

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2014

課題番号：23600007

研究課題名(和文)物性プローブとしての偏極不安定核ビーム開発

研究課題名(英文)Development of spin-polarized unstable nuclear beams as materials science probes

研究代表者

三原 基嗣 (Mihara, Mototsugu)

大阪大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：60294154

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：物質中に埋め込まれた短寿命 線放射性核の核磁気共鳴を行う β -NMR法は、従来の手法に比べ格段に高いNMR検出感度を示すため、物質中にごく僅かしか存在しない不純物原子の微視的研究を可能にする。本研究では、リチウム、窒素、リン、銅などの短寿命同位体核の、核反応によるスピン偏極ビーム生成法を新たに開発し、 β -NMRプローブとしての利用を可能にした。さらに、開発したプローブ核を用いて物性研究を行った。

研究成果の概要(英文)：The beta-detected nuclear magnetic resonance (beta-NMR) technique, using implantation of short-lived beta-ray emitting nuclei into materials, exhibits extremely high sensitivity to the NMR detection and allows us to study the microscopic behavior of dilute impurity atoms in materials. In the present study, we have newly established the production of spin polarized nuclear beams of short-lived Li, N, P and Cu isotopes via nuclear reactions and have applied them as beta-NMR probes to the materials science studies.

研究分野：原子核物理学、物性物理学

キーワード：核物性 超微細相互作用 不安定核 核磁気共鳴

1. 研究開始当初の背景

半導体中のドーパントのように、物質中にごく僅かしか存在しない不純物原子の存在が母体の物性を決定付ける役割を果たす場合がある。放射線検出を利用するベータ線核磁気共鳴(β -NMR)法は、従来の NMR に比べ 10^8 - 10^{10} 倍と格段に高い検出感度を示すため、物質中の希薄不純物原子の個々の振る舞いを調べるのに適している。 β -NMR 法による物性研究により、不純物が重要な役割を担う物質における基礎物性の解明や、ひいては新規材料の開発につながる事が期待される。ここで、様々な元素種の β -NMR プロブ核を利用可能にすることが研究の発展の鍵となることから、プロブ核として用いられる、スピン偏極不安定核の生成法の確立を目指した開発研究を開始するに至った。

2. 研究の目的

β -NMR による物性研究を進めるにあたり、プロブ核として用いる短寿命の不安定核を、高いスピン偏極度を持ち、かつ高強度のビームとして供給することが非常に重要となる。ただし、すべての核種に有効な偏極不安定核生成法は今のところ存在しない。本研究では、いくつかの注目している同位元素プロブについて、高偏極不安定核生成のための最適な核反応条件を見つけ出し、物性研究に応用することを目的とする。また、あらゆる元素に適用可能な手法の候補である、強磁性体薄膜を用いた transient field 法による偏極不安定核ビーム生成を試みることも目的のひとつである。

3. 研究の方法

核子当たり数十~100 MeV の重イオンビームは、スピン偏極した不安定核ビームの生成に適している。主に放射線医学総合研究所のシンクロトン加速器 HIMAC から供給される重イオンビームを利用して実験を行った。図 1 に HIMAC の実験装置を示す。SB2 二次ビームラインで重イオン核反応により生成

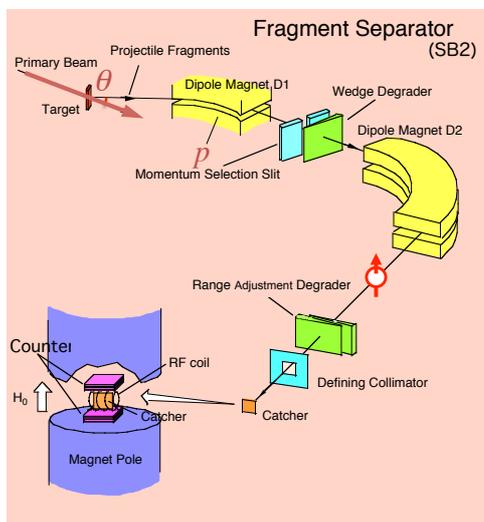


図 1 放医研 HIMAC 施設の SB2 二次ビームラインと β -NMR 装置.

