

Title	ベータ放射核 <sup>12</sup> B, <sup>12</sup> Nの単結晶銅中植込位置と格子拡大
Author(s)	南園, 忠則; 野尻, 洋一; 松多, 健策
Citation	大阪大学低温センターだより. 36 P.1-P.4
Issue Date	1981-10
Text Version	publisher
URL	<a href="http://hdl.handle.net/11094/4413">http://hdl.handle.net/11094/4413</a>
DOI	
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

## ベータ放射核 $^{12}\text{B}$ , $^{12}\text{N}$ の単結晶銅中植込位置と格子拡大

理学部 南園忠則, 野尻洋一, 松多健策 (豊中 4141)

強磁性Ni中に植込まれた稀薄不純物 ( $< 10^{10}$ ヶ/cc) の超微細構造相互作用研究はNiの電子構造と格子点又は格子間隙に植込まれた不純物の電子構造解明を目指してきた。<sup>1,2)</sup> なかでもLiから始まる第2周期の不純物については核反応で得られる反跳エネルギーを利用する $^{12}\text{B}$ や $^{19}\text{F}$ 等の植込によると、植込位置がそれぞれ2ヶ所(格子点及び格子間隙)が知られておりこの種の研究に有効な探索子として特に興味深い。ところで内部磁場 $B_{\text{hf}}$ , スピン格子緩和時間 $T_1$ 等の定量的な理解のためには植込位置やこの不純物による格子への影響(格子拡大等)の明確な知識が不可欠である。それにもかかわらず、今までのところ軽い元素については植込み位置の決定すらも困難で、統一的な理解に支障をきたしていた。実際にその決定の例は少なく<sup>3-5)</sup> その一般的な方法もなかった。

最近我々は核反応による偏極ベータ放射核の生成と偏極核からの非対称ベータ崩壊を利用した新しい核磁気共鳴<sup>6)</sup>によるNMRスペクトルの研究から $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$ の面心立方結晶Cu内植込位置の決定と格子拡大の決定を行ったので、この結果を報告する。ここでNiを直接用いて決定しない理由は $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$ のNMR巾が、Niの荒い表面のためにVan Vleck値よりも10倍以上広がるため、この解析から植込、格子拡大の情報に直接得られないからである。それ故これを類推するためには非磁性金属を用いる必要があった。一方軽い不純物である $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$ のfcc金属Al, Cu, Pt, Au中の植込位置はその狭いNMRスペクトル巾(数kHz)が主に格子間隙中の核の受ける双極子巾(Van Vleck値)で理解されている。<sup>1)</sup>  $^{12}\text{B}$ はもっと詳しく研究され<sup>4)</sup> ~90%が体心(八面体)位置に入り、~10%が格子点に置換している事がわかっている。しかし $^{12}\text{N}$ については格子間隙<sup>3)</sup>に位置している事はわかっていたが、未だその詳細は調べられていない。またこのような稀薄不純物核が格子に与える格子拡大等の影響は、 $\mu$ メソンのを用いた測定が唯一の例としてある<sup>8)</sup> もの、未だ測定されていなかった。

核双極子巾(Van Vleck値)は不純物核のまわりに配列する核の磁気モーメントに起因するが、次の式で与えられる。

$$\langle \overline{\Delta\omega^2} \rangle = \frac{1}{3} \gamma_I \gamma_S h^2 S(S+1) \sum (3 \cos^2 \alpha_i - 1)^2 / \gamma_i^6,$$

ここで $\gamma_I$ ,  $\gamma_S$ は不純物及びまわりの核の磁気回転比で、 $I$ ,  $S$ はそれぞれの核スピンである。 $\gamma_i$ は核間の距離、 $\alpha_i$ は $\gamma_i$ と磁場 $H_0$ のなす角度である。 $\langle \overline{\Delta\omega^2} \rangle$ の角度依存性と $\gamma_i^6$ 依存からこの量が、上記の決定に特に有効である事がわかる。

