. Sakai and K. Ono: *J. Phys. Soc. Jpn.* **42** 770 (1977) .
- 5) M. J. Cooper, D. Laundy, D. A. Cardwell, D. N. Timms, R. S. Holt and G. Clark: *Phys. Rev.* **B 34** 5984 (1986) .
- 6) E. Zukowski, S. P. Collins, M. J. Cooper, D. N. Timms, F. Itoh, H. Sakurai, H. Kawata, Y. Tanaka and A. Malinowski: *J. Phys.: Condens. Matter* **5** 4077 (1993) .
- 7) K. Namikawa, M. Ando, T. Nakajima and H. Kawata: *J. Phys. Soc. Jpn.* **54** 4099 (1985) .
- 8) D. Gibbs, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. McWhan, D. Mills and C. Vettier: *Phys. Rev. Lett.* **61** 1241 (1988) .
- 9) J. P. Hannon, G. T. Trammel, M. Blume and D. Gibbs: *Phys. Rev. Lett.* **61** 1245 (1988) .
- 10) D. Gibbs, D. E. Moncton, K. L. D'Amico, J. Bohr and B. H. Grier: *Phys. Rev. Lett.* **55** 234 (1985) .
- 11) F. de Bergevin and M. Brunel: *Phys. Lett.* **39A** 141 (1972) .
- 12) F. de Bergevin and M. Brunel: *Acta Crystallogr.* **A 37** 314 (1981) .
- 13) M. Brunel, G. Patrat, F. Bergevin, F. Rousseaux and M. Lemonnier: *Acta Crystallogr.* **A 39** 84 (1983) .
- 14) W. Kaiser, G. Schütz, R. Wienke, P. Fischer, W. Wilhelm and P. Kienle: *HASYLAB Jahresbericht* 525 (1989) .
- 15) Y. Sakurai, O. Tsuda, H. Namata, C. H. Kim, Y. Watanabe, S. Nanao, T. Iwazumi, H. Kawata, M. Ando, N. Sakai and N. Shiotani: *Jpn. J. Appl. Phys.* **31** L521 (1992) .
- 16) D. Laundy, S. P. Collins and A. J. Rollason: *J. Phys.: Condens. Matter* **3** 369 (1991) .
- 17) S. P. Collins, D. Laundy and A. J. Rollason: *Philos. Mag.* **B 65** 37 (1992) .
- 18) S. Yamamoto, H. Kawata, H. Kitamura and M. Ando: *Phys. Rev. Lett.* **62** 2672 (1989) .
- 19) M. Blume and D. Gibbs: *Phys. Rev.* **B 37** 1779 (1988) .
- 20) S. W. Lovesey: *J. Phys. C* **20** 5625 (1987) .
- 21) H. Kitamura: *Synchrotron Radiation Calculation Program for PC98 V.3.0* (1994) .
- 22) D. Laundy, S. Cummings and P. Pattison: *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res.* **A 302** 553 (1991) .

- 23) M. Ito, H. Kawata, Y. Tanaka, A. Koizumi, T. Ohata, T. Mori, N. Sakai, N. Shiotani, M. Matsumoto and S. Wakoh: to be published in *Photon Factory Act. Rep.* #13 (1996) .
- 24) C. G. Shull and Y. Yamada: *J. Phys. Soc. Jpn.* **17** Suppl. B-III (1962) 1.
- 25) R. A. Tawil and J. Callaway: *Phys. Rev.* **B 7** 4242 (1973) .
- 26) M. Ito, F. Itoh, Y. Tanaka, A. Koizumi, H. Sakurai, T. Ohata, K. Mori, A. Ochiai and H. Kawata: *J. Phys. Soc. Jpn.* **64** 2333 (1995) .
- 27) G. Busch, O. Vogt, A. Delapalme and G. H. Lander: *J. Phys.* **C 12** 1391 (1979) .
- 28) H. Sakurai, H. Hashimoto, A. Ochiai, T. Suzuki, M. Ito and F. Itoh: *J. Phys.: Condens. Matter* **7** L599 (1995) .

プロフィール

伊藤正久 Masahisa ITO

姫路工業大学理学部物質科学科, 〒678-12 兵庫県赤穂郡上郡町金出地 1479-1

e-mail: itom@sci.himeji-tech.ac.jp

最終学歴：東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻修士課程

専門分野：回折構造学

現在の研究テーマ：直線偏光および円偏光放射光を用いた磁性体の微視的磁気モーメントに関する研究

趣味：おいしいビールをのむためのテニス