

Li 薄膜中で動的偏極させた短寿命ベータ放射性核の NMR

(株) 原子力発電訓練センター (2004 年迄) 越智志郎

私は 1968 年の修士課程入学以来 1981 年まで阪大理杉本研に在籍し、後半の 7 年間頭記の実験に没頭し、その後研究生活から離れました。30 年史に該当する話だと思いますので、実験の思い出話を記します。

この実験は、核反応により半減期が 1~100 秒のベータ放射性核を生成し、極低温に冷却した Li 薄膜中に植え込み、伝導電子磁気共鳴を飽和させた Li のオーバーハウザー効果により、核スピンを外部磁場の向きに動的偏極させるものです。偏極核の非対称ベータ放射を監視しながら、rf の周波数を変化させて NMR 共鳴点を探します。電子磁気共鳴と核磁気共鳴の二重共鳴の実験です。オーバーハウザー効果により理論的には、10~50% もの偏極度が期待できるというのが魅力でした。当時の杉本研の南園助教授（マイクロ波回路など担当）と野尻助手（液体ヘリウムクライオスタットなど担当）と私の 3 人でスタートしました。

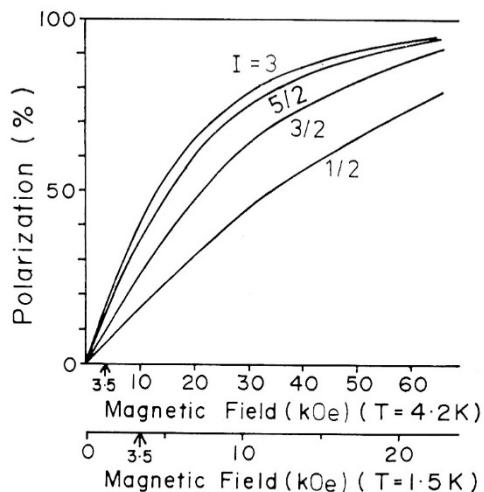
図 1. オーバーハウザー効果により、得られる核スピン I の核の偏極度（理論値）

1. オーバーハウザー効果

1953 年、オーバーハウザーは次のような動的偏極法を考案しました[1]。金属中の s 伝導電子の磁気共鳴を連続的に飽和させれば、電子スピンの偏極がほぼゼロになる一方、電子スピンは絶えず本来の偏極した熱平衡状態に向かって反転します。その際、s 伝導電子は 1/1000 位の確率で核との接触相互作用により、核スピンを反転させます。Li の場合、Li-6, Li-7 核および植え込まれた不純物核がそれぞれ外部磁場の向きに偏極します。図 1 にオーバーハウザー効果により、外部磁場 3.5kOe, Li 温度 4.2K または 1.5K の場合に得られる、核スピン $I=3, 5/2, 3/2, 1/2$ の核の偏極度（理論値）を示します。

2. オーバーハウザーシフト

Li-6, Li-7 核スピンが偏極すると、電子スピンが感じる実効的な磁場が変化し、電子磁気共鳴点がシフトします。これをオーバーハウザーシフト (H_n) と言います。語呂合わせで Day Shift とも言います。Knight Shift の裏返しの現象だからです。Knight Shift は、電子スピンの偏極により金属中で核磁気共鳴点がシフトする超微細相互作用の現象です。



Li の Knight Shift の測定値から H_n を計算すると外部磁場 $H_0=3.5\text{kOe}$ 、 $T=4.2\text{K}$ または 1.5K の条件で、 $H_n=8.4\text{Oe}$ または 22.2Oe となります。今回マイクロ波周波数 9.6GHz の条件で実測した電子磁気共鳴点のシフトの測定データを図 2(a)に示します。 H_n の向きは外部磁場の向きに一致するので、外部磁場を上昇(up sweep)させた時は直ぐに共鳴を外れるので共鳴幅が狭くなるのに対して、外部磁場を降下(down sweep)させた時は Li-6、Li-7 核スピンが偏極するにつれて H_n が大きくなって共鳴条件が保持されるので、磁場の低い側に延引した波形になっています。 $T=4.2\text{K}$ または 1.5K の条件で、マイクロ波出力を変えて測定した H_n を図 2(b)に示します。これにより Li-6、Li-7 核スピンの偏極までは成功したことを確認しました。次の課題は Li に植え込むベータ放射性核が本当に偏極するかどうかです。

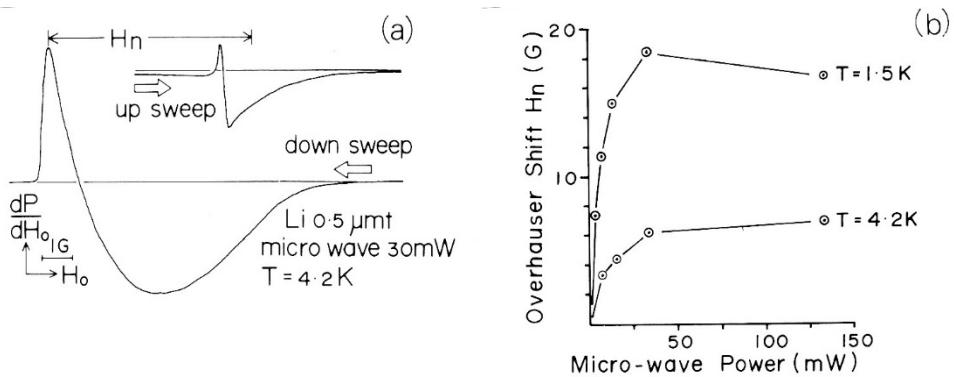


図 2 (a) 外部磁場 H_0 を up sweep (上昇) または down sweep (降下) させた時の電子磁気共鳴の波形。down sweep の場合にオーバーハウザーシフトが起きる。

