

β -NMR 和 β -NQR 谱仪的建立*

周冬梅¹ 郑永男¹ 朱佳政¹ 徐勇军¹ 杜恩鹏¹ 王志强¹ 袁大庆¹ 骆海龙¹
容超凡¹ M. Mihara² M. Fukuda² K. Matsuta² T. Minamisono² 朱升云^{1;1)}

1(中国原子能科学研究院 北京 102413)

2(Physics Department, Graduate School of Science, Osaka University,
Toyonaka, Osaka 560-0043, Japan)

摘要 介绍了在中国原子能科学研究院建成的我国第一台 β -NMR 及 β -NQR 谱仪. 进行了¹²B 的寿命、磁矩和极化度的测量, 实验结果表明谱仪工作可靠.

关键词 β -NMR 和 β -NQR 核结构 凝聚态物理和材料科学

1 引言

β -核磁共振 (β -NMR) 和 β -核电四极共振 (β -NQR) 是利用不稳定 β -放射性核作探针的核磁共振和核电四极共振, 是核物理、粒子物理、凝聚态物理和材料科学研究中一种不可缺少的实验手段^[1,2]. β -NMR 和 β -NQR 通过原子核核矩与核外电磁场间的超精细相互作用的测量进行原子核结构的性质、凝聚态物质微观结构和性质研究.

在核物理热点课题“不稳定核的结构和性质”研究中, β -NMR 和 β -NQR 做出了重要贡献, 观察和证实了一些新物理现象, 例如, 丰质子核质子晕结构、丰中子核中子有效电荷减小、单粒子能级位移、自旋异常增大等. 在粒子物理研究中, 利用低能加速器观察到了核的介子和夸克效应. 在凝聚态物理研究中, 以其高灵敏度的特点, 在晶格结构、局域磁矩、奈特位移、自旋弛豫、杂质及其扩散、缺陷和辐射损伤等研究中获得了有特色的实验结果.

核磁共振 (NMR) 和核电四极共振 (NQR) 是满足一定条件时所发生的共振吸收现象, 1946 年由美国哈佛大学 Purcell 和斯坦福大学 Bloch 同时发现. 1959 年 Connor 等采用极化中子俘获反应和 NMR 技术测量了⁸Li 的磁矩和 g 因子^[3]. 1966 年, Sugimoto

等利用 β -NMR 方法测量了¹⁷F 的磁矩^[4]. 1993 年 Minamisono 等发展了新的核四极共振技术 (NNQR), 大大地提高了 NQR 测量效率和灵敏度^[5]. β -NMR 和 β -NQR 已经成为一种十分重要的超精细相互作用探测手段, 通过核矩进行不稳定核的结构和性质研究, 利用 β 放射性核进行凝聚态物质微观结构和性质研究, 广泛应用于核物理和固体物理及材料科学等研究. β -NMR 和 β -NQR 的优点是探测灵敏度高或共振效应大, 常规的 NMR 和 NQR 测量需要 10^{18} 探针原子, β -NMR 和 β -NQR 是探测 β 放射性, 只需要 10^9 探针原子. 随着核物理技术, 特别是放射性核束技术的发展, 产生的 β 放射性核越来越多. 在低能加速器和中高能加速器上都能产生大量 β 放射性核进行 β -NMR 和 β -NQR 研究. 中子和质子滴线附近的不稳定核大部分是 β 放射性核. 远离稳定线核的结构和性质研究中, β -NMR 和 β -NQR 已成为一种越来越重要的方法.

国际上发达国家的许多大实验室都建立了 β -NMR 和 β -NQR 装置, 作为加速器大型实验终端, 开展核物理、粒子物理和凝聚态物理和材料科学的研究. 为了开展远离稳定线核的结构和性质研究, 从弱轴矢量流的轴荷及张量进行核的介子和夸克效应研究, 利用短寿命 β 放射性核束开展凝聚态物理和

