

|         |                                                                                                                                                      |
|---------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 氏 名     | 堤 淑 高<br>つつみ よし たか                                                                                                                                   |
| 学位の種類   | 理 学 博 士                                                                                                                                              |
| 学位記番号   | 理 博 第 160 号                                                                                                                                          |
| 学位授与の日付 | 昭 和 44 年 7 月 23 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  | <b>Rotary Saturation and Spin Calorimetry in the Mixed Case of Zeeman and Quadrupole Interactions</b><br>(ゼーマン相互作用と四重極相互作用とが混在する場合の回転飽和とスピнкаロリメトリー) |
| 論文調査委員  | (主 査)<br>教 授 端 恒 夫 教 授 長谷田泰一郎 教 授 中井祥夫                                                                                                               |

### 論 文 内 容 の 要 旨

主論文は、ゼーマン相互作用と電気四重極相互作用とが同程度の大きさをもつような固体中の核スピン系について、回転飽和とスピнкаロリメトリーの実験、およびその理論的解析を行ない、磁気共鳴飽和の機構、特に「回転系スピン温度仮説」が成立するか否かを検討したものである。

実験は、第一磷酸カリウム ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ) 単結晶を用い、77°Kで静磁場 (2348ガウス) を結晶のC軸に平行に加えた状態で行なわれている。問題とするスピン系は  $\text{K}^{39}$  核 ( $I = \frac{3}{2}$ ) であるが、Gyromagnetic ratio  $\gamma$  が小さく、その共鳴信号を直接観測することは困難であるため、二重共鳴法による測定が採用されている。回転飽和の実験法は、次のようなものである。すなわち、まず、試料中の  $\text{H}^1$  核スピン系を回転系断熱消磁し、スピン温度の低い系Aを用意する。つぎに、 $\text{K}^{39}$  核に高周波回転磁場を加え、スピン温度の高い系Bを作り、熱接触によってA系のスピン温度が上昇することを利用して共鳴を検知する。この際同時に別の高周波磁場を加え回転飽和をおこさせ、スピン温度の上昇に及ぼす効果を測定して回転飽和周波数を決定する。スピнкаロリメトリーの実験は、上と同様の方法でスピン温度の低い系Aを用意した後、 $\text{K}^{39}$  核に高周波回転磁場をパルス的に加えNケのパルス、すなわち、N回の熱接触の後にA系のスピン温度を測定することによって行なわれている。パルスの長さは、その間にA、B系の熱平衡が達せられるに充分であるように選び、また、Offの時間はB系の位相記憶時間より充分長くとられている。これらの実験はすべてスピン格子緩和時間に比べて充分短い時間内に行なわれている。

理論的解析は、 $\text{K}^{39}$  核のエネルギー準位と固有函数を求めることから出発している。これに対する方法および必要な数値は参考論文4に与えられている。つぎに、得られた四つの不等間隔のエネルギー準位について6種の可能な遷移を考え、各遷移について、それに関係する二つの固有函数で張られる空間をとって仮想スピン系を想定し、有効ハミルトニアンを書き下し、Redfieldによって行なわれたと形式的に同様のユニタリー変換を行ない、拡張された回転座標系を導入している。回転飽和周波数はこの座標系における共鳴周波数として計算されるが、各遷移について異なり、回転磁場の大きさが局所場より大きいとき

には  $P_n \gamma H_1$  ( $n = 1 \cdots 6$ ) ( $H_1$ は高周波回転磁場の振幅)であらわされることが示されている。つぎに、このような拡張された回転座標系においてもスピン温度で記述出来るような平衡状態が実現されると仮定し、Lurie と Slichter によって行なわれたと同様の手続きでスピン間のN回の熱接触によって到達される温度を計算している。

これらの計算結果は回転飽和の実験およびスピнкаロリーメトリーの実験結果と比較され、何れもよく一致することが確かめられている。局所場の値としては実験的に求めたものが用いられている。

