

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 1 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21340116

研究課題名（和文）スピン偏極の物理と応用計測のためのスピン偏極物質の探索と開発

研究課題名（英文）Exploration of hyperpolarized matters for study of spin polarization and application to precise measurements

研究代表者

石川 潔 (ISHIKAWA KIYOSHI)

兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・准教授

研究者番号：00212837

研究成果の概要（和文）：アルカリ金属の1つであるセシウム原子にレーザー光を照射し、原子気体中に電子スピン偏極と核スピン偏極の流れを発生させた。それらスピン流がセシウム塩の表面に達すると、原子のスピン角運動量が塩のセシウム原子核に渡され、核スピンの偏極する。それぞれの過程、つまり、気体中のスピン流、表面におけるスピン偏極移行、固体中のスピン拡散を詳細に調べることで、セシウムの核磁気共鳴信号を熱平衡状態に比べ3桁以上増大させることができた。

研究成果の概要（英文）：Optical pumping of cesium atoms enables to transport the spin angular momentum in the electron spin and the nuclear spin of the atoms. When the spin currents reach to a cesium salt, the spin polarization of atoms is transferred to salt nuclei at the surface. As the result, cesium nuclei are highly polarized in the salt. Studying and optimizing each process such as spin current in the vapor, spin transfer at the surface, and spin diffusion in the salt, we succeeded in the enhancement of Cs NMR signal three-orders of magnitude larger than thermal equilibrium.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	8,900,000	2,670,000	11,570,000
2010年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2011年度	3,000,000	900,000	3,900,000
年度			
年度			
総計	15,100,000	4,530,000	19,630,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学、原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：アルカリ金属・光ポンピング・スピン流・表面・アルカリ塩・スピン偏極・スピン拡散・イオン拡散

1. 研究開始当初の背景

スピン偏極に関する研究は非常に多い。例えば、固体では量子ドット、冷却原子ではBEC研究、最近ではスピントロニクス素子の開発である。これらに対し、本研究の対象とするスピンの物理は、熱い原子系のスピン相互作用に関する研究である。このような偏

極物質は、スピン偏極移行する相手としての生体と相性もよい。この観点から注目すべきは、LiF, LiD 結晶などの動的核偏極 (DNP) である。これらは高エネルギー粒子の偏極標的であり、世界に一つしかない巨大な装置で 50% を超える核スピン偏極率が得られる。DNP により、生命現象に関わるイオンをスピン偏極できるかもしれないが、極低温かつ高

磁場中でマイクロ波を照射する必要がある。装置と原理の単純さでは、原子を光ポンピングする手法が格段に勝る。LiやCsイオンが生命現象を調べるのに適しており、核スピン偏極することもできる。本研究で、重要なのは、光ポンピング法による偏極率を向上させることである。

希ガスを核スピン偏極するスピン交換光ポンピング（光ポンピングした原子から、衝突中のスピン交換相互作用で、偏極を移すこと）は、現在では確立した手法である。偏極希ガスの歴史から学ぶのは、一旦、偏極希ガスが有用だとわかると、スピン交換光ポンピングほど偏極率が高くなくても、容易に実行可能な代替法が使われることである。その1つが **Brute Force** 法である。力づくであっても、誰でも必ず一定の偏極率が得られ、イオン結晶にも適用できる。このようなイオン結晶の水への溶解過程を核磁気共鳴（NMR）計測する。

本研究では、イオン結晶の核スピン偏極がもっとも重要なテーマであるが、偏極試料が発生する磁場の検出にも偏極原子を使う。原子磁力計については、個々の技術に精通しているグループが数多くあるが、観測対象をスピン偏極し、偏極原子で高感度磁気計測する研究は多くない。これまで多くの物質でスピン偏極してきた研究代表者の経験が生きる。