2003-06-10 收稿

* 国家自然科学基金 (10175088) 资助

1) E-mail: zhusy@iris.ciae.ac.cn

材料科学研究, 我们在中国原子能科学研究院建立了 β -NMR 及 β -NQR 谱仪。

2 β -NMR 和 β -NQR 原理

β -NMR 和 β -NQR 是通过测量放射性核发射的 β 射线角分布的各向异性的 NMR 和 NQR 方法。极化核发射的 β 射线的角分布是各向异性的, 当外加的射频场满足共振条件时, 极化破坏, 此时发射的 β 射线的角分布是各向同性的。

β -NMR 和 β -NQR 实验技术主要有 4 个部分: 1) 产生极化的 β 放射性核, 2) β 放射性核注入到阻止或待研究样品中并保持极化, 3) β 射线角分布不对称性的测量, 4) 外加 RF 射频场发生共振使极化破坏(或反转)。

极化的 β 放射性核常有二种方法产生, 一种是弹核碎裂法, 能量为每个核子几十到 100 多 MeV 的粒子与重靶碰撞发生碎裂, 通过选择碎裂出射核的角度和动量, 得到极化的 β 放射性核^[6,7]。另一种是利用低能核反应产生 β 放射性核, 通过核反应入射粒子能量和 β 放射性核出射角度选择获得极化的 β 放射性核^[8]。最大极化度可以达到百分之几十, 目前主要采用低能核反应产生极化的 β 放射性核。

低能核反应产生的 β 放射性反冲核在达到稳定的电荷态前, 电子壳层中不成对的电子和空穴产生的很强的超精细相互作用使极化破坏和消失。为了保持 β 放射性核的极化, 在平行于极化方向加一个很强的磁场, 使核自旋与原子自旋分离, 在阻止或待研究样品中发生 β 衰变前保持核的极化^[4,9,10]。

β 放射性核的极化度通过测量 β 射线的角分布的不对称性确定。极化核 β 射线角分布为

$$W(\theta) = 1 + AP \frac{v}{c} \cos\theta, \quad (1)$$

其中 A 是 β 射线角分布不对称参数, P 是 β 放射性核的极化度, c 是光速, v 是电子速度 ($v/c \sim 1$), θ 是 β 射线与极化轴间夹角。不对称参数 A 可由弱相互作用理论计算而得。

实验中用 2 个 β 射线探测器在与极化轴成 $\theta = 0^\circ$ 和 $\theta = 180^\circ$ 时 (UP 和 DOWN 探测器) 分别记录发射的 β 射线, 在没有加 RF 射频场或 RF 射频场的频率远离共振频率时, UP 和 DOWN 探测器计数率之比为

$$R_{\text{off}} = N_{\text{up}}/N_{\text{down}} = n\epsilon_{\text{up}} W(\theta = 0^\circ) / n\epsilon_{\text{down}} W(\theta = 180^\circ), \quad (2)$$

由(1)式可以得到

$$R_{\text{off}} = \epsilon_{\text{up}}(1 + AP)/\epsilon_{\text{down}}(1 - AP), \quad (3)$$

公式(2)和(3)中, N_{up} 和 N_{down} 分别为 UP 和 DOWN 探测器的计数率, n 是 β 射线的总强度, ϵ_{up} 和 ϵ_{down} 为 UP 和 DOWN 探测器的探测效率。当外加 RF 射频场的频率满足共振条件时, 极化完全破坏, $P = 0$, 这时

$$R_{\text{on}} = N_{\text{up}}/N_{\text{down}} = \epsilon_{\text{up}}/\epsilon_{\text{down}}, \quad (4)$$

由(3)和(4)可以得到

$$AP = (1 - R_{\text{on}}/R_{\text{off}})/(1 + R_{\text{on}}/R_{\text{off}}). \quad (5)$$

通过 β 射线不对称分布的测定, 可以确定共振频率。在样品处垂直于外加磁场方向加一个高频磁场 H_1 , 极化度发生变化, 由 P 变为 $P - \Delta P$ 。 ΔP 取决于高频(rf)场的频率 ν 和磁场强度 H_1 。这时 2 个探测器计数率之比为

$$R(\nu, H_1) = \frac{\epsilon_{\text{up}} [1 - (P - \Delta P(\nu, H_1))]}{\epsilon_{\text{down}} [1 + (P - \Delta P(\nu, H_1))]}, \quad (6)$$