以上の結果を総合して、申請者はゼーマン相互作用と電気四重極相互作用が混在するようなスピン系についても、拡張された回転系にうつって考えるならば、回転系スピン温度仮説は実験事実をよく説明するという結論を得ている。

参考論文(1)は、 $\text{CaF}_2$ 単結晶中の $\text{F}^{19}$ 核の回転系における共鳴線の形を測定したものである。(2)は、 $\text{CaF}_2$ 中の $\text{F}^{19}$ 核を用い、二重回転系におけるスピン温度の記述の当否を実験的に検討したものである。(3)は、 $\text{NaCl}$ の単結晶を用いた回転系二重共鳴の実験で、スピнкаロリーメトリー、および熱接触過程における多重遷移についてしらべたものである。(4)は、 $\text{KH}_2\text{PO}_4$ 単結晶中の $\text{K}^{39}$ および $\text{K}^{41}$ の共鳴を回転系二重共鳴法によって検出したものである。この場合はゼーマン相互作用と電気四重極相互作用が同程度の大きさであるため摂動法は用いることが出来ず、高次方程式をとく方法でスペクトルを解析し電気四重極結合定数等を決定している。ここで決定された数値は主論文における具体的な計算の際用いられている。

## 論文審査の結果の要旨

固体中のスピン系に、強い高周波回転磁場が作用した場合の磁気共鳴飽和現象の解明は磁気共鳴の分野における基礎的課題として重要な意義をもつものである。

この問題の解明に関して、現在までになされた最も重要なアプローチは「回転系スピン温度仮説」であると考えられる。これは固体中のスピン系に強い高周波回転磁場が作用したとき、適当な回転座標系から見ると、スピン系は温度で記述出来るような一種の平衡状態に到達するということを仮定したもので、すでに幾つかの場合について実験事実をよく説明することが確かめられている。しかし一般的にこの仮説が妥当なものであるか否かは未だ不明であって、種々の条件のスピン系についてこの当否を実験的、理論的に検討することが必要であると考えられる。

申請者の主論文は、ゼーマン相互作用と電気四重極相互作用とが同程度の大きさであるためエネルギー単位間隔が等しくないような核スピン系について、この仮説の当否を検討したものである。

このようなスピン系については外部から加えられた高周波回転磁場によって特定の二つのエネルギー単位の間のみ遷移がおこるが、これは従来まだ検討がなされていなかった場合である。

実験は第一リン酸カリウム ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ) 単結晶を用いて行なわれ、二重共鳴の方法で  $\text{K}^{39}$  核スピン系について回転飽和とスピнкаロリーメトリーの測定がなされている。同時にこれらに対応する理論的解析が併せ行なわれ、まず  $\text{K}^{39}$  核のエネルギー単位および固有函数を求めたのち、可能な6種の遷移の各々について、有効ハミルトニアンを導き、ユニタリー変換によって拡張された回転座標系が導入されている。回転飽和周波数はこの回転系における共鳴周波数として計算されるが実験との一致は良好である。これは拡張

された回転系と現実の物理現象との対応を確認したものと考えられる。つぎに、スピン系はこの回転座標系から見て温度で記述出来るような平衡状態に達するということを仮定して、熱力学的方法で平衡温度を計算し、スピンカロリメトリーの実験結果と極めてよい一致をすることを確かめている。

これらを総合して申請者は、ゼーマン相互作用と電気四重極相互作用が混在するようなスピン系についても、拡張された回転系に移って考えるならば、回転系スピン温度仮説は成立することを結論しているのであるが、これは回転系スピン温度仮説の適応範囲を従来よりも更に拡大しうることを示したもので、磁気共鳴の分野における重要な研究であり、この分野の発展に寄与するところが大きい。

参考論文は何れも主論文と内容的に密接な関連があるもので、それぞれこの分野における価値ある研究である。

よって、本論文は理学博士の学位論文として価値があるものと認める。