これまでに、電子スピンと核スピンをレーザー偏極した物質は、次のとおりである。

- (1) 光ポンピングした気体アルカリ金属原子：これが、本研究におけるスピン源
- (2) スピン交換光ポンピングした気体の希ガス原子と、その液体や固体
- (3) 希ガスから偏極移行したスピン偏極分子
- (4) 気体原子のスピン偏極を注入した固体アルカリ塩

これら気体・液体・固体のスピン偏極物質を手に入れ精密計測への応用をはじめ、研究申請時点では、偏極原子を磁気センサーとして利用していた。本研究によりスピン偏極物質の種類を増やし、原子・分子間や界面におけるスピン相互作用の研究を基礎として、偏極原子をセンサーとした磁気計測の高感度化を測るとともに、無数に存在する観測対象をスピン偏極することに思い至った。信号源とセンサー、どちらもスピン偏極することによる高感度磁気計測である。

2. 研究の目的

新たにスピン偏極物質を開発し、スピンの

物理（スピン相互作用、スピンドYNAMICS、スピン状態操作）について調べるとともに、スピン偏極物質を使った計測手法を開発することを目的とした。主要なテーマは、次の2つである。

- (1) 衝突する原子・分子や固体表面のような異なる物質の境界における電子と核のスピン相互作用を詳細に調べ、スピン偏極移行やスピン注入の機構を解明し、物質から物質に自在にスピン偏極を移す。
- (2) 微弱な磁場に感度を有するスピン偏極物質を、高感度磁気計測や磁気共鳴計測に応用する。

これら2つのテーマが絡み合いながら、ともに発展することをねらった。

3. 研究の方法

アルカリ金属原子を光ポンピングし、ガラス容器中に電子スピン流と核スピン流を発生させる。磁気モーメントを持った粒子（希ガス原子や分子など）や固体（アルカリ塩など）との衝突により、スピン流の一部が衝突相手に移る。その機構を素過程に分解して調べるため、スピン流の成分や大きさを光により制御しつつ、偏極原子から移ったスピン偏極を NMR 計測し、ダイナミクスを調べる。本研究で最も成功したのが、セシウム原子によるセシウム塩の核スピン偏極である。以下では、その具体的な方法を述べる。

(1) セシウム原子の光ポンピング

セシウム原子の D1 線と D2 線に共鳴する単一モードレーザー光を照射し、原子を光ポンピングする。磁場の大きさ、緩衝ガス圧力、温度、レーザー周波数や偏光などを変化させ、気体中を流れる核スピン流と電子スピン流の大きさや符号を制御する。原子の運ぶスピン流が、自由な空間ではなく、セシウム塩の表面近傍で大きくなるように、

- ① 高磁場（電子ゼーマン分裂≫超微細分裂）光ポンピング
- ② 表面における原子のスピン緩和と光ポンピング
- ③ ランダム散乱媒質（偏光と伝播ベクトルが乱雑化）中の光ポンピング

について詳しく調べた。

(2) セシウム塩へのスピン注入

気体から固体へ注入されているのが、電子スピン偏極あるいは核スピン偏極なのかを明らかにするため、セシウム塩の Cs NMR 信号の大きさの、

① 静磁場依存性

② 固体に流れ込む核スピン流・電子スピン流との相関

を調べた。さらに、注入されているのが、

③ スピン偏極

④ スピンのキャリア（電子・核）なのか

を明らかにするため、複数のセシウム塩（解離エネルギーや吸着エネルギーが異なる）で核スピン偏極を試みた。

(3) セシウム塩のスピン拡散

セシウム塩の核スピン偏極が、表面近傍だけに留まらず塩全体に拡がれば、偏極イオン結晶の大量生成につながる。セシウム塩内でスピン偏極が拡がる機構を解明するため、光ポンピングした原子により塩表面を偏極させ、Cs NMR 信号増大の時間変化を観測した。スピン拡散を明らかにするには、次の2つの計測が有効だった。