した不安定核を分離し、 β -NMR 装置内に設置された試料に植え込んだ。 β 線検出による β 線角度分布の非対称度の観測を通してスピン偏極量を求めた。その他、理化学研究所リングサイクロトン加速器施設及び大阪大学バンデグラフ加速器施設でも実験を行った。

4. 研究成果

(1) 高偏極 ^{12}N ビーム生成

短寿命核 $^{12}\text{N}(I = 1^+, T_{1/2} = 11 \text{ ms})$ の高偏極ビーム生成を目的とした、重イオン核反応による生成テストを行った。核子当たり 70 MeV における ^{14}N 入射核破碎反応と、 ^{12}C 荷電交換反応の 2 種類の核反応を用いて ^{12}N を生成した結果、 ^{14}N 入射核破碎反応において約-25%、 ^{12}C 荷電交換反応では約+10%の偏極ビームが高い収量で得られることが示された。とりわけ後者においては、陽子ターゲットを用いることで破碎反応に比べ非常に高い生成断面積を示した。図 2 に $^{12}\text{C} + \text{CH}_2$ 荷電交換反応における ^{12}N スピン偏極および収量の角度依存性を示す。1°に選択することにより高偏極、高収量かつ狭い運動量幅をもつ偏極 ^{12}N ビームが得られることから、物性プロブとしての利用価値は非常に高く、かつ偏極機構の観

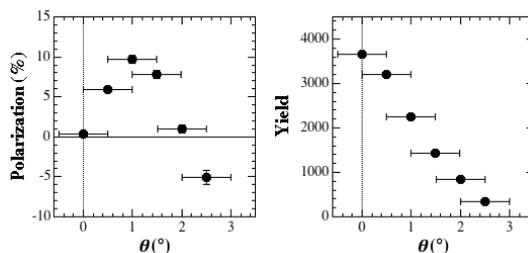


図 2 CH_2 標的による 70A MeV における ^{12}C 荷電交換反応により生成された ^{12}N の、スピン偏極および収量の角度依存性.

点からも大変興味深い結果となった。

(2) 偏極 $^{8,9}\text{Li}$ ビーム生成

リチウムイオン電池材料中におけるリチウムイオンの拡散現象についての研究を行うために、 $^8\text{Li}(I = 2^+, T_{1/2} = 0.85 \text{ s})$ および $^9\text{Li}(I = 3/2^-, T_{1/2} = 0.18 \text{ s})$ のスピン偏極ビーム開発を行った。偏極 $^{8,9}\text{Li}$ の生成条件の最適化を図るため、HIMAC で供給可能な $^{10,11}\text{B}$ および ^{12}C ビームからの生成テストを行った。70A MeV の $^{10,11}\text{B}$ および ^{12}C ビームで Be ターゲットを照射し、得られた $^8,9\text{Li}$ 核を二次ビームとして分離し、運動量と出射角度を変えながら ^8Li および ^9Li の偏極度を測定した。結果を図 3 に示す。 ^8Li に関しては、 ^{12}C ビームからの生成により約-7%の偏極が得られ、 ^{11}B ビームから生成した場合よりも大きいことが分かった。また、 ^{10}B ビームから生成した場合、 ^8Li は高運動量側では全く偏極しないという、偏極機構の観点からは非常に興味深い結果が得られた。 ^9Li については、核子ピックアップを伴う ^{10}B ビームからの生成反応により、運動量分布の中心で+10%以上の偏極が得ら

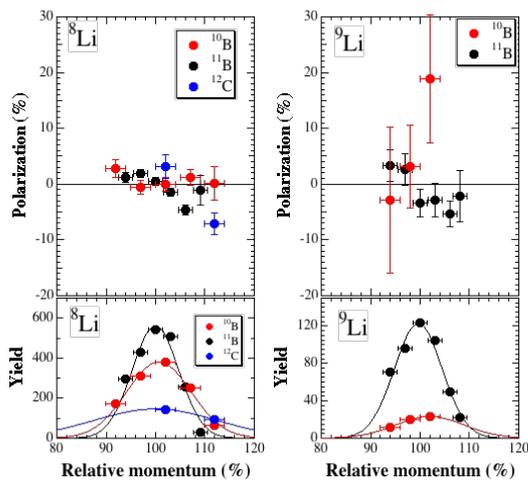


図3 Beターゲットへの70A MeV $^{10,11}\text{B}$, ^{12}C ビーム照射により生成された $^8,^9\text{Li}$ の、スピン偏極および収量の運動量依存性.

