

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号：82401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23654141

研究課題名（和文） 炭素 13 核の常温超偏極

研究課題名（英文） Hyperpolarization of  $^{13}\text{C}$  at room temperature

研究代表者

上坂 友洋 (UESAKA TOMOHIRO)

独立行政法人理化学研究所・上坂スピン・アイソスピン研究室・主任研究員

研究者番号：60322020

研究成果の概要（和文）：

本研究は、常温における陽子の高偏極を生成し、それを炭素 13 の超偏極に適用することを目的としている。パラターフェニルをホスト分子とし、ペンタセンをゲスト分子とした単結晶を試料として偏極実験を行った。研究の結果、同分子中での陽子偏極緩和率が 280-300 ケルビンで極小となること、冷却窒素ガスで試料の温度を一定化しながら偏極実験を行うことにより、従来(偏極度 4.8%)に比べ 3 倍大きな陽子偏極度が達成できることを明らかにした。今後この条件で炭素 13 超偏極実験を進める。

研究成果の概要（英文）：

Production of  $^{13}\text{C}$  hyperpolarization at room temperature by transferring proton polarization to  $^{13}\text{C}$  is proposed. Protons in a crystal of *p*-terphenyl doped with pentacene was polarized at room temperature by means of a triplet-DNP method. Our research has revealed that 1) a spin-relaxation rate of protons takes minimum in the temperature region of 280-300 K, 2) when a temperature control is introduced, a proton polarization that is a factor of three higher than the previous result (4.8%) was obtained. Experiments to transfer thus-produced proton polarization to  $^{13}\text{C}$  will be continued.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,200,000	660,000	2,860,000

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：常温核偏極、光励起三重項状態、パラターフェニル

## 1. 研究開始当初の背景

生体があるがままの状態を診断する PET、X 線 CT、MRI などの手法は、生物・医療の基礎研究及び臨床診断において広く用いられている。この中で MRI は、放射線照射・投与を行わないという意味で最も生体にやさしいが、標準的な MRI では静的な形態情報のみしか

得られないという欠点も意味で最も生体にやさしいが、標準的な MRI では感度が弱いという欠点もある。MRI の持つ潜在的な能力を開花させる画期的な手法が、超偏極 (Hyperpolarization) 法である。超偏極法は、もともと素粒子・原子核物理学分野で開発さ

れた手法であり、MRI 信号の源となる原子核のスピンの偏極を通常の数百倍から数万倍に増大することができる。超偏極した原子核を含む原子・分子が持つ化学的・物理的性質は、通常物質となんら変わることはなく生体への有害性は全くない。このような超偏極物質を用いれば、MRI の信号強度を数万倍から数十万倍程度まで増大させることができ、機能MRI の実現やMRI の低磁場化を可能とする。しかしながら、常温で水素や炭素の原子核をスピン偏極を生成するのは難しく、このことが大きな制限となっていた。

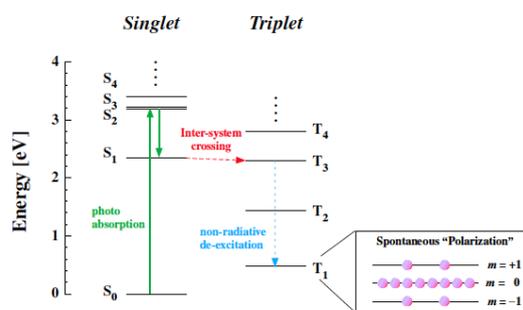
## 2. 研究の目的

本研究の目的は、MRI の持つ潜在的な能力を大きく開花させるため、常温下における炭素13 の超偏極(Hyperpolarization) 法を確立することである。我々のグループが開発してきた芳香族分子光励起三重項状態を用いた手法を利用して常温下で10%の超偏極生成を目指す

## 3. 研究の方法

我々のグループが開発した偏極生成装置は、100 ケルビン・0.1 テスラという従来ない高温・低磁場で陽子を偏極させることができる。これまで偏極試料としてはペンタセンを0.01 mol% ドープしたナフタレン(C<sub>10</sub>H<sub>8</sub>) 結晶を超偏極試料として用いてきた。ペンタセンに光照射をすると、脱励起の過程で一部スピン三重項状態が生成されるが、この三重項状態に自発的な磁気準位間の占有率差が生成される(下図参照)。m = 0, -1 の2準位に着目するとこの二状態における電子偏極は73%と極めて大きい。この電子偏極は温度にも磁場強度にもよらないため、常温・低磁場での超偏極生成の「種」となりうる。電子偏極生成後ただちに、電子スピン共鳴周波数に一致するマイクロ波を照射することにより、電子偏極を

陽子に移行し(交差偏極)、高温低磁場で陽子の超偏極を実現する。



図：ペンタセンの励起準位

本研究では、パラターフェニル中にペンタセンをドープした試料で、常温下での陽子の高偏極を生成し、これを炭素13 原子核に移行する。パラターフェニルは、ナフタレンに比べ常温下でのスピン緩和率が低く、常温超偏極生成には適した試料である。

## 4. 研究成果

常温では偏極緩和時間が数分以下と短いため、十分な強度を持つ励起光を照射することが高い偏極度を生成するために必要である。そのため、まずペンタセン分子の励起に用いるレーザー光のパルス構造と強度の最適化を行った。パルスのデューティー比を5-50%の範囲で、繰り返し周波数を0.75-10 kHzの範囲で変化させ、偏極率の計測を行った。その結果高いデューティー比での偏極率が我々の理論予想に比べ大きく減少しているという結果を得た。この傾向はレーザー光の強度が大きい場合より顕著であった。その他の測定結果とも比較した結果、レーザー光照射による試料の温度上昇が偏極緩和率を大きくさせていることが偏極率減少の原因と結論づけた。

