# Solid polarized target

広島大学大学院先進理工系科学研究科

飯沼昌隆

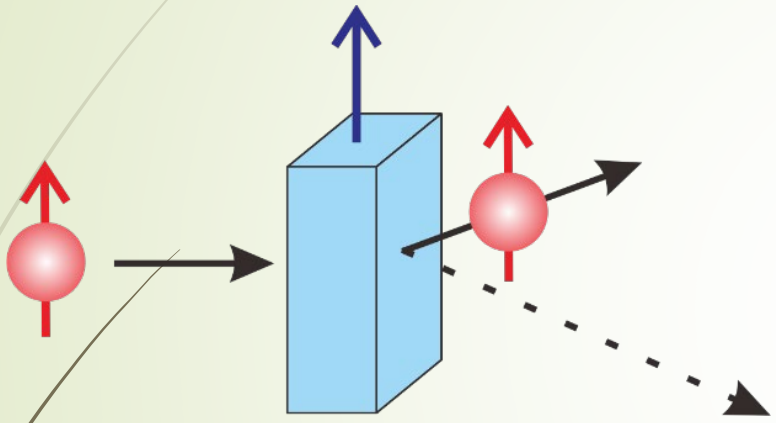
# 内容

- 固体偏極標的概観
- La核偏極
- La核偏極標的実現に向けて
  ー任意の核種の偏極標的実現への第一歩ー

# 偏極固体標的の概観

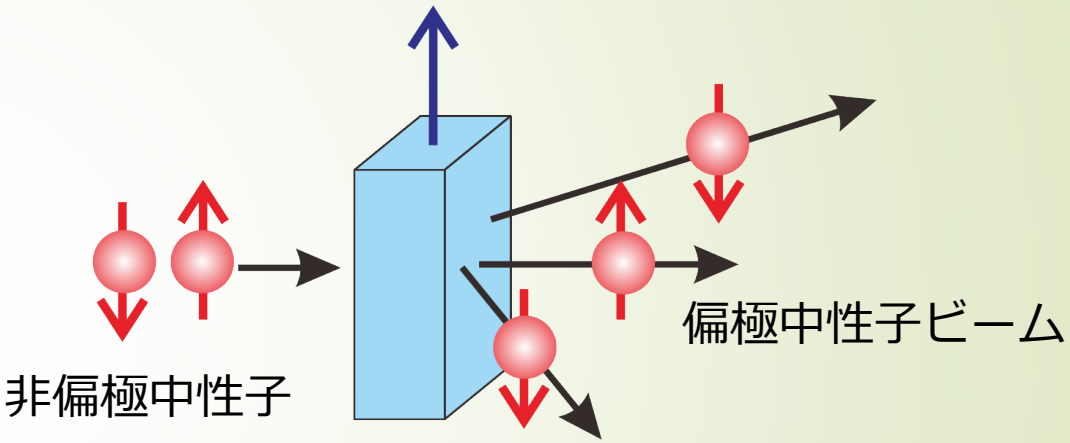
# 核偏極標的の応用

## スピン相関測定



- 基本的対称性の破れの検証
- スピンをプローブとした構造解析
  核子内構造
  原子核構造

## 偏極・解析デバイス



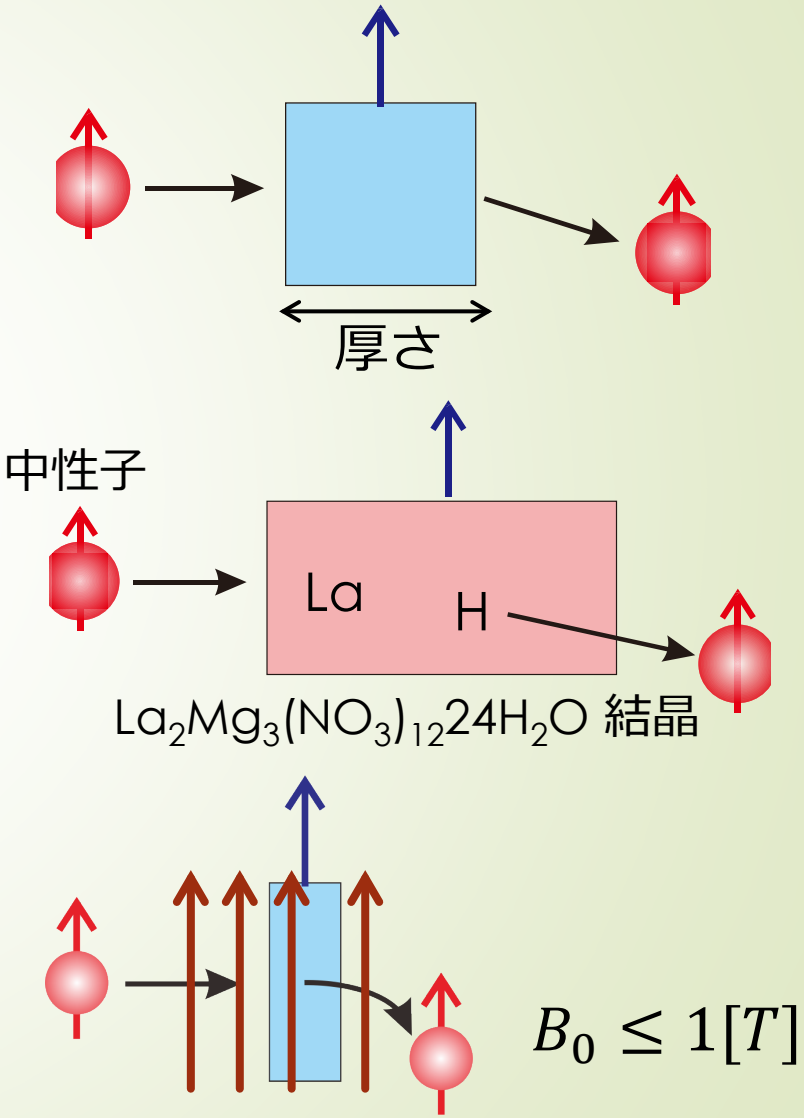

- 偏極中性子ビーム生成
- 偏極中性子解析

# 核偏極標的としての条件

- 高偏極（数10%以上）の達成

- 標的物質の条件
  - ビーム実験に適した厚み、サイズ
  - 高密度、ビーム実験に適した物質

- 低磁場（$B_0 \leq 1[T]$）環境
  - 高温（$T \geq 77[K]$）が望ましい
    (radiation damageによる緩和抑制)



# Dynamic Nuclear Polarization

PHYSICAL REVIEW LETTERS

VOLUME 2 JUNE 1, 1959

## DYNAMIC NUCLEAR POLARIZATION

M. Abraham,* M. A. H. McCausland, and F. N. H. Robinson†
The Clarendon Laboratory, Oxford, England
(Received April 13, 1959; revised manuscript received May 8, 1959)

Saturation of the microwave electron paramagnetic resonance of impurities in various materials produces enhanced and reversed nuclear polarization throughout the material, an effect discovered by Erb, Motchane, and Übersfeld[1] and Abragam and Proctor.[2]