れる可能性が示された。

(3) ^{58}Cu の β -NMRとtransient field法による偏極生成テスト

^{58}Cu ($I = 1^+$, $T_{1/2} = 3.2$ s)の β -NMR測定によりシリコン中の銅不純物の拡散機構やゲッタリング機構について調べるための準備研究を行った。理化学研究所リングサイクロトロン施設において実験を行った結果、シリコン単結晶中に植え込んだ ^{58}Cu 位置に電場勾配の存在を示した(図4)。この結果はこれまでに知られている四面体位置(Tサイト)では説明出来ない。

このとき、 ^{58}Cu の生成に用いた荷電交換反応 ^{58}Ni (63 A MeV) + Be \rightarrow ^{58}Cu により得られた ^{58}Cu のスピン偏極量は約0.4%であった。物性研究を進めるにはより高いスピン偏極をもつ ^{58}Cu ビームの生成が重要な鍵となることから、transient field法による ^{58}Cu 核スピン偏極生成テストをHIMACで行った。強磁性体内の偏極電子スピンを利用し、超微細相互作用を通じて核スピン偏極へと移行させるために、磁化したFeやNi箔に ^{58}Cu ビームを通過させて偏極を測定した。しかし、残念ながら本研究期間内に有意な偏極は観測

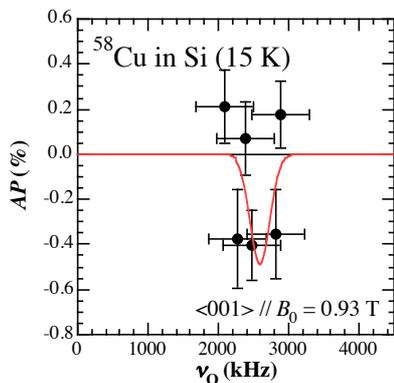


図4 シリコン中 ^{58}Cu の四重極分裂スペクトル.

するには至らなかった。

(4) ^{29}P の偏極生成

シリコン中のドナー不純物として知られるリン(P)の β -NMRプローブとしての利用が期待される。 ^{29}P ($I = 1/2^+$, $T_{1/2} = 4$ s)のスピン偏極生成実験を行った。大阪大学バンデグラフ加速器施設において、低エネルギー核反応 $^{28}\text{Si}(d, n)^{29}\text{P}$ により生成された ^{29}P の偏極度の、重陽子(d)ビームのエネルギー E_d と反跳角 θ に対する依存性を測定し、図5に示す結果が得られた。 $\theta = 30^\circ$ において、 $E_d = 3.8$ MeVでは偏極度3%が得られ、過去の結果を再現した。さらに $E_d = 2.6$ および3.3 MeVでは約4%と、より大きな偏極が観測された。収量を Y 、偏極を P とすると、 β -NMRの測定効率の指標となるfigure of merit ($= YP^2$)は3.3 MeVで最も大きくなった。

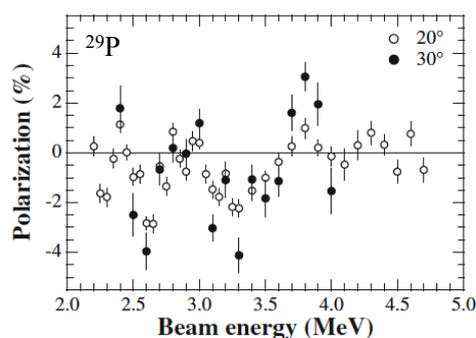


図5 $^{28}\text{Si}(d, n)^{29}\text{P}$ 反応により生成された ^{29}P のスピン偏極.