(b) Li 温度 $T=4.2\text{K}$ または 1.5K で実測されたオーバーハウザーシフト (H_n) とマイクロ波出力の相関

3. 実験の経過

実験装置の主要部を図 3 に示します。真空チャンバーや磁極他は省略しています。

1) マイクロ波共鳴空洞の極低温への冷却

マイクロ波共鳴空洞は TE-101 モードで、空洞内マイクロ波磁場は Li 薄膜の位置で最大となります。NMR のため rf が空洞内部の Li 薄膜に達するよう空洞は二つに割り、互いに電気絶縁しています。

2) 空洞内壁へ真空蒸着により Li 薄膜生成 核反応標的の位置に Li を盛った Mo ヒーターとパラフィンを盛った Mo ヒーター

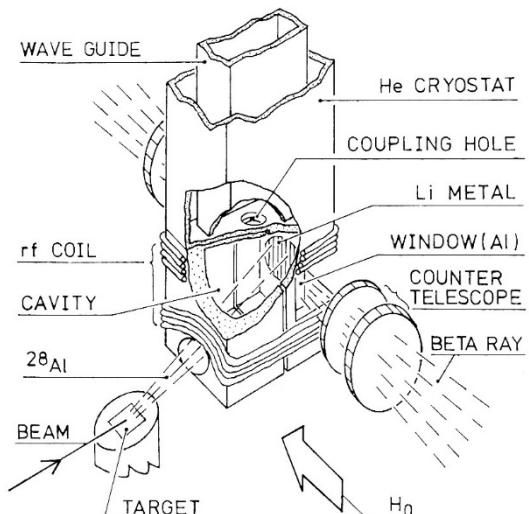


図 3. 実験装置の主要部

から成る真空蒸着装置を設定し、水晶振動子膜厚計で監視しながら、先ず Li を空洞内壁から電気絶縁するため 1500Å 厚さのパラフィンを蒸着し、その上に 2.0~2.8 μm 厚さの Li を蒸着します。さらに Li 純度保持の為 250Å 厚さのパラフィンを蒸着します。

3) 伝導電子磁気共鳴オーバーハウザーシフトの確認および共鳴条件の保持

図 2(a),(b) に 0.5 μm 厚さ Li のデータを示しましたが、2.0 μm 厚さでも同様です。外部磁場を down sweep して Li 核偏極度が最大となる外部磁場を安定に保持します。

4) Al-28 生成・Li へ植え込み・非対称ベータ放射測定

Al-28 は Al-27 標的に、阪大 5MV バンデグラフの 4.0MeV d ビームを照射して (d,p) 反応で生成し図 3 のように Li 薄膜へ植え込みました。図 4 に外部磁場を down sweep して Al-28 の非対称ベータ放射を測定した結果を示します。外部磁場の向きを反転して測定すると、偏極の向きも反転するのでベータ線非対称度の符号も逆転しました。

この結果、Al-28 が偏極することを確認できました。また、Al-28 のベータ崩壊の非対称係数 A の符号が負であることを実証できました。理論では A (Al-28(3+) → Si-28(2+)) = -1 です。

ベータ線測定系については文献[3]を参照方。

次は rf 周波数を変え Al-28NMR の測定です。

5) Al-28 の NMR

オーバーハウザーシフトの大きい、すなわち大きな動的偏極が起きる磁場で外部磁場の down sweep を停止し、その磁場を安定に保持します。rf の周波数を変えて非対称ベータ放射の変化を測定した結果を図 5 に示します。rf FM120kHz と 40kHz の場合を示しています。実線は Al-28 の電気四重極相互作用を考慮した NMR 解析曲線の最適評価曲線を示しています。未補正の Al-28 磁気モーメントが決まりましたが、種々の補正が必要になります。Knight shift の補正を行うため、Al-28 の Li 薄膜中の核スピン格子緩和時間 T1 を測定する必要があり、次項 6) で説明します。補正の詳細については、文献[3]を参照して下さい。最終的に決定した Al-28 核の磁気モーメントの大きさは、 $|\mu_{Al-28,3+}| = (3.242 \pm 0.005) \text{ nm}$ です。それ以前に報告された二つのデータ $((3.24 \pm 0.02) \text{ nm}[4], (2.789 \pm 0.001) \text{ nm}[5])$ の前者に近いものでした。