Figure 1 shows the levels in a magnetic field of a single electron spin loosely coupled to a nucleus of spin $\frac{1}{2}$. Full arrows denote the allowed transitions, presumably also the fastest relaxation processes. Saturation of the partially forbidden line $A$ at a frequency $\nu_e$-$\nu_n$ leads to the population distribution shown in column $A$ on the right of the figure. The resulting ratio of the populations of nuclear substates with $m_I$ positive to those with it negative is

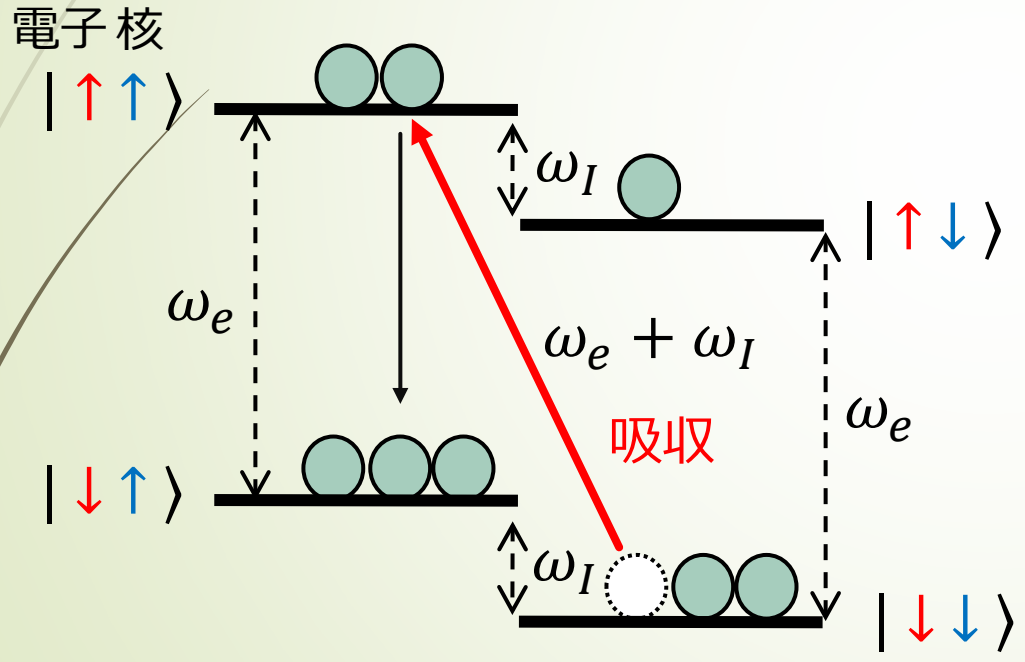
| | Material | | Nucleus | Enhancement |
|---|---|---|---|---|
| | $Ce_2Mg_3(NO_3)_6 \cdot 24H_2O$ | $Ce^{+++}$ | $H^1$ | 25:1 |
| LMN | $La_2Mg_3(NO_3)_6 \cdot 24H_2O$ | 5% $Ce^{+++}$ impurity | $H^1$ | 60:1 |
| $Al_2O_3$ | Synthetic sapphire | 0.1% $Cr^{+++}$ impurity | $Al^{27}$ | 5:1 |
| | $K_3Co(CN)_6$ | 2.5% ferric impurity | $Co^{59}$ | 2:1 |
| | Polytetrafluorethylene | Centers due to electron bombardment | $F^{19}$ | 38:1 |
| | $CaF_2$ | 0.01% $Ce^{+++}$ impurity | $F^{19}$ | 2:1 |
| | LiF | $F$ centers due to x-rays | $Li^7F^{19}$ | 17:1 |
| | LiF | $F$ centers, 36 kMc/sec | $Li^7$ | 58:1 |