(5) 物性研究への応用

Li電池に使用するLiイオン伝導物質として注目されているLLZ ($\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$)中のLiの拡散機構を解明するため、この材料にバンデグラフで生成した偏極 ^8Li をインプラントし、スピン緩和時間を観測した。図6に示す緩和時間の温度依存性から、活性化エネルギーとして17 meVが得られた。

HIMACで開発に成功した偏極 ^{12}N ビームを用いて、液体の H_2O 中にインプラントした ^{12}N のNMRに成功した(図7)。 H_2O のよう

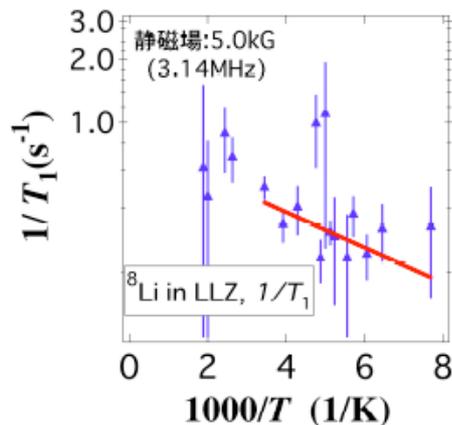


図6 LLZ ($\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$)中 ^8Li のスピン格子緩和率.

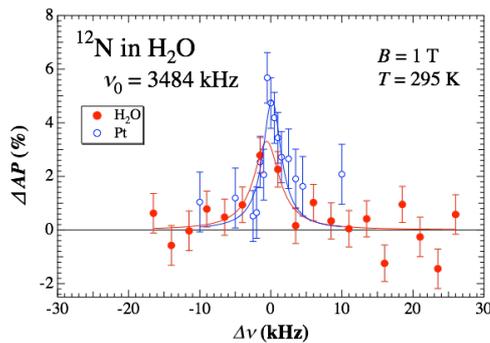


図7 H₂O中¹²Nのβ-NMRスペクトル

な通常液体中のβ-NMR検出としては世界初である。

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6件)

① M. Mihara, Y. Ishibashi, Y. Abe, Y. Kamisho, Y. Morita, J. Ohno, M. Tanaka, S. Shinozaki, R. Kanbe, M. Fukuda, K. Matsuta, A. Ozawa, D. Nagae, S. Inaba, S. Okada, Y. Saito, H. Ueno, K. Yamada, T. Izumikawa, T. Ohtsubo, S. Momota, D. Nishimura, T. Suzuki, T. Yamaguchi, Y. Kobayashi, K. Imamura, Xiaofei Yang, T. Nagatomo, T. Minamisono, M. Takechi, M. Ogura, K. Matsukawa, K. Shirai, and T. Fujimura, Production of Spin Polarized ⁵⁸Cu and its Magnetic Moment, *JPS Conf. Proc.*, 査読有, articles in press, (2015).

② M. Mihara, K. Matsuta, M. Fukuda, M. Yaguchi, M. Wakabayashi, Y. Morita, J. Ohno, S. Shinozaki, R. Kanbe, Y. N. Zheng, S. Y. Zhu, T. Minamisono, Development of the pulse NMR method utilizing the short-lived β-emitter ¹²B, *Hyperfine Interactions*, 査読有, **222** (2013) 121-125, DOI: 10.1007/s10751-012-0745-x.

③ M. Mihara, K. Matsuta, D. Nishimura, M. Fukuda, M. Yaguchi, K. Iwamoto, M. Wakabayashi, Y. Kamisho, J. Ohno, Y. Morita, T. Izumikawa, T. Ohtsubo, S. Suzuki, M. Nagashima, K. Abe, T. Sakai, S. Momota, A. Ozawa, D. Nagae, Y. Ishibashi, Y. Abe, T. Niwa, T. Nagatomo, T. Minamisono, M. K. Kubo, A. Kitagawa, M. Torikoshi, M. Kanazawa, S. Sato, Production of spin polarized ¹²N through heavy ion reactions, *Hyperfine Interactions*, 査読有, **220** (2013) 83-88, DOI: 10.1007/s10751-013-0869-7.

④ M. Yaguchi, M. Mihara, M. Fukuda, D. Nishimura, H. Uenishi, K. Iwamoto, M. Wakabayashi, J. Ohno, Y. Kamisho, Y. Morita, T. Minamisono, K. Matsuta, Spin polarization of ²⁹P produced through low energy nuclear reaction, *Hyperfine Interactions*, 査読有, **220** (2013) 79-82, DOI: 10.1007/s10751-013-0867-9.