実験方法は基本的には今までのものと同じである<sup>7,1)</sup>。即ち偏極核生成に用いる核反応箱と核磁気共鳴装置を図1に示す。 $^{12}\text{B}$ ( $I^\pi=1^+$ ,  $T_{1/2}=20\text{ms}$ ),  $^{12}\text{N}$ ( $I^\pi=1^+$ ,  $T_{1/2}=11\text{ms}$ )はそれぞれ $^{11}\text{B}$ (d, p)

$^{12}\text{B}$ ,  $^{10}\text{B}(^3\text{He}, n)^{12}\text{N}$  反応で生成し、コリメーターを通過した核だけを銅薄板 (0.1 mm 厚) 中に植込んだ。一様強磁場を核スピン偏極方向 (核反応平面に垂直) にかける偏極の保持と NMR 実験に用いた。ベータ線角度分布の非対称度をベータ線検出テレスコープで測定する。生成時間とベータ線計数時間は分離してある (パルスビーム法)。ベータ線角度分布は  $W(\theta) \propto (1 \mp P \cos \theta)$  で与えられる、但し  $P$  は核反応によって得られる核スピン偏極であり、それぞれ  $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$  に対して  $P = 0.15$ ,  $P = 0.25$  という大きな量が得られている。また偏極の緩和時間は室温で  $T_1 \sim 100\text{ms}$  が得られており核寿命に比べて充分長い。NMR スペクトルは高周波磁場によるベータ線角分布の変化を  $W(0^\circ)/W(1.80^\circ)$  の測定から求める。実験の手順は  $H_0$  軸を銅単結晶 ( $1\bar{1}0$ ) 面内に含みながら面に垂直な軸のまわりに資料を回転したとき、 $H_0$  と  $\langle 001 \rangle$  軸のなす角度  $\varphi$  の関数として NMR 巾を測定する。

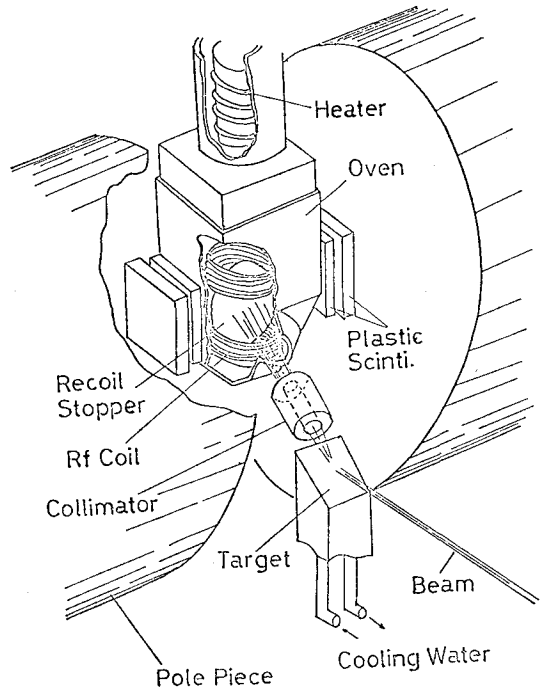


図 1. NMR 実験装置

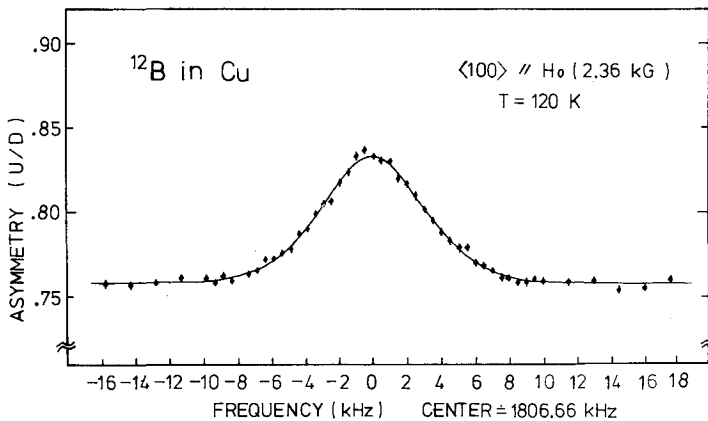


図 2. 典型的 NMR スペクトル。実線は植込位置を 1 ケとして四重極巾を考慮したもの。共鳴中央付近に小さなピークが説明されずに残る。この狭い共鳴は置換した  $^{12}\text{B}$  による。なお共鳴位置の互のづれは植込位置によって Knight Shift が異なることを示す。