1959年
陽子偏極標的(LMN)研究の幕開け

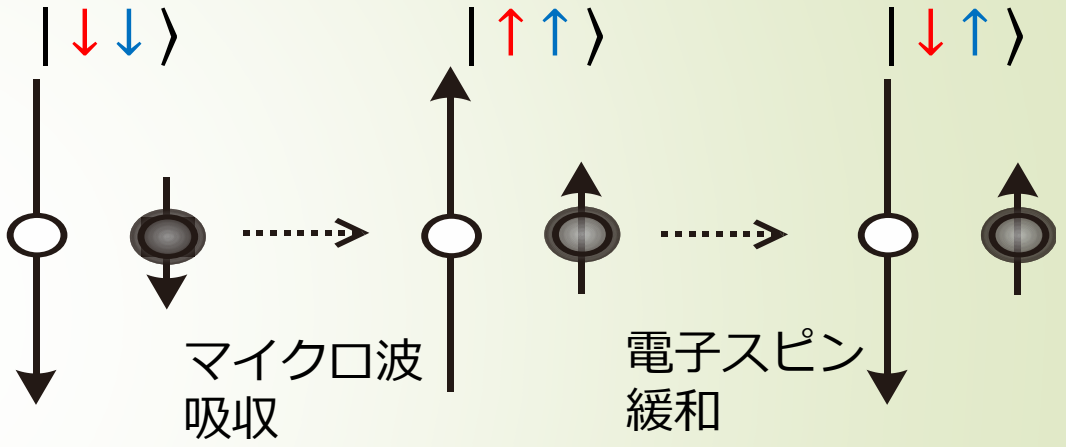
# 固体効果（Solid Effect）

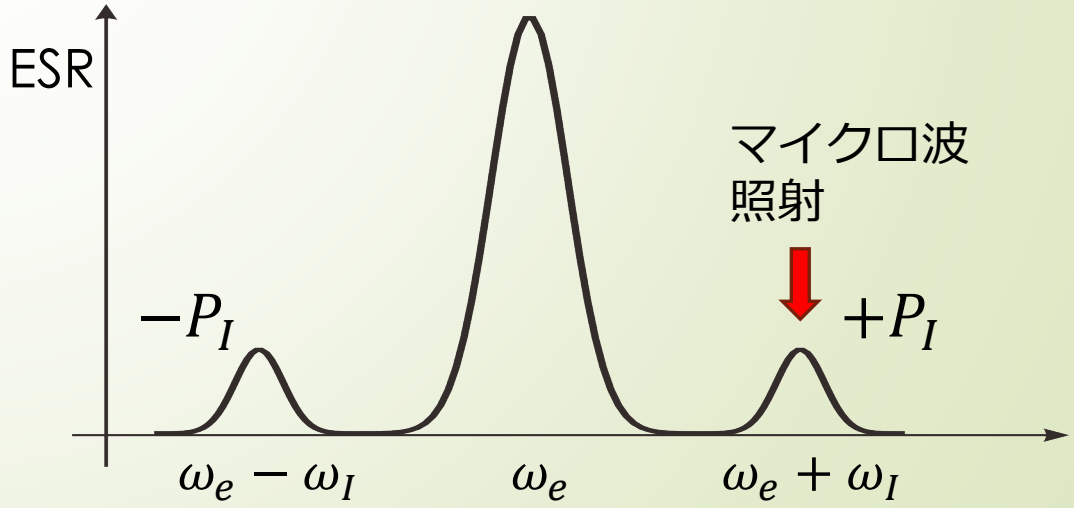
電子の偏極（常磁性イオン） → 核スピン　同時フリップによる偏極移行

例）核スピン $I = 1/2$




マイクロ波（ $\omega_e + \omega_I$ ）照射



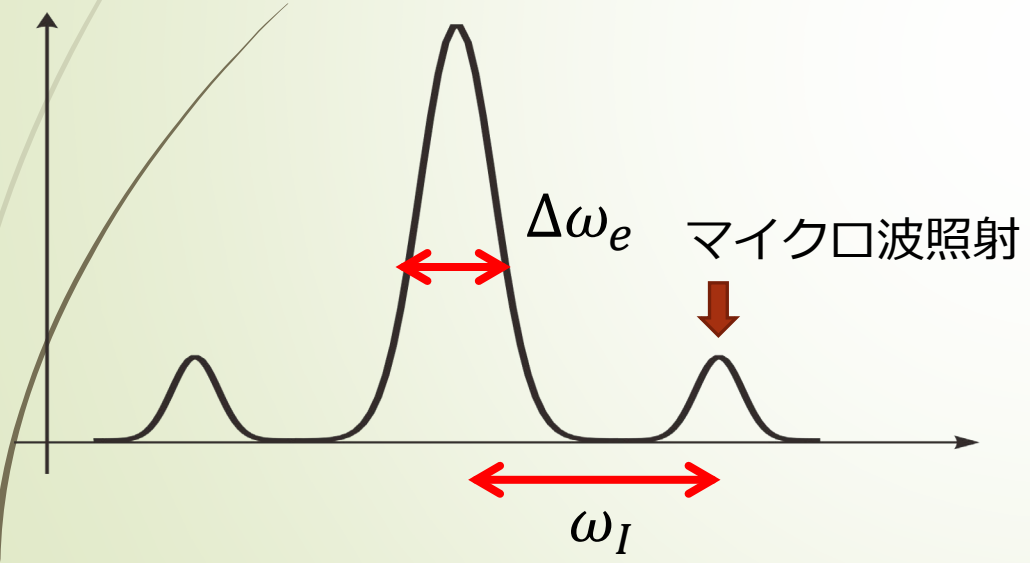
# 固体効果の条件

典型的な条件：　$B_0 \sim 2.3[T]$　$T \sim 0.5[K]$