用 R_{off} 归一后, UP 和 DOWN 探测器的探测效率系数互相抵消。当 $P(P - \Delta P) \ll 1$ 时, 极化度的变化 ΔP 为

$$\Delta P(\nu, H_1) = \frac{\left[\frac{R(\nu, H_1)}{R_{\text{off}}} \right] - 1}{\left[\frac{R(\nu, H_1)}{R_{\text{off}}} \right] + 1}, \quad (7)$$

式中 $R(\nu, H_1)$ 是频率为 ν 时的 UP 和 DOWN 探测器的计数率之比。当 ν 满足共振条件时, ΔP 最大, 此时 $\Delta P \approx P$ 。

从实验测定的共振频率可以得到原子核的核矩, 获得固体材料微观结构和性质的信息。

在低能核反应产生 β 放射性核的 β -NMR 和 β -NQR 测量中, 采用脉冲束方法, 以消除本底。在加速器束流脉冲期间产生 β 放射性核, 束流脉冲后马上加一个 rf 脉冲, rf 脉冲后开始记录 β 放射性, 直到下一个束流脉冲。

3 β -NMR 及 β -NQR 谱仪

我们在中国原子能科学研究院 2×1.7 MV 串列加速器上建立的 β -NMR 和 β -NQR 谱仪主要包含磁铁和靶室系统、脉冲束系统、rf 高频及其控制系统、 β 探测器和数据获取系统。加速器束流脉冲、rf 高频脉冲、数据获取等均由计算机控制。

β -NMR 及 β -NQR 测量原理如图 1 所示。入射束以一定的能量打到水冷靶上, 产生 β 放射性核。在外加强静磁场 H_0 下, 产生的 β 放射性核以一定的角

度通过 Cu 准直器反冲注入到阻止或待研究样品. 水冷核反应靶、Cu 准直器、样品和高频线圈等都安置在真空靶室中. 外加强磁场 H_0 由电磁铁产生, 磁极直径 18cm, 磁极间隙 0—12cm 可调, 间隙 10cm 时最大场强为 0.70T. 实验中通过靶室外磁场测量点的磁场强度得到和监测样品处的磁场强度. 外加磁场方向垂直于入射束和 β 放射性核反冲方向构成的平面, 与 β 放射性核的极化方向平行. 垂直于外加静磁场 H_0 , 加入一高频磁场 H_1 , 当 rf 场的频率 ω 满足共振条件时, 自旋极化完全破坏.

