

氏 名	島 中 洋 志 はた なか ひろ し
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	理 博 第 484 号
学位授与の日付	昭 和 52 年 11 月 24 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	理 学 研 究 科 物 理 学 第 一 専 攻
学位論文題目	NMR 多準位系における多量子コヒーレント過渡現象

論文調査委員 (主査) 教授 端 恒夫 教授 富田和久 教授 中井祥夫

論 文 内 容 の 要 旨

申請者の主論文における研究は、NMR多準位系を用いて、二量子 spin echo, 二量子 transient nutation, 等の二量子コヒーレント現象の観測に始めて成功したものである。

実験は Al_2O_3 単結晶中の Al 核 ($I=5/2$) を用い、静磁場をその efg tensor 主軸に平行に加えた状態で行なわれている。この様な磁場配置のもとでは Al 核のエネルギー準位は、電気四重極相互作用の為不等間隔であるが level mixing は無く、従って磁気量子数の変化 Δm が ± 2 の準位間では一量子磁気双極子遷移は完全に禁止されている。

申請者はこの六準位系の中から磁気量子数が 2 だけ異なる二つの準位 a, c を選び、a c 間のエネルギー準位分離の $\frac{1}{2}$ に相当する周波数 $\left(\frac{\omega_3}{2}\right)$ を持つ電磁波をパルスの的に照射し種々の型の二量子コヒーレント現象を観測している。

用いるパルス系列は従来一量子コヒーレント現象の観測に用いられているものと類似しているが、 $\Delta m = \pm 2$ の準位間のコヒーレンスの場合には、 $\Delta m = \pm 1$ の場合の様な precessing magnetization を伴はないので、通常の NMR の様な単純な磁気的方法では検出出来ない。そこで申請者は準位 a 及び c の間の一量子遷移が可能であるような中間準位 b を用い、a b (或は b c) 間に共鳴する π パルス(周波数 ω_1 (或は ω_2), probe pulse と称する)を加えることによって、a c 間のコヒーレンスを b c (或は a b) 間に移行させて間接的に検出する方法を考察し、これを用いて二量子コヒーレント現象の観測に成功している。

申請者は最初に二量子 transient nutation の観測を行なっている。此の場合には周波数 $\left(\frac{\omega_3}{2}\right)$ の電磁波を時間 τ だけ加え、次に周波数 ω_1 の probe pulse を加えて其の直後に現われる周波数 ω_2 の free induction decay (fid) 信号を観測している。この信号の大きさは τ の関数として二量子 Rabi flopping 周波数で振動することが見出され、二量子 transient nutation であることが確かめられた。二量子 spin echo の観測には $\frac{\pi}{2}\left(\frac{\omega_3}{2}\right) - \tau - \pi\left(\frac{\omega_3}{2}\right) - \tau' - \pi(\omega_1)$ のパルス系列が用いられ probe pulse $\pi(\omega_1)$

直後の周波数 ω_2 の fid 信号が τ' の関数として測定され、 $\tau'=\tau$ の所に peak を持つ様な echo が得られた。($\theta(\omega)$ は周波数 ω の θ のパルスを意味する)。echo の巾は一量子 echo の場合の約 $\frac{1}{2}$ で、この信号が二量子 spin echo であることを示している。同様な操作を用いて申請者は殆んどあらゆる種類の二量子コヒーレント現象の観測に成功している。列挙すると1) 二量子 fid, (以下二量子を略す) 2) spin echo, 3) transient nutation, 4) stimulated echo 5) rotary echo 6) spin—locking 7) ADRF 8) rotary saturation 9) spin-locked echo 10) その他の anomalous echoes である。

理論的解析は標準的な密度行列を用いる摂動法により行なわれた。申請者の解析は、考えている NMR 多準位系のすべての準位の効果を取り入れている点で従来のものより一般的で又やや異なった近似法を用いている。此の解析は Grischkowsky 等によって導かれたベクトルモデルによる解析を含み、上記 1) ~ 5) 及び 10) の現象の dynamics をよく説明している。又レベルシフトに関して従来の理論と申請者の実験結果との不一致の原因を明らかにしている。6) ~ 9) の現象については上の理論のみでは十分に説明出来ない面がある。これは固体 NMR における一量子コヒーレント効果に於て、スピン温度仮説の導入が必要であった事態に対応して居り今後の研究が必要である。しかし実験的には例えば二量子 spin—locking によって一量子共鳴の場合の $T_{1\rho}$ に相当する量が著しく長くなり、又 ADRF 相当の操作によってスピンの系における 何等かの order が可逆的に移行する等の興味ある事実が確認されている。

