

氏名	いいぬままさたか 飯沼昌隆
学位(専攻分野)	博士(理学)
学位記番号	理博第1865号
学位授与の日付	平成9年7月23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	理学研究科物理学第二専攻
学位論文題目	Dynamic Nuclear Polarization at High Temperature for Polarized Proton Target (偏極陽子標的の為の高温動的核偏極)
論文調査委員	(主査) 教授 政池 明 教授 今井 憲一 教授 薮崎 努

論文内容の要旨

申請者は、色素レーザーを用いてペンタセンをドープしたナフタレンとパラタフェニール単結晶中の陽子偏極実験を行った。これは素粒子原子核実験での偏極ターゲットとして、あるいは中性子ビームを偏極させるための偏極陽子フィルターとして有用である。

陽子の偏極は、レーザー励起されたペンタセン分子の電子系の triplet state で自発的に生じる Zeeman sublevels の population の差を integrated solid effect によって陽子に動的に移すことによって得られた。

レーザー励起されたペンタセン分子の triplet state での ESR 測定は、パルス的に照射されるレーザー光に同期させて、 $|0\rangle$ と $|-1\rangle$ の間の population の差が時間とともに減少していく波形を観測することにより行われた。結晶の軸は、この ESR 信号の振幅を大きくし、ESR 幅を最も小さくすることによって決めることができた。この時、ESR 信号の波形の解析を行うことで、二つの Zeeman sublevels, $|-1\rangle$ と $|0\rangle$ の population の差による“電子の偏極”を70%と求めた。この値は、これまで調べられている値、73%と近い値であり、レーザーパワーにほとんどよらないことも確かめられた。また、triplet-triplet 吸収過程を経由して最も低い triplet state に遷移した場合についてもほとんど変わらなかった。一方、ESR 信号の大きさはレーザーパワーによって大きく変わった。これにより結晶の軸を決めれば、ESR 信号の大きさは triplet state での population に比例することになる。

偏極移行に関しては、磁場の sweep 幅 42Gauss, 時間幅 10 μ sec, パワー約 30mW のマイクロ波パルス照射で adiabatic 条件を満たし、integrated solid effect が有効に働くことがわかった。一方 adiabatic 条件を同じにし、マイクロ波のパルス幅を 1 μ sec にすると、従来の differential solid effect と同じふるまいを示した。integrated solid effect による偏極度は differential solid effect による偏極度に比べて、10倍以上であることが明らかになった。

緩和時間は、レーザーを照射しながら測定された。ナフタレン単結晶では、常温ではレーザーを照射しない時の緩和時間は、約40分であるがレーザーを照射するとレーザーパワーの増大とともに短くなることがわかった。一般的に分子性結晶は、結晶中の不純物ラジカルによる緩和過程以外に、slow molecular motion による緩和が存在する。この緩和過程は、ナフタレン単結晶の場合、約 250K 以上で顕著となり、温度に強く依存する。常温付近では、励起ペンタセンが基底状態に落ちる時の phonon emission が無視できなくなり、緩和時間が短くなることがわかった。また、triplet-triplet 吸収を引き起こす窒素レーザー ($\lambda \sim 337\text{nm}$) の場合では、レーザーパワー依存性が更に大きいこともわかった。

これらの結果から、ペンタセンの吸収効率が最も高い波長 600nm 付近のレーザー光の照射が有効であることがわかった。また、結晶を液体窒素温度にまで冷やすと、slow molecular motion による緩和過程より不純物ラジカルによる緩和がきいてくるため、温度依存性はあまりないことも明らかになった。

一方パラタフェニール単結晶については、緩和時間の温度依存性が偏極した状態としない状態で異なるという現象が見られた。

結局 0.001mol% のペンタセンをドーブしたナフタレン単結晶を液体窒素温度まで冷却し、色素レーザーを用いた場合最も高い偏極が得られた。このときの色素レーザーは、波長 600nm, パワー 350mW, 繰り返し 50Hz で12時間照射後、約30%の偏極度を得た。この時レーザーを照射した状態での緩和時間は、約900分であり、常温の時より二桁長かった。また常温の場合、0.01mol%ペンタセンをドーブしたナフタレン単結晶を用いて、波長 595nm, パワー 100mW, 繰り返し 50Hz の色素レーザーを40分照射したとき、偏極度は約0.12%であった。またレーザーを照射した状態での緩和時間は、約8分であった。

更にこれらの偏極したサンプルに中性子ビームをあてて偏極度と緩和時間の測定をした。測定は、色素レーザーで偏極を行った後、偏極をやめて緩和していく様子を中性子ビームの透過度の変化によって測定した。その測定結果は NMR による測定結果と一致するものであった。