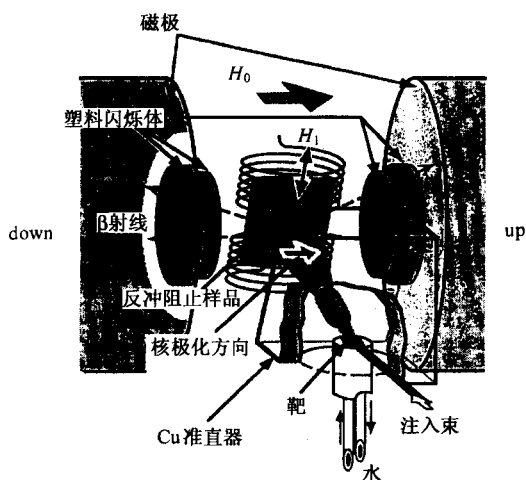


图 1 β -NMR 及 β -NQR 测量原理示意图

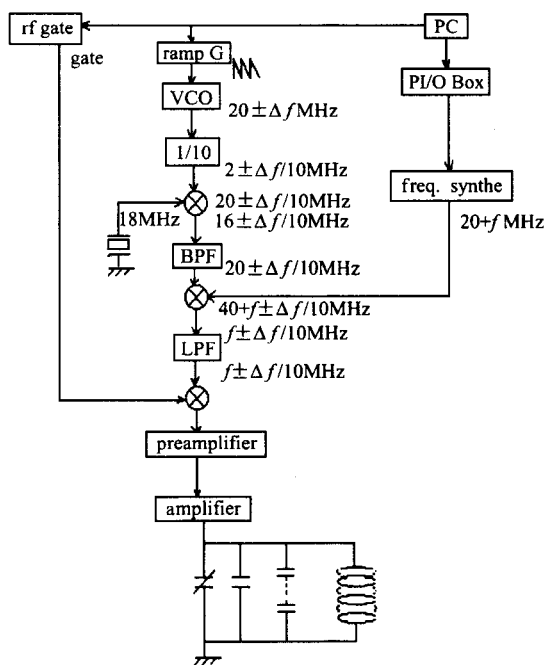


图 2 高频控制系统

rf 控制系统如图 2 所示. $20 + f$ MHz 的载波信号由计算机控制频率合成器 (freq. synthe) 产生; 计

算机同时输出一个信号触发锯齿波产生器 (Ramp G) 和电压控制的振荡器 (VCO), 衰减 10 倍的振荡器输出与 18MHz 标准信号混合、经带通滤波器 (BPF) 后输出一个 $20 \pm (\Delta f/10)$ MHz 频率调制的高频信号. $20 + f$ MHz 的载波信号与 $20 \pm (\Delta f/10)$ MHz 频率调制的高频信号混合、然后通过低带通滤波器 (LPF) 后输出一个 $f \pm (\Delta f/10)$ MHz 调频高频信号. 频率 f 由计算机控制, 调制宽度由锯齿波幅度调节. $f \pm (\Delta f/10)$ MHz 频率调制的高频 rf 脉冲通过高频门 (rf gate) 信号触发的混合器后、经 Preamplifier 和 Amplifier 后输入到共振线圈回路. 考虑到频率改变所需要的时间, 高频门的输出信号比计算机触发信号延迟约 $300\mu\text{s}$. 改变高频门的宽度, 可以改变高频脉冲的宽度.

用与自旋平行和反平行的由 3 个塑料闪烁体探测器构成的两个望远镜系统 (分别称为上 (UP) 和下 (DOWN) 探测器) 测量发射的 β 粒子的角分布. 在望远镜第二和第三个塑料闪烁体间放置一定厚度的 Al 衰减片. 为了消除磁场的影响, 塑料闪烁体和光电倍增管之间采用了长光导, 并对光电倍增管进行了很好的磁屏蔽. 图 3 为靶室和探测器系统的俯视图. 发射的 β 粒子通过 Al 靶窗入射到探测器系统记录. 探测器计数在束流脉冲和高频脉冲后开始, 直到下一个束流脉冲.

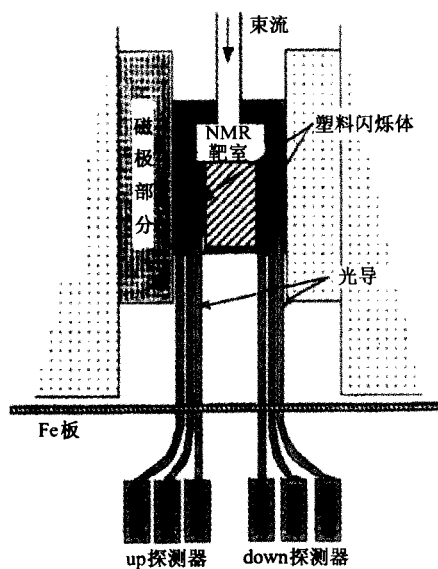


图 3 靶室、探测器和磁铁系统俯视图

4 谱仪可靠性验证

为了检验谱仪的可靠性, 测量了 β 放射性核 ^{12}B

的寿命、磁矩和极化度。

β 放射性核 ^{12}B ($I^\pi = 1^+$) 用 $^{11}\text{B}(\text{d}, \text{p})^{12}\text{B}$ 反应产生。靶为天然 ^{11}B 靶，靶厚 $250\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ，均匀真空喷镀在 0.5mm 厚的 Ta 片上。入射 d 束的能量为 1.5MeV ，流强 $4.0\mu\text{A}$ 。入射束以与靶面成 5° 角打到靶上，产生的 ^{12}B 核在 32° 至 48° 方向通过 Cu 准直体反冲到 $10\mu\text{m}$ 厚 Cu 阻止样品中。经过滚压的 Cu 样品，在 800°C 对其退火 45min 去除内部缺陷。样品表面用三氯醋酸氨腐蚀抛光。