参考論文その 1 は三重共鳴を用いた O^{17} PQR の高感度検出に関するもの、その 2 は回転系二重共鳴を用いた KH_2AsO_4 中の K^{39} の NMR に関するもの、その 3 及び 6 は NMR における非共鳴振動磁場の影響を dressed atom の考え方を用いて種々の角度から調べたもの、その 4 及び 5 はコヒーレンスの移行及び二量子コヒーレント効果を扱ったもので主論文の先駆をなすものである。

論文審査の結果の要旨

多光子共鳴過程に伴うコヒーレント効果は、輻射と物質の相互作用に関する基礎的問題の一つであり、最近特に量子光学の分野における重要な研究課題となっている。しかし数多くの理論的研究がなされているにも拘らずそれを裏付ける実験的な研究は数少ない。例えばかなり以前から二光子 photon echo の観測可能性が理論的に指摘されているにも拘らず、其の成功例は未だ報告されていない。其の理由としては、光学領域に於ける実験に際しては光源となるレーザの単色性、強度、安定性等が充分でなく、又微弱な信号光の高速過渡の検出に関しても種々の技術的問題がある等の事実が考えられる。

申請者は原理的に全く同等の実験が電磁波(ラジオ波)領域でも可能であるという点に着目し、NMR 多準位系を用いて実験を行ない、NMR の特性を十分に活用して、二光子 photon echo に対応する実験を始めとして、殆んどあらゆる種類の二量子(二光子)コヒーレント現象の観測に始めて成功したものである。

申請者の選んだ Al_2O_3 中の Al 核スピン系は、その C 軸方向に平行に磁場を加える時、level mixing の無い不等間隔多準位系を作るもので此の種の研究に極めて適当な系である。又二量子共鳴に伴うコヒーレンスの場合には一量子共鳴の場合と異なり precessing magnetization を伴はないので其の検

出には特別の工夫が必要である。申請者は一量子共鳴を巧みに利用して、二量子コヒーレンスを移行させ間接的に検出するという方法を考案し実験に成功している。

申請者の観測した現象は二種類に大別出来る。一つは所謂 *isolated spin model* を用いて理解しうるもので、二量子 *spin echo*, 二量子 *transient nutation*, 二量子 *free decay*, 二量子 *rotary echo* 等である。他の一つは固体 NMR に特有な、スピン間相互作用が本質的に重要な役割をなす現象で、一量子の場合はスピン温度仮説を用いて理解された型のものである。これ等に属するものとしては二量子 *spin-locking*, 回転系断熱消磁の二量子アナログ等がある。

前者については、Grischkowsky 等によってまとめられた理論的研究があり、一量子の場合と類似したベクトルモデルを用いて現象の定性的理解がなされることが示されている。申請者の実験結果は一般的に此のモデルによく適合するが、レベルシフトについては理論と一致しない。申請者は異なる近似法を用いた理論を展開して、多単位系のすべての準位の効果を取り入れれば此の不一致は解消することを示している。

後者に属する現象の観測は別の観点から極めて興味あるものである。即ちこれ等の実験結果は二量子コヒーレント効果を用いて或る種の *order* がスピン系に導入されることを示している。此の *order* は一量子の場合とは明らかに異なるが、詳しい性質は未だわかっていない。しかし Abragam 等が回転系断熱消磁を用いて *nuclear antiferro*, 或は *ferro* 状態の実現に成功した事から類推して、*nuclear order* 或は超低温生成に関する新しい方法的可能性を含むものと期待される。

以上の様に申請者の主論文における研究は、二量子コヒーレント効果に関する先駆的で重要な実験成果である。上述の様に、この研究は電磁波領域で行なわれているが、輻射物理学の立場から見て *local coherent phenomena* としての本質的部分はすべて明らかにされて居り、又 NMR 独自の観点から見ても、新しい可能性に富む方法の導入に関して貴重な示唆を含み、当該分野の発展に寄与する所が極めて大きい。

参考論文は何れも価値あるもので申請者の優れた研究能力を示している。

よって、本論文は理学博士の学位論文として価値あるものと認める。