**電子の高偏極**　$P_e = 99.6[\%]$

**Well-resolvedな状態**

$\Delta\omega_e \ll \omega_I$

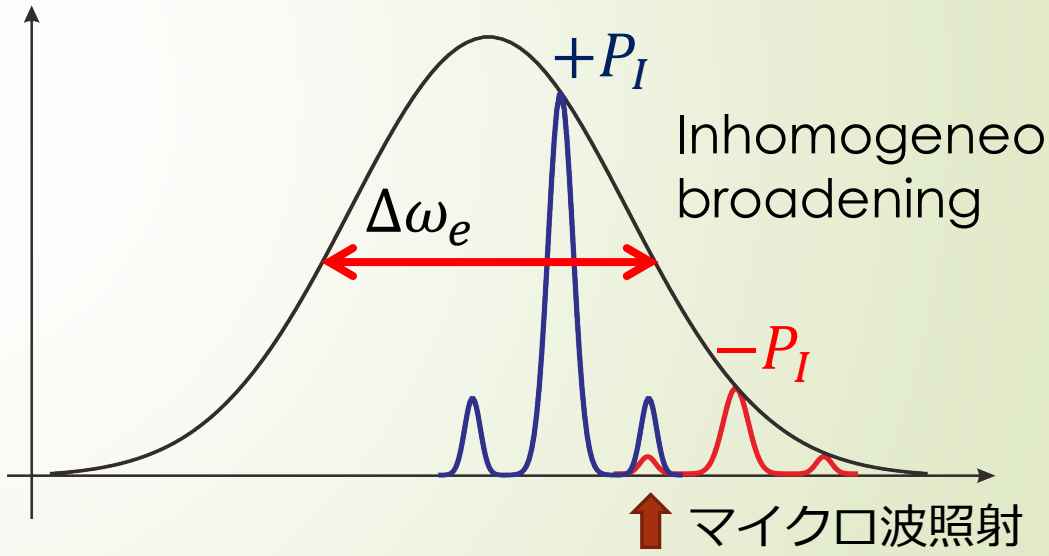



核ゼーマン

Well-resolved Solid Effect

**高温・低磁場環境**

$\Delta\omega_e \gg \omega_I$




$$P_I \propto h(\omega + \omega_I) - h(\omega - \omega_I) \approx 2\omega_I \left(\frac{dh}{d\omega}\right)$$