垂直于反应平面加 0.21700T 静磁场，使反冲核 ^{12}B 在飞行过程中保持极化。垂直于外加静磁场加一脉冲高频 rf 场，调频宽度为 20kHz 。为减少本底影响，实验采用脉冲束流。每隔 55ms 提供 25ms 束流脉冲。紧接束流脉冲是 3ms 的 rf 脉冲，然后是 40ms 计数时间。

图 4 是实验测量 ^{12}B 的 β 射线时间谱，由拟合得到 β 射线 ^{12}B ($I^\pi = 1^+$) 的半衰期为 $T_{1/2} = (20.18 \pm 0.72)\text{ms}$ ，与文献 [11] 给出的 $T_{1/2} = 20.20\text{ms}$ 值符合很好。

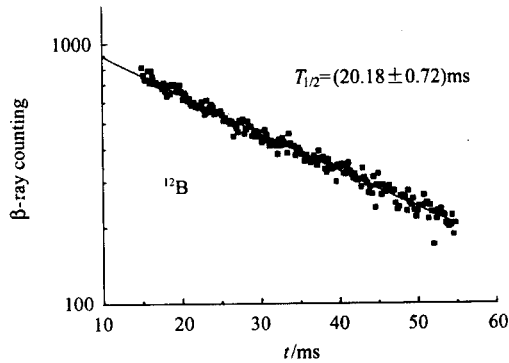


图 4 实验测量 ^{12}B 的 β 射线的时间谱

图 5 给出了室温和外磁场 $H_0 = 0.21700\text{T}$ 下测量的 ^{12}B 在 Cu 中的 NMR 谱。纵坐标是 UP 和 DOWN 探测器计数比 U/D ，横坐标是高频场频率，图中实验点的纵向误差棒是实验测量误差，横向误差棒表示频率调制宽度 (40kHz)。通过高斯拟合得到共振频率为 $(1.6544 \pm 0.0041)\text{MHz}$ 。由共振频率计算得到磁矩 $\mu = (1.0009 \pm 0.0028)\text{nm}$ 和 g 因子 $g = 1.0009 \pm 0.0028$ 。测量的磁矩与文献 [11] 给出的 $(1.00306 \pm 0.00015)\text{nm}^{[11]}$ 和 Williams 等、Kurath 等、McDonald 等的磁矩的实验测量值 $(1.00285 \pm 0.0015)\text{nm}^{[12]}$ ， $(1.000 \pm 0.001)\text{nm}^{[13]}$ ， $(1.00324 \pm$

$0.0006)\text{nm}^{[14]}$ 在误差范围内一致。

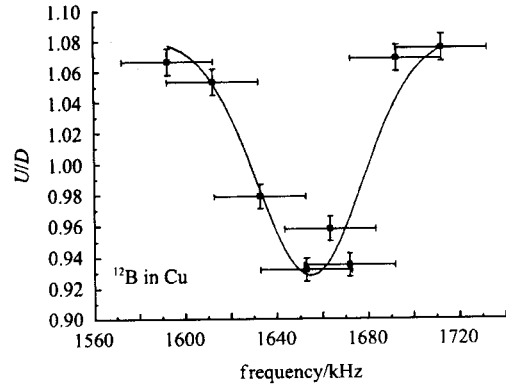


图 5 室温、 $H_0 = 0.21700\text{T}$ 时测量的 ^{12}B 在 Cu 中 β -NMR 谱

图 6 是实验测量的 ^{12}B 在 Cu 中极化度随时间的变化。外推到 $t = 0$ 时刻，得到 ^{12}B 在 Cu 中的极化度为 11.4% 。McDonald 等在入射能量 1.5MeV 、反冲角 40° 时获得 ^{12}B 在 Cu 中的极化度为 10% [14]；Pfeiffer 等在入射能量 1.5MeV 、反冲角 49° 时获得 ^{12}B 在 Pt 中的极化度为 8% [15]；T. Ohtsubo 等在入射能量 1.5MeV 、反冲角 40° 时得到 ^{12}B 在 Pt 中的极化度为 11% [16]。我们的实验还观察到极化随时间的弛豫现象。

