

氏 名	ご とう じゅん 後 藤 淳
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学位記番号	理 博 第 2592 号
学位授与の日付	平成 15 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	理学研究科物理学・宇宙物理学専攻
学位論文題目	希土類不純物の強磁性体中での超微細相互作用に関する研究

論文調査委員 (主 査) 教授 川 瀬 洋 一 教授 今 井 憲 一 教授 谷 森 達

論 文 内 容 の 要 旨

超微細相互作用の研究は、物性物理学においては原子核位置での電子構造に関する情報が得られることから興味ある研究課題である。特に Fe や Ni などの強磁性体中の不純物原子核が感じる超微細磁場は、ホストの伝導電子と不純物の電子との相互作用によって多様な変化を示すため、物質構造の理解のために興味深い。また、原子核物理学においては磁気モーメントや四重極モーメントを測定するための最も有効な手段として重要な研究課題である。一般に強磁性体中の不純物原子核位置では、実験室で生成が困難な数十～数百 T の強い磁場が得られるため、核磁気モーメントの測定に有用で、この点からも強磁性体中の超微細相互作用の研究は重要である。

Fe や Ni などの強磁性体中に希土類原子を不純物として導入した系では、希土類元素の持つ 4f 電子が局在しているために、これまでによく研究されている遷移金属不純物などの場合と異なった超微細相互作用の発生機構が重要となり、物質の特性を研究する上で興味深い。一方、原子核物理学の分野でも希土類核が変形領域に位置しているために、核モーメントの測定は重要である。しかしながら、La に始まる希土類元素の不純物が Fe, Ni などの遷移金属中で感じる超微細磁場については、希土類元素が Fe, Ni に溶解性が無く試料作製が困難なことが理由で、測定値が報告されていないものがあり、また、報告されている測定値も精度が悪いものが多い。

本研究は、京都大学原子炉実験所に設置されているガス・ジェット方式によるオンライン同位体分離装置と新潟大学理学部に設置されている極低温核整列装置を用いて、希土類不純物が遷移金属中で感じる超微細磁場を測定したものである。オンライン同位体分離装置によるイオン注入法は、希土類原子を強磁性体中に注入する方法として最も効果的であり、また、この装置は ^{235}U の核分裂生成物を効果的に取出すことができるので、軽い希土類元素に属する放射性原子核をイオンとして分離し、加速した後に注入することが可能である。超微細相互作用の測定は、NO (Nuclear Orientation) 法と NMR-ON (Nuclear Magnetic Resonance on Oriented Nuclei) 法の二つの方法を用いて行った。これらの方法は、mK 程度の超低温と数十 T の強磁場中で原子核を整列させ、放出されるガンマ線を観測して原子核の整列の度合いを測定するもので、NO 法では核整列の温度依存性の測定、NMR-ON 法では核整列を指標とした核磁気共鳴の観測によってそれぞれ超微細相互作用に関する情報を得ることが出来る。

まず、 ^{235}U を京都大学研究用原子炉 (KUR) の T-1 孔で中性子照射し、生成した核分裂片をエアロゾルに付着させてガス・ジェットでイオン源まで迅速移送を行った。表面電離型イオン源を用いて 1 価のイオンとして取り出し、30keV に加速して分析電磁石で質量分離を行い、目的とする放射性核種のみをイオンビームとして抽出した後、後段加速器により再加速を行い、試料となる Fe および Ni 箔に注入した。注入エネルギーは約 100keV で、計算によると放射性イオンは試料の表面から 20nm 程度の深さに埋め込まれていると推定される。

次に、このようにして得られた ^{147}Nd (半減期 11d) および ^{151}Pm (半減期 28.4h) の放射性イオンを Ni 箔に注入し、その試料を $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機で数 mK の極低温まで冷却して、放出されるガンマ線の異方性の温度依存性から Ni 中の超

微細磁場を測定した。その結果、Ni 金属中に注入された Nd と Pm は置換位置と非置換位置に入り、非置換位置に入った場合は、自由イオン（3+）状態と同程度の強い磁場を感じていると仮定すれば矛盾なく説明できることが判明した。

同様の測定を ^{151}Pm をプローブとして Fe 試料を用いて行い、Ni 試料との比較を行った。Fe 中の Pm が感じる超微細磁場については、Ni の場合と異なり、注入された Pm 原子は 1 種類の磁場を感じると仮定すると矛盾なく説明できることを示し、超微細磁場の値について従来のものより格段に精度のよい $284 \pm 35\text{T}$ を得た。

さらに、 ^{140}La （半減期 1.68d）を Fe 中に注入した試料については、極低温で外部磁場をかけて、磁場の方向に核整列を起こさせた状態で高周波電力を印加した。磁氣的相互作用の強さと高周波の振動数が一致すれば、共鳴吸収が起こり、核整列が乱されていわゆる共鳴が観測される。その結果、これまで実験的に不可能であった核磁気共鳴（NMR-ON）の観測に初めて成功した。共鳴周波数の外部磁場依存性を精密に測定することにより、超微細磁場の値とナイトシフトの値を正確に求めることができる。また、同時に超微細磁場の符号も決定できる。その結果から、超微細磁場として、 $-47 \pm 1\text{T}$ 、ナイトシフト値として $-4.0 \pm 3.4\%$ を得た。この成功は、イオン注入法によるサンプル作製が共鳴を観測するのに適していることによるものであると思われる。今回の測定により、これまで 2 つの大きく異なった値が報告されていた超微細磁場を高精度で決定した。