そこで、冷却窒素ガスによる試料冷却機構を導入し、まず基礎的なデータとして、300-360ケルビンでの陽子偏極緩和率を測定し

た。これまで偏極緩和率は常温以下の温度でしか測定例がなく、200–300ケルビンの間で温度とともに単調減少することが知られていた。今回測定した新しいデータにより、280–330ケルビン付近で偏極緩和率はほぼ一定の極小値を取り、340ケルビンを越えたところから急激に上昇することが明らかとなった。そこで、パラターフェニルにペンタセンを0.05%ドープした試料を冷却窒素ガスで280ケルビン程度に保持して陽子偏極生成したところ、レーザー光の平均照射パワーが1.2 Wの時に冷却機構導入前に比べて7倍の偏極生成率が達成できることが明らかになった(下図参照)。最終到達偏極度としては、以前の測定(陽子偏極度4.8%)に比べて3倍程度の増倍が得られた。(S. Sakaguchi, T. Uesaka et al., Nucl. Instrum. Methods B 出版予定)

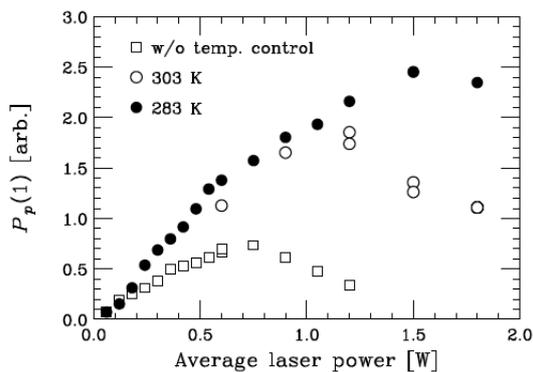


図: 陽子偏極率のレーザーパワー依存性  
白四角が温度コントロール無しで、  
黒丸・白丸が各々283K・303Kに  
温度制御した場合の偏極率。

更に、光照射後の三重項状態の電子偏極度消失機構についても基礎的なデータを収集した。三重項状態の電子偏極度は、偏極緩和と基底状態への脱励起の二つのプロセスにより消失する。我々の得た結果は、三重項状態の電子偏極度が主として基底状態への脱励起により消失するというものであった。この結果

は、偏極緩和が主要プロセスとなっている100ケルビンでの実験結果とは大きく異なっている。これは、熱励起により基底状態の振動バンドが励起され、三重項状態と結合し易くなるためと考えられる。

陽子偏極度の大幅な増大が確認されたので、これを用いて炭素13への偏極移行実験に入ったが、その直後、偏極移行に用いるマイクロ波増幅器の故障が生じ、実験を中断せざるを得なくなった。

本研究により、常温における陽子偏極の基本的な研究は大きく進み、その結果を受けて以前の3倍から10倍の陽子偏極度を得られることが分かったのは大きな成果である。装置故障のため炭素13核の超偏極生成には至らなかったが、装置修理完了後超偏極生成実験に再挑戦すれば、大きな炭素13核偏極が観測されると予想される。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

1. S. Sakaguchi, T. Uesaka et al., “Shallow and diffuse spin-orbit potential for proton elastic scattering from neutron-rich helium isotopes at 71 MeV/nucleon”, *Physical Review C* 87 (2013) 021601(R). 査読有

2. S. Sakaguchi, T. Uesaka et al., “Proton polarization in photo-excited aromatic molecule at room temperature enhanced by intense optical source and temperature control”, *Nuclear Instruments and Methods for Physics Research B*, *in print*. (2013) 査読有

3. A. Obertelli and T. Uesaka, “Hydrogen targets for exotic-nuclei studies developed over the past 10 years”, *European Physics Journal A* 47 (2011) 105–126. 査読有

[学会発表] (計 5 件)

1. 上坂友洋, “Polarization experiments at RIBF”, The 36th Symposium on Nuclear Physics, Cocoyoc, Mexico, 7-10, January 2013.

2. 坂口聡志, “Proton polarization in photo-excited aromatic molecule at room temperature”, 16th International Conference on Electromagnetic Isotopes Separator and Techniques related to their Applications, Matsue, Japan, 2 - 7, December 2012.

3. 上坂友洋, “Polarized targets for RI-beam experiments”, RISP Workshop, Sejeong, Korea, 16-18, July 2012.

4. 渋谷杏奈, 上坂友洋他、「常温における p-ターフェニル中の陽子偏極」、2012 年日本物理学会春季大会、関西学院大学, 2012 年 3 月 25 日

5. 上坂友洋, “Reaction studies of exotic nuclei with Polarized target and spectrometer”, The 1st KoRIA symposium, Daejeon, Korea, 1-2, December 2011.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

<http://www.nishina.riken.jp/labo/uesaka.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上坂 友洋 (UESAKA TOMOHIRO)

独立行政法人理化学研究所・上坂スピン・アイソスピン研究室・主任研究員

研究者番号：60322020

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

坂口 聡志 (SAKAGUCHI SATOSHI)

国立大学法人九州大学理学府物理学科・助教

研究者番号：705695666