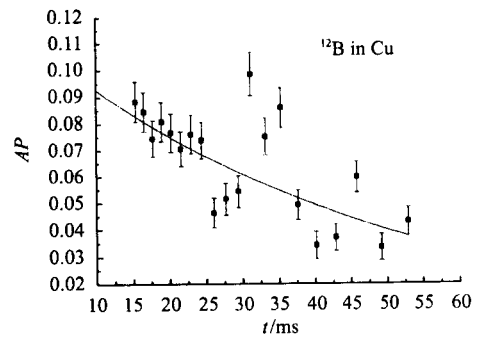


图 6 ^{12}B 在 Cu 中的极化度随时间的变化

5 结论

在中国原子能科学研究建立了我国第一台 β -NMR 及 β -NQR 谱仪。用该谱仪测量了 β 放射性核 ^{12}B 的寿命、磁矩和极化度。实验结果表明，谱仪工作可靠。可以利用该谱仪进行核物理、粒子物理、核数据、凝聚态物理和材料科学等研究。

参考文献 (References)

- 1 Asahi K, Matsuta K. Nucl. Phys., 2001, **A693**:63
- 2 Matsuta K, Sato K, Minamisono T. Solid State Physics, 1999, **34**:919
- 3 Connor D. Phys. Rev., Lett., 1959, **3**:429
- 4 Sugimoto K, Mizobuchi A, Nakai K et al. J. Phys. Soc. Japan, 1966, **21**:213
- 5 Minamisono T, Ohtsubo T, Fukuda S et al. Hyperfine Interaction, 1993, **80**:1315
- 6 Matsuta K, Ozawa A, Nojiri Y et al. Phys. Lett., 1992, **B281**:214
- 7 Asahi K, Ishihara M, Inabe N et al. Phys. Lett., 1990, **B251**:488
- 8 Tanaka M, Ochi S, Minamisono T et al. Nucl. Phys., 1976, **A263**:1
- 9 Treacy P B. Nucl. Phys., 1956/57, **2**:239
- 10 Wapstra A, Connor D. Nucl. Phys., 1961, **22**:336
- 11 Firestone R B, Shirley V S. Table of Radioactive Isotopes. 8th edition. New York: John Wiley & Sons, 1996. E1 14078
- 12 Williams R L, Pfeiffer L, Wells J C et al. Phys. Rev., 1970, **C2**:1219
- 13 Kurath D, Arima A. Proceeding of the International Conference on Nuclear Moments and Nuclear Structure, 1972.529
- 14 McDonald RE, McNab T K. Phys. Rev., 1974, **C10**:946
- 15 Pfeiffer L, Madansky L. Phys. Rev., 1967, **163**:999
- 16 Ohtsubo T, Matsuta K, Araki T et al. Hyperfine Interaction, 1993, **78**:439

 β -NMR and β -NQR Spectrometer *

ZHOU Dong-Mei¹ ZHENG Yong-Nan¹ ZHU Jia-Zheng¹ XU Yong-Jun¹
 DU En-Peng¹ WANG Zhi-Qiang¹ YUAN Da-Qing¹ LUO Hai-Long¹
 RONG Chao-Fan¹ M. Mihara² M. Fukuda² K. Matsuta²
 T. Minamisono² ZHU Sheng-Yun^{1;1)}

¹(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

²(Department of Physics, Graduate School of Science, Osaka University, Toyonaka, Osaka 560-0043, Japan)

Abstract The β -NMR and β -NQR spectrometer has been established for the first time in China. The lifetime, magnetic moment and polarization of ^{12}B were measured with it. The experimental results show the reliability of this newly established β -NMR and β -NQR spectrometer.

Key words β -NMR and β -NQR, nuclear structure, condensed matter physics and materials science

Received 10 June 2003

* Supported by National Natural Science Foundation of China(10175088)

1) E-mail: zhusy@iris.ciae.ac.cn