実験的に得られた超微細磁場の値を、近傍の希土類元素不純物の値と比較検討し、また、最近提唱されている理論による計算値と比較した結果について議論した。

論文審査の結果の要旨

学位申請論文「希土類不純物の強磁性体中での超微細相互作用に関する研究」は ^{235}U の核分裂で生成される放射性イオンビームを用いて、強磁性体中の希土類元素不純物が感じる超微細磁場に関して実験的研究を行ったものである。近年、この研究分野の進展は目覚ましいものがあり、実験手法の高度化と相まって、理論的取扱いもより正確な解釈が可能になっている。しかしながら、La に始まる希土類元素の不純物が Fe、Ni などの遷移金属中で感じる超微細磁場については、希土類元素が Fe、Ni に溶解性がないために試料作製が困難なことが理由で、測定値が報告されていないものがあり、また、報告されている測定値も精度が悪いものが多い。理論的にも 4f 電子系の取扱いが困難で、第一原理計算が未だ行われていないのが現状である。従って、この研究分野でまだ未解決の部分が残されている希土類領域に関する研究は貴重な情報をもたらすものと期待される。

申請者は、京都大学の研究用原子炉に設置されたガス・ジェット型オンライン同位体分離装置（ISOL）で得られる放射性の希土類元素イオンを加速して試料中に埋め込む方法で線源を作製し、新潟大学理学部に設置された極低温核整列実験装置を用いての核整列実験により、超微細磁場を測定し、新しい知見を得た。この方法は、希土類原子を強磁性体中に注入する方法として最も効果的であり、また、この装置は ^{235}U の核分裂生成物を効果的に取出すことができるので、軽い希土類元素に属する放射性原子核をイオンとして分離し、加速した後に注入することが可能である。

まず、申請者は ^{235}U を京都大学研究用原子炉（KUR）で中性子照射し、生成した核分裂片をエアロゾルに付着させてガス・ジェットでイオン源まで迅速移送を行い、目的とする放射性核種のみをイオンビームとして抽出した後、後段加速器により再加速を行い、試料となる Fe および Ni 箔に注入した。注入エネルギーは約 100keV で、計算によると放射性イオンは試料の表面から 20nm 程度の深さに埋め込まれていると推定される。申請者は高度の技術を要する ISOL の操作を行い、良質の線源を作成した。

次に、質量分離して得られた ^{147}Nd （半減期 11d）および ^{151}Pm （半減期 28.4h）の放射性イオンを約 100keV に加速して Ni 箔に注入し、その試料を新潟大学に設置されている $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機で数 mK の極低温まで冷却して、放出されるガンマ線の異方性を観測した。この極低温冷却装置および核整列実験装置は新潟大学で先駆的に開発整備されたもので、国内で稼動している唯一のユニークな装置であるが、申請者はその操作に精通し、首尾よく核整列を実現している。得られたガンマ線異方性の温度依存性から Ni 中の超微細磁場を測定した。その結果、Ni 金属中に注入された Nd と Pm は置換位置と非置換位置に入り、非置換位置に入った場合は、自由イオン（3+）状態と同程度の強い磁場を感じていると仮定すれば矛盾なく説明できることを提案している。

同様の測定を ^{151}Pm をプローブとして Fe 試料を用いて行い、Ni 試料との比較を行った。Fe 中の Pm が感じる超微細磁場については、Ni の場合と異なり、注入された Pm 原子は 1 種類の磁場を感じると仮定すると矛盾なく説明できることを示し、超微細磁場の値について従来のものより格段に精度のよい $284 \pm 35\text{T}$ を得ている。

さらに、 ^{140}La (半減期 1.68d) を Fe 中に注入した試料については、極低温で外部磁場をかけて、磁場の方向に核整列を起こさせた状態で外部から高周波電力を印加し共鳴吸収実験を試みた。磁氣的相互作用の強さと高周波の振動数が一致すれば、共鳴吸収が起こり、核整列が乱されていわゆる共鳴が観測される。その結果、これまで実験的に不可能であった核磁気共鳴 (NMR-ON) の観測に初めて成功した。共鳴周波数の外部磁場依存性を精密に測定することにより、超微細磁場の値とナイトシフトの値を正確に求めることができる。また、同時に超微細磁場の符号も決定できる。その結果から、超微細磁場として、 $-47 \pm 1\text{T}$ 、ナイトシフト値として $-4.0 \pm 3.4\%$ を得ている。この成功は、申請者が採用したイオン注入法によるサンプル作製が共鳴を観測するのに適していることによるものであると思われる。今回の測定により、これまで 2 つの大きく異なった値が報告されていた超微細磁場を高精度で決定した。

以上のように、申請者は希土類元素が強磁性体中で感じる超微細磁場について、オンライン同位体分離装置と極低温核整列装置を駆使してユニークな実験研究を行い、これまでの測定精度を向上させると共に、新たに核磁気共鳴の観測に成功し、新しい知見を得ている。よって、本論文は関連する研究分野に新しい情報をもたらし、研究の進展に貢献したものと認められる。

本論文は博士 (理学) の学位論文として価値あるものと認める。論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。