これらの研究によってペンタセンをドーブしたナフタレンは、偏極陽子ターゲットとして十分応用可能であることが示された。

論文審査の結果の要旨

素粒子反応におけるスピン依存性を調べるためにはターゲットとなる陽子を偏極することが必要である。特に精度のよい実験を行うためには偏極度をできるだけ大きくせねばならない。ところが陽子の磁気モーメントは非常に小さいので、高磁場、極低温下でも静的な方法を用いるかぎり、その偏極度を素粒子反応に用いることが出来るほど高くすることは不可能である。一方、常磁性の電子の磁気モーメントは陽子に比べて600倍以上大きい。そこでいわゆる動的偏極によって電子の偏極を陽子に transfer する方法が用いられている。この方法によれば 25KG 以上の高磁場 0.5K 以下の温度で、常磁性の不純物を含んだ有機物質中の水素原子核を80%以上偏極することが可能である。この方法は現在偏極陽子ターゲットに広く利用されているが、ターゲットの存在する広い空間を均一度の高い高磁場に保たねばならず、しかも大容量の希釈冷凍器などの複雑な装置を必要とする。このため限られたタイプの実験しか行うことが出来ない。特に大強度ビームによる加熱や放射線損傷の問題を解決することは困難である。また高磁場中での低運動量の荷電入射粒子及び散乱粒子の曲りも問題である。そこで本学位論文申請者は、色素レーザーを用いてペンタセンをドーブしたナフタレン単結晶及びペンタセンをドーブしたパラタフェニール単結晶中の陽子を高温において偏極する実験を行った。レーザー励起されたペンタセン分子の電子系の triplet state で自発的に生じる Zeeman sublevel の間の population difference を integrated solid effect によって動的に移すことによって陽子偏極が得られる。基底状態にあるペンタセン分子の電子系のスピンは通常は singlet であるが、レーザーによって励起されると、スピン-軌道相互作用によって一部が triplet state に遷移する。この時、ペンタセン分子の長軸方向に磁場をかけておけば、Zeeman sublevel $|+1\rangle$, $|0\rangle$, $|-1\rangle$ の population はそれぞれ12%, 76%, 12%となる。この triplet state は、20 μ sec の寿命で基底状態に崩壊するが、その間に integrated solid effect によって二準位間の“電子の偏極”を陽子に移すことが出来る。integrated solid effect は、マイクロ波を加えながら、磁場を sweep させることによって低磁場でも有効に偏極を移す手法である。基底状態に落ちた電子系のスピンは singlet なので陽子スピンとの相互作用はなくなる。またペンタセン分子の場合 triplet state での電子の緩和時間は triplet state の寿命より長いので、電子の緩和が陽子の偏極を壊すことはない。

この方法によって高偏極を得るには integrated solid effect によって電子の偏極を陽子に有効に transfer することが出来る、しかも陽子の緩和時間が十分長いことが必要である。

本申請者はレーザー励起されたペンタセン分子の triplet 状態での ESR の精度よい測定を行い、それをプローブにして integrated solid effect が最も効果的に働く条件（レーザーパワー、レーザー波長、磁場の sweep 幅、時間幅、マイクロ波パワー等）を見出した。また緩和時間に関しては、ナフタレン単結晶の場合、常温では slow molecular motion による緩和過程が主として寄与するが、250K 以下の温度では不純物ラジカルによる緩和しか関与しないので緩和時間が極めて長くなることを見出した。

一方、パラタフェニール単結晶の場合には 193K 以上で温度上昇とともに緩和時間が長くなることを応用して常温での偏極が試みられた。

これらの実験からペンタセンをドーブしたナフタレン結晶を液体窒素に浸した場合、約12時間大パワーの色素レーザーを照射することにより陽子偏極を30%以上とすることが可能であることを初めて示した。

この研究成果は広く散乱実験に応用することが出来、これまで困難であった素粒子原子核反応におけるスピン・パラメータ測定に道を開くものとして高く評価されるものである。また本申請者の研究によってこの方法が低速中性子ビームを偏極するための偏極陽子フィルターとして有用であることが実証され、時空の対称性の破れの研究などにとって重要な方法となることが期待されている。

更にペンタセン等の有機物質の triplet state の研究にも応用出来るはずである。

よって、本申請論文は、審査の結果、博士（理学）の学位論文として価値あるものと認定した。

なお、平成9年4月16日、論文内容とそれに関連した口頭試問をした結果、合格と認めた。