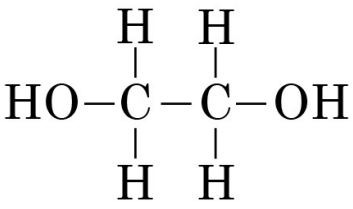
微分固体効果（Differential Solid Effect ）

# 核偏極標的物質（DNP）

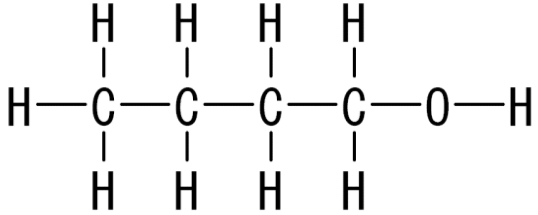
DNPの実績：陽子と重陽子標的のみ　P(p)>90%、p(d)>50%　物質に依存

## Chemically-doped Glassy materials

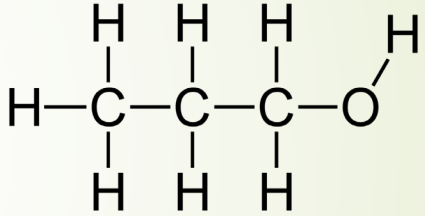
常磁性イオン : Cr(V) 錯体



エチレングリコール



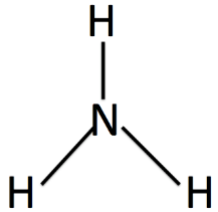
ブタノール



プロパノール

## Irradiated materials

常磁性イオン: 放射線照射によるラジカル



アンモニア

Li–H

水素化リチウム

Li–D

重水素化リチウム

# スピン凍結標的

DNPの種：常磁性イオン（ラジカル）

核スピン緩和の主原因：電子スピン緩和

A. Abragam and M. Goldman,
Nuclear Magnetism: order and disorder

熱平衡状態の電子の偏極度

$$\frac{1}{T_{1n}} \cong \frac{8\pi}{5}\frac{S(S+1)}{3} C \left(\frac{\gamma_S}{\gamma_I}\right)\left(\frac{\Delta H_n}{H_0}\right)^2 \left(\frac{1}{T_{1e}}\right)(1-P_0^2)$$

核スピン緩和時間　　不純物濃度　　電子緩和時間

電子の偏極度$P_0 \to 1$、核スピンと電子スピンとのデカップリング

磁場0.8[T]の場合

温度0.5K　　$P_0 = 0.790$

温度0.1K　　$P_0 = 0.999956$ ← スピン凍結

ビームライン上での標的用希釈冷凍機の温度　0.07 K～0.1 K

# 偏極 $^{60}$Coの実験

1957年：パリティ非保存の発見

*Physical Review* **105**, 1413, 1957

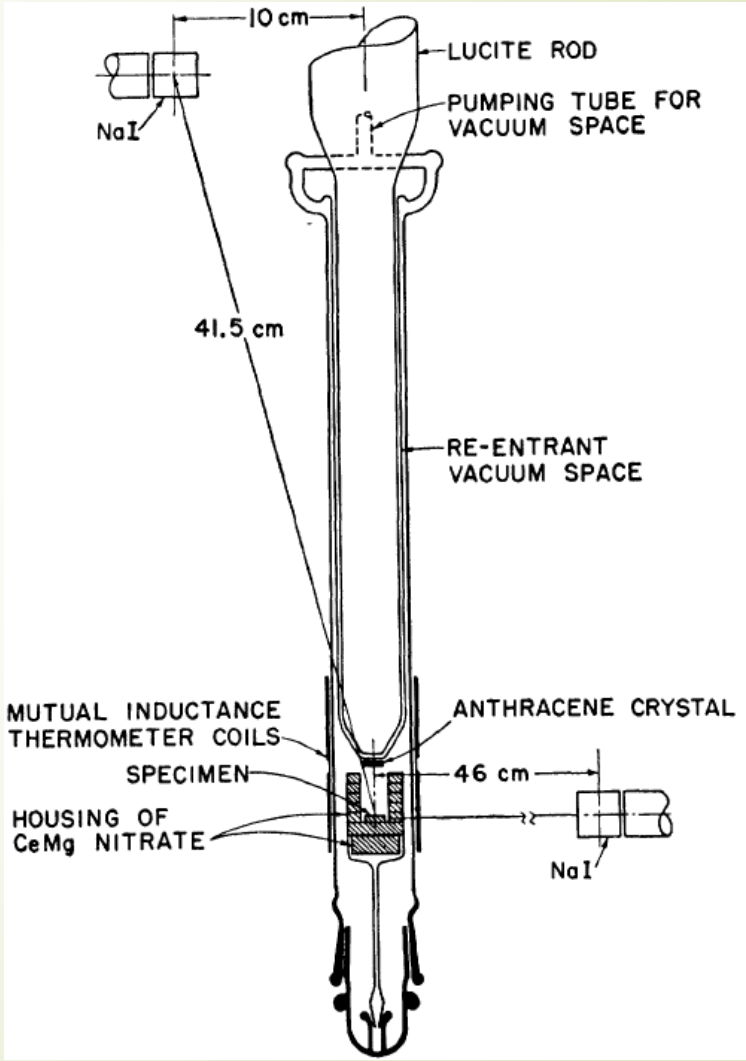
**Experimental Test of Parity Conservation in Beta Decay***