6) Al-28 の核スピン格子緩和時間の測定

Al-28 の核スピン格子緩和時間はその動的偏極生成時間に一致します。Li 温度 4.2K での Al-28 核スピンの動的偏極生成時間の測定結果を図 6 に示します。NMR 共鳴周波数または非共鳴周波数の rf を一定時間かけ、rf を停止した後の非対称ベータ放射の時間変化を測定し、両者を比較しました。実線は最適評価指数曲線であり、Al-28 の

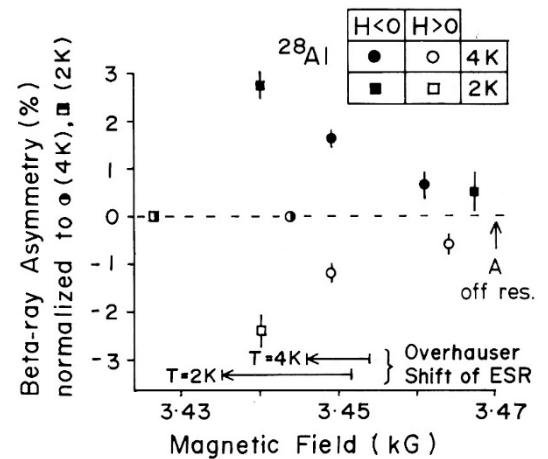


図 4. 外部磁場 H を down sweep した時、非対称ベータ放射を測定。

核スピン格子緩和時間 $T_1 = (1.36 \pm 0.26)\text{s}$ という結果が得られました。

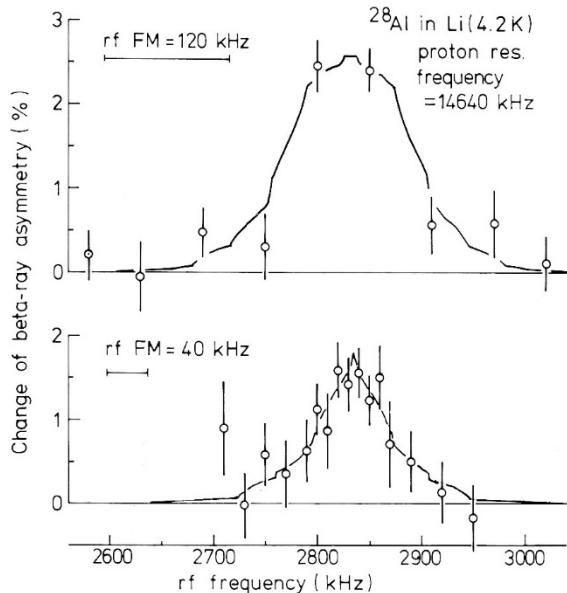


図 5. Al-28 の NMR スペクトラム

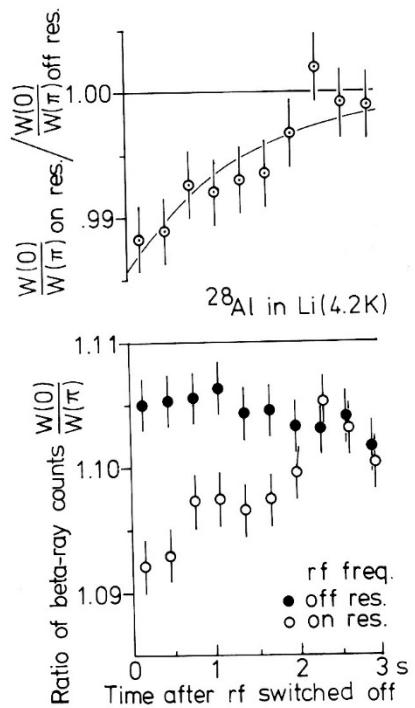


図 6. 動的偏極生成時間の測定結果

終わりに

何かの折杉本先生は言われました、「実験いうノンはやっと上手に出来るようになった時はもう終わりの時や」。この実験の後私は転進しましたが、何らかの形でこの仕事が発展すればなあと思っています。楽しく実験させていただいた杉本先生に感謝しご冥福をお祈り致します。ご指導頂いた当時の南園助教授、野尻助手に感謝致します。高橋技官、坂本技官に感謝致します。松多さんはじめ、杉本研歴代のたくさんの大学院生の方々に手伝って頂きました。感謝致します。湯川奨学金を 1 年間いただいたことに感謝致します。

文献

- [1] A.W.Overhauser, Phys.Rev.92(1953)411.
- [2] T.Minamisono,Y.Nojiri and S.Ochi, Phys.Lett.106B(1981)38;
S.Ochi,Y.Nojiri and T.Minamisono, Hyperfine Interactions 10(1981)1101;
Y.Nojiri,S.Ochi and T.Minamisono, Physica 107B+C(1981)615.
- [3] S.Ochi, K.Matsuta, Y.Nojiri and T.Minamisono, Nucl.Instr. & Meth.B14(1986)578.
- [4] H.J.Stockmann,H.Ackerman,D.Dubbers,F.Fujara,M.Grupp,P.Heitjans and
A.Korblein, Hyperfine Interactions 4(1978)170.
- [5] H.Lades, Z. Phys. 252(1972)242.