① 塩の大きさとスピン緩和時間

核磁気相互作用によるスピン拡散長に比べ塩が小さいと、スピン偏極の増大時間と減衰時間が短くなる。

② NMR 信号増大・緩和時間とイオン易動度

高温でイオンの易動度が大きくなると、イオンがスピン偏極を輸送するようになる。

4. 研究成果

本研究により初めて、「偏極気体原子からのスピン偏極移行によるアルカリ塩の超偏極」を実現した。以下では、超偏極にいたる各段階で得られた重要な成果を述べる。

(1) 光ポンピングした気体中のスピン流とスピン偏極移行

光ポンピングによる原子のスピン偏極率の増加と、表面におけるスピン緩和による偏極率の減少、これらの2つの相反する効果によって気体中にスピン流が発生する。円筒形ガラス容器中のセシウム原子について、電子スピン流と核スピン流を数値シミュレーションし、容器内面のアルカリ塩の NMR 信号の観測値と比較した。実験では、ガラス容器中でセシウム原子を光ポンピングすると、容器の壁に向かってスピン角運動量を流すことができる。運ばれてきた角運動量は、壁を構成する物質の核スピン系に蓄積する。そこで、塩で容器の内壁をコートしてみると、塩の核スピン偏極率が有意に増大した。気体の電子スピン流による寄与は少なく、むしろ核スピン流により塩の核スピンが偏極す

ることが実験的に示された。

(2) アルカリ塩の超偏極に向けたランダム散乱媒質中の原子の光ポンピング

ガラス容器中で光ポンピングしたセシウム原子の核スピン偏極は、水素化セシウムの表面に向かって流れる。ガラスウールを塩で薄くコートすると、偏極原子気体との接触面積が大きくなり、塩の核スピン偏極が増大する。ガラスウールは励起光をランダムに散乱するが、磁場強度を調節し、無偏向励起光によって気体原子をスピン偏極した。塩の核スピン偏極と原子の状態の関係が明らかになったので、逆に、塩の NMR 信号により塩表面近傍の光と原子の偏極のようすを調べることができた。

(3) 薄膜のスピン拡散とスピン蓄積

光ポンピングしたセシウム蒸気と接触させると、塩のセシウム原子核スピン系に角運動量が蓄積される。解離性の水素化物に加え化学的に安定な塩化物でも核スピンが偏極されたので、気体原子と固体イオンの交換による偏極移行の可能性は低く、核磁気相互作用によりスピン偏極が移っていると考えられる。固体薄膜では、スピン偏極の増大過程だけでなく、増大したスピン偏極の緩和過程もまた、バルク試料の熱平衡状態における回復過程より速い。厚い試料の信号を取り除くことにより、塩化セシウムの薄膜で熱平衡状態の100倍を超える核スピン偏極が得られたことがわかった。

(4) イオン易動度とスピン偏極

光ポンピングしたセシウム蒸気からスピン偏極を移し、塩化セシウム中のセシウム原子核の超偏極を実現した。その偏極率は、最大0.1%に達した。増大した NMR 共鳴線がイオンの運動により尖鋭化したので、偏極イオンが表面から塩内部に移動したことが示唆される。超偏極イオンの NMR 信号が非常に大きいので、スピン偏極のダイナミクスを実時間で観測できるようになった。NMR 共鳴周波数と縦緩和時間の観測結果には、セシウム金属や常磁性不純物が塩化セシウムに混入している形跡はない。セシウム原子核のスピン偏極率は、容器中すべてのセシウム塩をレーザー加熱できれば、さらに数桁の改善ができるだろう。

(5) 国内外における位置づけとインパクト

偏極アルカリ金属原子からスピン偏極移行により固体・液体の超偏極を実現した前例は国内外ともに無く、まったく新しい成果である。ガラス容器中の原子の分光では、壁における状態緩和が精密計測を阻害する。

これを逆にとり、スピン緩和時間の長い物質を壁にし、そのスピン偏極率を高めることができた。壁の表面処理に超偏極という新しい選択肢が増え、精密計測へのインパクトも大きい。