C. S. Wu, *Columbia University, New York, New York*

AND

E. Ambler, R. W. Hayward, D. D. Hoppes, and R. P. Hudson,
*National Bureau of Standards, Washington, D. C.*

(Received January 15, 1957)




偏極Co：Rose-Gorter 法

広い意味でのBruteForce法

$3[0.5\%Co, 99.5\%Mg(NO_3)_2].2Ce(NO_3)_3.24H_2O$

断熱消磁による冷却　⇒　低磁場での偏極保持

# BruteForce法

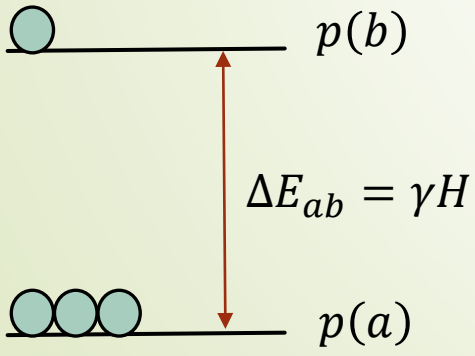
冷凍機技術・高磁場生成技術の進展

↳ 高磁場・極低温でのボルツマン分布の利用が可能

例）$B_0 = 17[T], T = 0.01[K]$の場合　　$P_{proton} = 94[\%]$

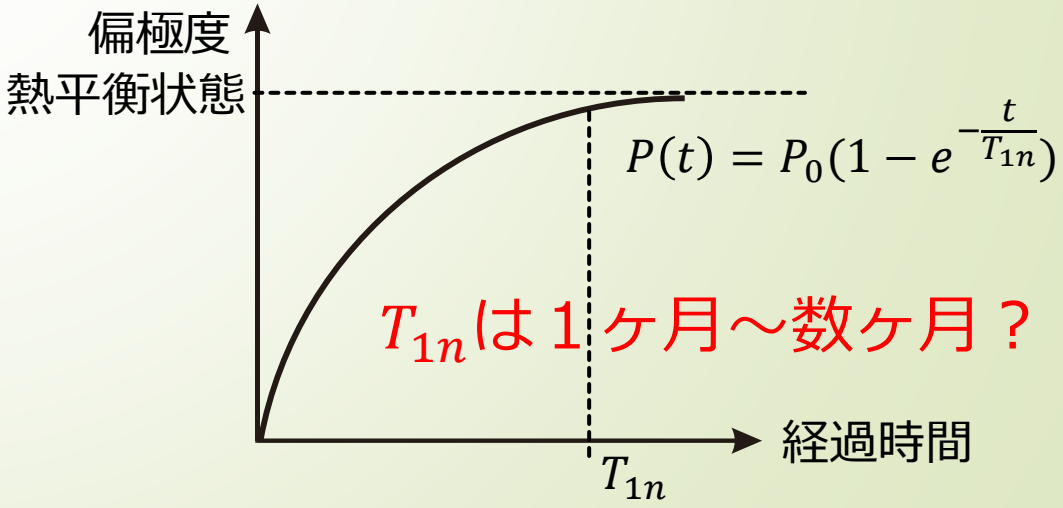
有利な点
- 核種・物質に依存しない
- 大きなサイズにも適用（冷凍機の能力に依存）