⑤ S. Momota, M. Mihara, D. Nishimura, M. Fukuda, Y. Kamisho, M. Wakabayashi, K. Matsuta, S. Suzuki, M. Nagashima, Shengyun Zhu, Daqing Yuan, Yongnan Zheng, Zuo Yi, Ping Fan, T. Izumikawa, A. Kitagawa, S. Sato, M. Kanazawa, M. Torikoshi, T. Minamisono, Y. Nakamura, K. Tashiro, A. Honma, N. Yoshida, H. Shirai, T. Ohtsubo, T. Nagatomo, H. Uenishi, K. Iwamoto, M. Yaguchi, T. Ogura, T. Ito, K. Yamamura, Y. Ichikawa, Y. Nojiri, J. R. Alonso, T. J. M. Symons, Momentum dependence of spin polarization for beta emitting nuclei produced through charge exchange reaction at intermediate energy, *Hyperfine Interactions*, 査読有, **220** (2013) 53-58, DOI: 10.1007/s10751-012-0741-1.

⑥ K. Matsuta, T. Minamisono, M. Mihara, M. Fukuda, Shengyun Zhu, Y. Masuda, K. Hatanaka, Daqing Yuan, Yongnan Zheng, Yi Zuo, Ping Fang, Dongmei Zhou, T. Ohtsubo, T. Izumikawa, S. Momota, D. Nishimura, R. Matsumiya, A. Kitagawa, S. Sato, M. Kanazawa, M. Torikoshi, T. Nagatomo, Y. Nojiri, T. Suzuki, Xizhen Zhang, J. R. Alonso, T. J. M. Symons, S. Kawasaki, S. C. Jeong, Y. Watanabe, K. Minamisono, other members of Osaka-CIAE-NIRS-Niigata-Kochi-LBL collaboration, Nuclear moments as a probe of electronic structure in material, exotic nuclear structure and fundamental symmetry, *Hyperfine Interactions*, 査読有, **220** (2013) 21-28, DOI: 10.1007/s10751-013-0847-0.

[学会発表] (計9件)

① J. Shimaya, M. Mihara, M. Fukuda, T. Minamisono, J. Ohno, M. Tanaka, S. Yamaoka, Y. Tanaka, H. Du, R. Kanbe, K. Watanabe, R. Yanagihara, S. Iwakiri, Y. Ishibashi, K. Matsuta, A. Ozawa, D. Nagae, T. Ohtsubo, T. Izumikawa, S. Momota, T. Nagatomo, D. Nishimura, A. Kitagawa, M. Torikoshi, S. Sato, 短寿命放射性核¹²Nを用いたH₂O中におけるβ-NMR測定, 日本物理学会第69回年次大会, 21-24, Mar., 2015, 早稲田大学.

② J. Ohno, M. Mihara, Y. Kamisho, M. Fukuda, K. Matsuta, T. Minamisono, Y. Morita, M. Yaguchi, K. Iwamoto, M. Wakabayashi, R. Kanbe, M. Tanaka, S. Shinozaki, S. Yamaoka, K. Watanabe, S. Iwakiri, R. Yanagihara, D. Nishimura, T. Izumikawa, T. Ohtsubo, S. Suzuki, M. Nagashima, T. Sakai, K. Abe, Y. Nakamura, D. Murooka, A. Ozawa, D. Nagae, Y. Ishibashi, Y. Abe, T. Niwa, T. Nagatomo, A. Kitagawa, S. Sato, M. Torikoshi, S. Momota, M.K. Kubo, J. Sugiyama, H. Shirai, and N. Yoshida, Production of spin polarized Li isotope beam through heavy ion reactions, Fourth Joint Meeting of the Nuclear Physics Divisions of the American Physical Society and The Physical Society of Japan (HAWAII 2014), 7-11, Oct., 2014, Hilton Waikoloa Village, Hawaii Island, USA.

③ M. Mihara, Y. Kamisho, J. Ohno, M. Tanaka, S. Shinozaki, S. Yamaoka, Y. Morita, R. Kambe, K. Watanabe, T. Minamisono, M. Fukuda, K. Matsuta, Spin-spin relaxation of short-lived β -emitter ^{12}B in Si, The 5th Joint International Conference on Hyperfine Interactions and Symposium on Nuclear Quadrupole Interactions (HFI/NQI 2014), 21-26, Sep., 2014, Canberra, Australia.