これから双極子巾を決定する事が出来る。スペクトルは  $\varphi$ , 試料温度  $T$ ,  $H_0$  の関数として測定した。 $T = 120\text{K}$  のときの典型的なスペクトルを図 2 に示す。線巾は主に双極子巾で決まるが、その他に放射線損傷からくる近接格子の壊れ、歪み等による小さなかつ不均一な核四重極相互作用による巾 (ガウス分布を仮定,  $\Delta \sim 1\text{kHz}$ ), 有限強度の高周波磁場による巾 ( $\frac{\gamma H_1}{2\pi} \sim 300\text{Hz}$ ),  $H_0$  の不均一度による巾 ( $\Delta H$ )

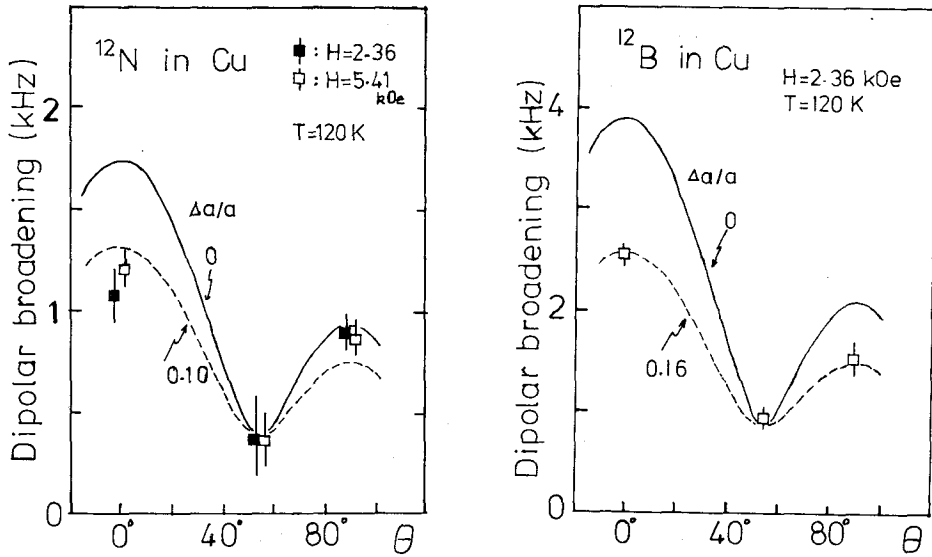


図3. 双極子巾, 実線は格子拡大を入れないVan Vleck値, 破線はそれぞれ格子拡大を入れてある。

等が寄与する。測定された巾の $\varphi$ 依存性から $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$ は主として八面体位置に入ると結論された。この位置では、 $\varphi = 55^\circ$ でみると最近接格子からの双極子巾への寄与はなく、巾は狭い。また格子拡大の効果も小さいと理解されるから、この時の巾からVan Vleck値を然るべく差引いた残りの巾は主に $\Delta H$ ,  $H_1$ ,  $\Delta$ による。 $\Delta H$ ,  $H_1$ は測定されるから、弱い核四重極相互作用による巾 $\Delta$ が決められた。この $\Delta$ を用いて、 $\varphi = 0^\circ, 90^\circ$ のときの双極子巾が引出せた。但し $^{12}\text{B}$ のときには $\sim 10\%$ 程の $^{12}\text{B}$ が置換位置に入っている事がわかった。 $^{12}\text{N}$ のときには、単一植込位置のみであった。こうして得られた結果を図3に示す。 $\varphi = 0, 90^\circ$ で明らかにVan Vleck値よりも狭い事がわかる。