不利な点
- 高偏極のためには、極端環境が必要
- 熱平衡状態までの緩和時間（$T_{1n}$）が極端に長い




温度：$T$
磁場：$H$

$$P = \tanh\left(-\frac{\gamma H}{2kT}\right)$$

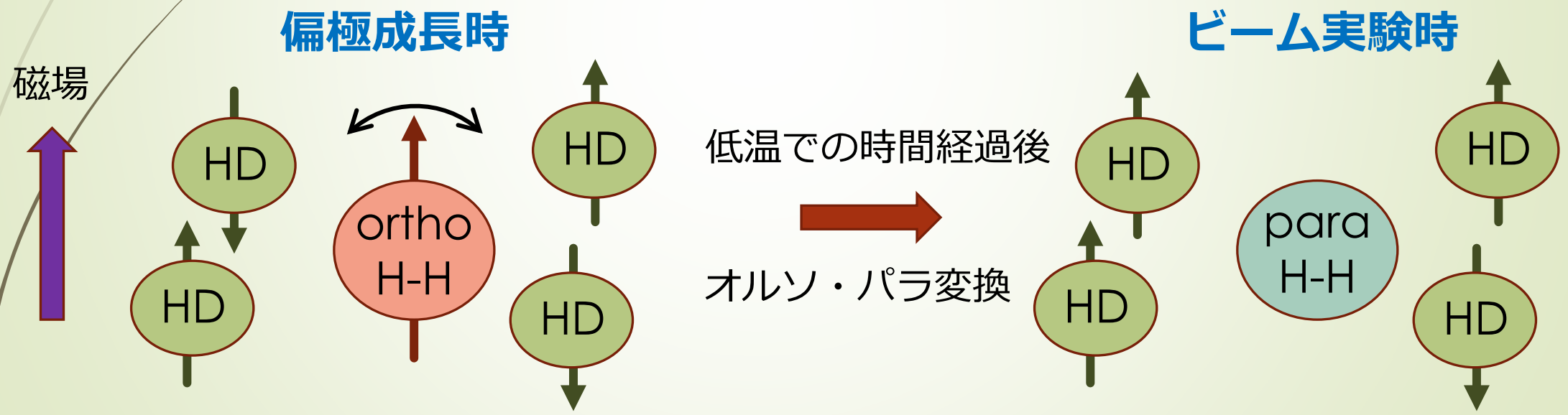


# HD標的

Hardy, Gaines, and Honigらによる提案

- Bruteforce法による陽子偏極標的
- 緩和時間“スイッチ”による実現

W. N. Hardy and J. R. Gaines, Phys. Rev. Lett. 17, 1278, (1966)
A. Honig, Phys. Rev. Lett. 19, 1009, (1967)
Kohri, *et al*, *Inter. Jour. of Mod. Phys.* E19, 903, (2010)