④ S. Yamaoka, M. Mihara, K. Matsuta, M. Fukuda, T. Minamisono, M. Yaguchi, J. Ohno, Y. Kamisho, R. Kanbe, S. Shinozaki, M. Tanaka, K. Mukai, J. Sugiyama, Dynamical property of Li in Li-ion conduction studied by ^8Li β -NMR, The 5th Joint International Conference on Hyperfine Interactions and Symposium on Nuclear Quadrupole Interactions (HFI/NQI 2014), 21-26, Sep., 2014, Canberra, Australia.

⑤ M. Mihara, Y. Ishibashi, Y. Abe, Y. Kamisho, Y. Morita, J. Ohno, M. Tanaka, S. Shinozaki, R. Kanbe, M. Fukuda, K. Matsuta, A. Ozawa, D. Nagae, S. Inaba, S. Okada, Y. Saito, H. Ueno, K. Yamada, T. Izumikawa, T. Ohtsubo, S. Momota, D. Nishimura, T. Suzuki, T. Yamaguchi, Y. Kobayashi, K. Imamura, X. Yan, T. Nagatomo, T. Minamisono, M. Takechi, M. Ogura, K. Matsukawa, K. Shirai, and T. Fujimura, Production of spin polarized ^{58}Cu and its magnetic moment, 2nd Conference on Advances in Radioactive Isotope Science (ARIS2014), 1-6, June 2014, Tokyo.

⑥ M. Mihara, K. Matsuta, D. Nishimura, M. Fukuda, M. Yaguchi, K. Iwamoto, M. Wakabayashi, Y. Kamisho, J. Ohno, Y. Morita, T. Izumikawa, T. Ohtsubo, S. Suzuki, M. Nagashima, K. Abe, T. Sakai, S. Momota, A. Ozawa, D. Nagae, Y. Ishibashi, Y. Abe, T. Niwa, T. Nagatomo, T. Minamisono, M.K. Kubo, A. Kitagawa, M. Torikoshi, M. Kanazawa, and S. Sato, Production of Polarized ^{12}N Through Heavy Ion Reactions, The 4th Joint Meeting of the International Conference on Hyperfine Interactions and the International Symposium on Nuclear Quadrupole Interactions (HFI/NQI 2012), 10-14, Sep., 2012, Beijing, China.

⑦ M. Yaguchi, M. Mihara, M. Fukuda, D. Nishimura, H. Uenishi, K. Iwamoto, M. Wakabayashi, J. Ohno, Y. Kamisho, Y. Morita, T. Minamisono, K. Matsuta, Spin Polarization of ^{29}P Produced Through Low Energy Nuclear Reaction, The 4th Joint Meeting of the International Conference on Hyperfine Interactions and the International Symposium on Nuclear Quadrupole Interactions (HFI/NQI 2012), 10-14, Sep., 2012, Beijing, China.

⑧ M. Mihara, 偏極不安定核生成とその応用について, RCNP 研究会「リングサイクロトロン施設の将来 —大強度超高品質ビームで切り拓く原子核科学のフロンティア—」, 21-23, Mar. 2012, 大阪大 RCNP.

⑨ M. Mihara, T. Izumikawa, H. Ueno, K. Matsuta, D. Nishimura, T. Nagatomo, T. Moriguchi, Y. Ito, D. Nagae, M. Fukuda, A. Yoshimi, K. Yamada, M. Takechi, Y. Ichikawa, S. Momota, Y. Hirayama, T. Ohtsubo, S. Suzuki, T. Kubo, Y. Namiki, A. Ozawa, Y. Ishibashi, H. Oishi, K. Suzuki, I. Hachiuma, K. Namihira, D. Horikawa, T. Minamisono, T. Yamaguchi, T. Kuboki, T. Suzuki, K. Satoh, Y. Kobayashi, K. Asahi, K. Matsukawa, and K. Shirai, β -NMR at RIBF, International Symposium on Functional Material Science, "Developments of Research Activities on Material Sciences using Accelerators", 27-28, Apr., 2011, Bari, Indonesia.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三原 基嗣 (MIHARA, Mototsugu)
大阪大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号：60294154

(2) 研究分担者

松多 健策 (MATSUTA, Kensaku)
大阪大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：50181722

(3) 研究分担者

福田 光順 (FUKUDA, Mitsunori)
大阪大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：50218939