(6) 今後の展望

気体原子の光ポンピング、偏極気体とアルカリ塩の接触面積、容器内のすべての塩のレーザー加熱。これらを同時に可能にし、さらなるセシウム塩の核スピン偏極と、他のアルカリ金属イオンも併せて、超偏極アルカリ塩の大量生成をめざす。

我々が開発した「スピン移行光ポンピング」が汎用的な NMR 計測の高感度化法となるためには、多くの物質の核スピン偏極を実現することである。アルカリ塩以外の物質を核スピン偏極し、応用範囲を広げる。

5. 主な発表論文等 (研究代表者に下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

1. K. Ishikawa, **Hyperpolarization of ^{133}Cs nuclei enhanced by ion movement in a cesium salt**, Phys. Rev. A, 査読有 vol. **84**, 063404R (4 pages) (2011).
<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.83.063410>
2. K. Ishikawa, **Spin accumulation in thin Cs salts on contact with optically polarized Cs vapor**, Phys. Rev. A, 査読有 vol. **84**, 033404 (6 pages) (2011).
<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.84.033404>
3. K. Ishikawa, **Glass-wool study of laser-induced spin currents en route to hyperpolarized Cs salt**, Phys. Rev. A, 査読有 vol. **84**, 013403 (5 pages) (2011).
<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.84.013403>
4. K. Ishikawa, B. Patton, B. A. Olsen, Y.-Y. Jau, and W. Happer, **Transfer of spin angular momentum from Cs vapor to nearby Cs salts through laser-induced spin currents**, Phys. Rev. A, 査読有 vol. **83**, 063410 (12 pages) (2011).
<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.83.063410>

[学会発表] (計 9 件)

1. K. Ishikawa, **Hyperpolarization of Cs nuclei in a salt**, Seminar at Institute of Atomic and

Molecular Sciences (IAMS), 2011 年 12 月 9 日, Taipei, Taiwan.

2. K. Ishikawa, **Spin polarization of salt nuclei by optical pumping of Cs atoms and laser heating of Cs salt**, 第 50 回 NMR 討論会 記念国際シンポジウム (ISNMR2011), 2011 年 11 月 18 日 L-20 大さん橋ホール (横浜) .
3. 石川 潔, **相転移するアルカリ塩の光誘起核スピン偏極**, 日本物理学会 2011 年 秋季大会, 2011 年 9 月 22 日 22aEB-4 富山大学 (富山) .
4. 石川 潔, **アルカリ塩のレーザー核スピン偏極と相転移**, 日本物理学会 2011 年 第 66 回年次大会, 2011 年 3 月 28 日 28aRB-11 新潟大学 (新潟) .
5. 石川 潔, **高偏極アルカリ塩の核スピニングダイナミクス**, 日本物理学会 2010 年 秋季大会, 2010 年 9 月 26 日 26aRF-6 大阪府立大学 (大阪) .
6. K. Ishikawa, **Optically Polarized Alkali Salt: Novel Hyperpolarized Matter**, Seminar at UC Berkeley, 2010 年 9 月 2 日 Berkeley, CA USA.
7. 石川 潔, **アルカリ塩の NMR 計測で見る気体原子の光ポンピング**, 日本物理学会 2010 年 第 65 回年次大会, 2010 年 3 月 20 日 20aTD-12 岡山大学 (岡山) .
8. K. Ishikawa, **Nuclear spin polarization of alkali-salts by optically-pumping atomic vapor**, 第 48 回 NMR 討論会, 2009 年 11 月 11 日 2L3 九州大学 (福岡) .
9. 石川 潔, **アルカリ塩の NMR 計測による偏極気体原子のスピン流の反転と緩衝ガス効果**, 日本物理学会 2009 年 秋季大会, 2009 年 9 月 27 日 27pZF-2 熊本大学 (熊本) .

[その他]

ホームページ等

http://www.sci.u-hyogo.ac.jp/material/photo_physics/index-j.html

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
石川 潔 (ISHIKAWA KIYOSHI)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・
准教授
研究者番号：00212837
- (2) 研究分担者：なし
- (3) 連携研究者：なし