実験値とVan Vleck値が比較可能であるためには、不純物 $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$ が回りのCu核の位置に作る電場勾配の強さと巾へのmotional narrowingの程度を知らねばならない。これらを測定するために双極子巾を、温度120-300K, 外部場1~5.6 kOeの範囲で測定した。双極子巾は300K以下では5%範囲で一定でmotional narrowingは、無視出来る事がわかった。 $H_0$ 依存性( $T = 300\text{K}$ )から、強磁場の極限での双極子巾( $\varphi = 0, 90^\circ$ )は現在の測定(2.4kOe又は5.6 kOe)から1%以下しかづれない事がわかった。そうするとVan Vleck値からの実験値の大ききづれば、格子の拡大によるものである。 $^{12}\text{B}$ の場合 $\Delta a/a \sim 16\%$ ,  $^{12}\text{N}$ の場合 $\Delta a/a \sim 10\%$ という拡大があると結論される。但し今回の測定は最近接格子のみについて言える事である。

さて、ここで得た結論をNi(fcc)中の $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$ と比べると良い対応が得られる。例えば $^{12}\text{B}$ について $B_{\text{hf}}$ は2ヶ見つまり $^{12}\text{N}$ について1ヶである。それ故、 $^{12}\text{B}$ はNi中で主に八面体位置の中心に入り残りの10%は置換位置であると言えよう。また $^{12}\text{N}$ も八面体位置の中心に入っているであろう。この結果 $B_{\text{hf}}$ ,  $T_1$ の実験値を、各位置についての金森, 寺倉, 吉田達のab initio band計算に

表1.  $^{12}\text{N}$ の $B_{\text{hf}}$ と $T_1$  (KTK理論)

植込位置	$B_{\text{hf}}$ (kG)	$T_1 T$ (KS)
置換位置	+10.2	36
格子間隙		
八面体	+8.5	257
四面体	-20.4	278
実験値	+12.94 ± 0.01 <sup>a)</sup>	50 ± 3 <sup>b)</sup>

a) 98Kのデータ, b) 温度範囲206K - 448K.

よる理論値<sup>2)</sup>と比較すると非常に良い一致が得られている。但し、この理論にはまだ、格子の拡大が入れてないので、これを取入れた理論による値との比較が望まれる。なおクラスターモデルによると<sup>2)</sup>拡大により不純物位置での $s$ -電子密度が上がり、 $B_{\text{hf}}$ が増加し、 $T_1$ が下がる傾向にあると予想されていてより良い一致が期待されている。

なお同様な測定をV (bcc) 金属についても現在測定を進めている。これは強磁性鉄中の $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$ の超微細構造相互作用の研究にNiに述べたのと同じような理由が必要である。また、 $^{12}\text{B}$ ,  $^{12}\text{N}$ を半導体Si, Geに植込んだ場合の植込位置、格子拡大等興味ある問題である。

#### References

- 1) H. Hamagaki *et al.*: J. Phys. Soc, Jpn 47 (1979)1806,  
T. Minamisono *et al.*: Hyperfine Interactions, 9 (1981)437.
- 2) H. Katayama, K. Terakura, and J. Kanamori : Solid State Commun. 29(1979)431, J. Phys. Soc. Jpn 46(1979)822, *ibid* 48 (1980)1504, *ibid*, 49(1980)972.
- 3) T. Minamisono *et al.*: J. Phys, Soc, Jpn 30(1971)311.
- 4) R.E. McDonald *et al.*: Phys. Lett. 63A(1977)177.
- 5) T. Minamisono *et al.*: Nucl. phys. A236(1974)416,  
T. Minamisono *et al.*: Hyperfine Interactions, 4(1978)224.
- 6) T. Minamisono, Y. N. jiri and K. Matuta : to be submitted for publication.
- 7) K. Sugimoto *et al.*: J. Phys, Soc. Jpn 21(1966)213,  
T. Minamisono : J. phys. Soc. Jpn 34 suppl.(1973)324.
- 8) M. Camani *et al* : Phys. Rev, Lett. 39(1977)836.