オルソ水素スピン（S=1）の揺動による
短い緩和時間（2～3時間）

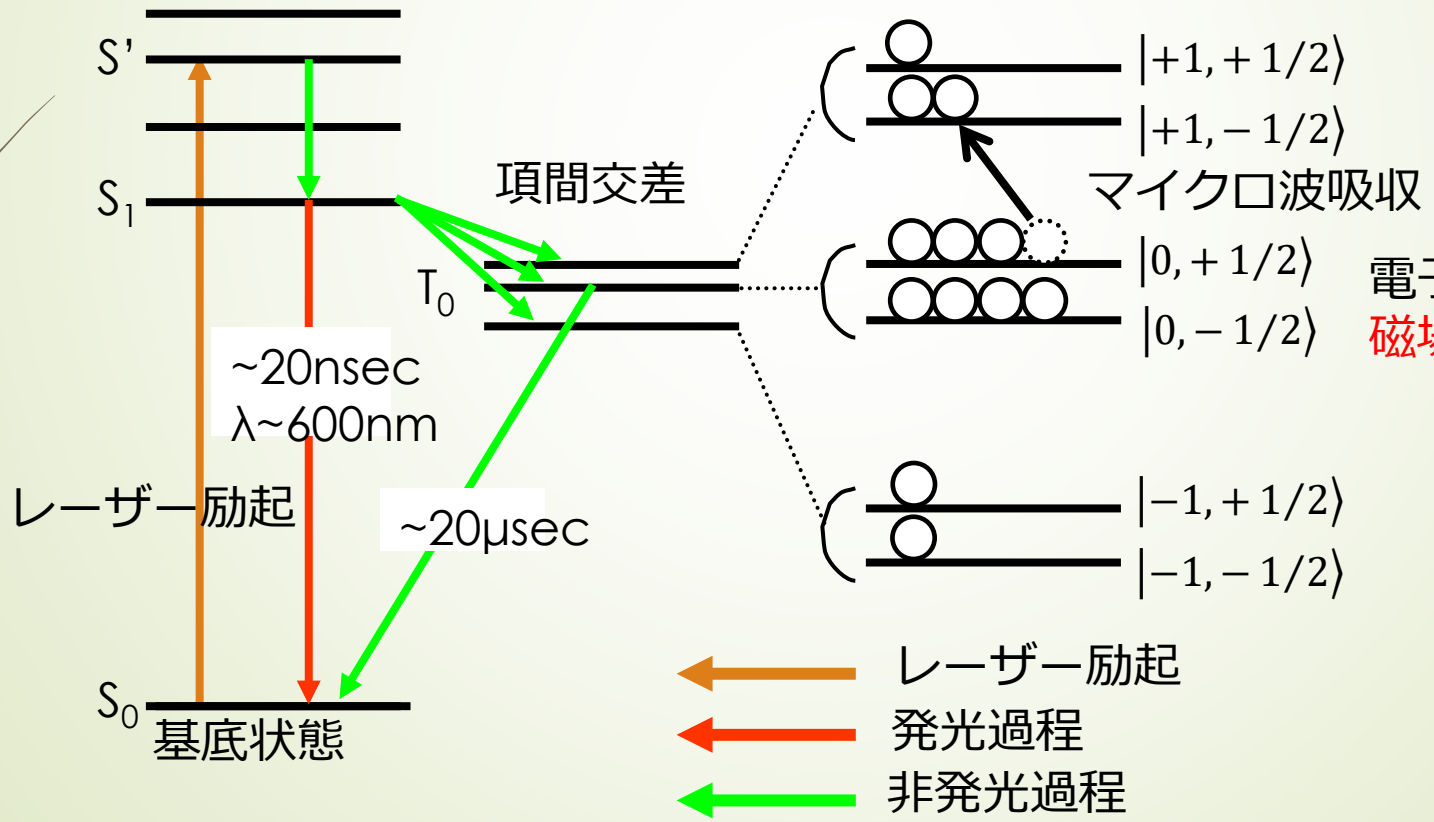
パラ水素がスピン０のため、
緩和時間が長くなる（数か月）

# Triplet DNP

高温（$\geq 77[K]$）、低磁場（$\sim 0.3[T]$）でのDNPを実現

**光励起三重項状態（電子の偏極）＋積分固体効果**

ペンタセン分子のエネルギーレベル

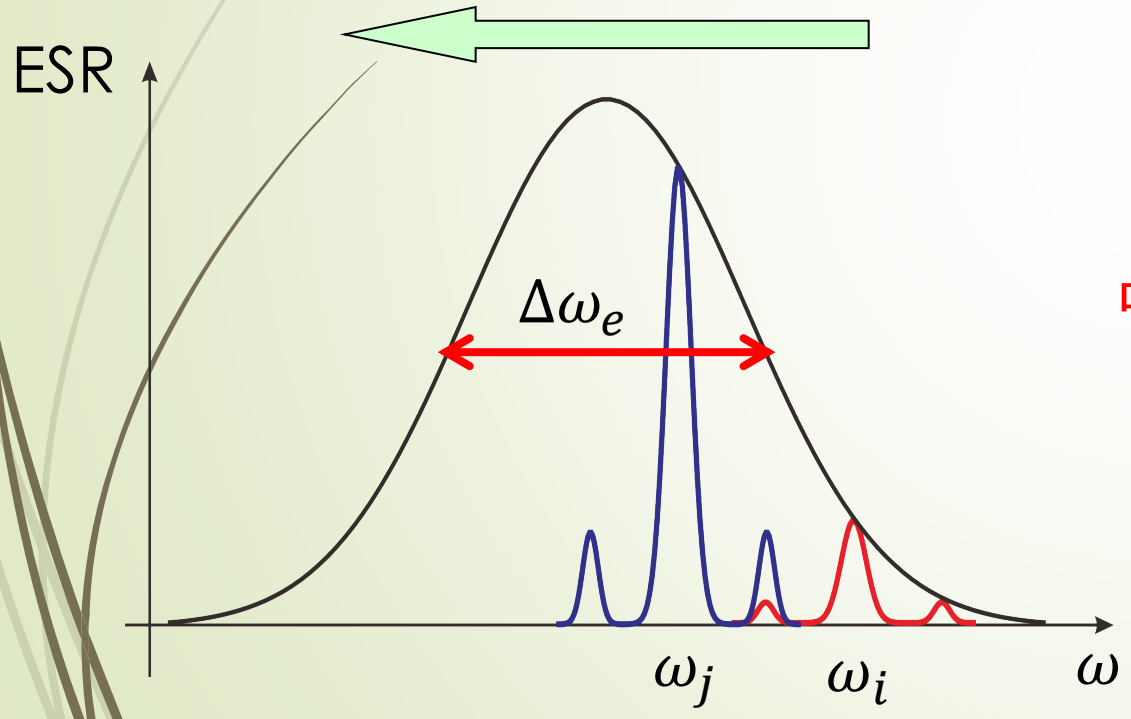


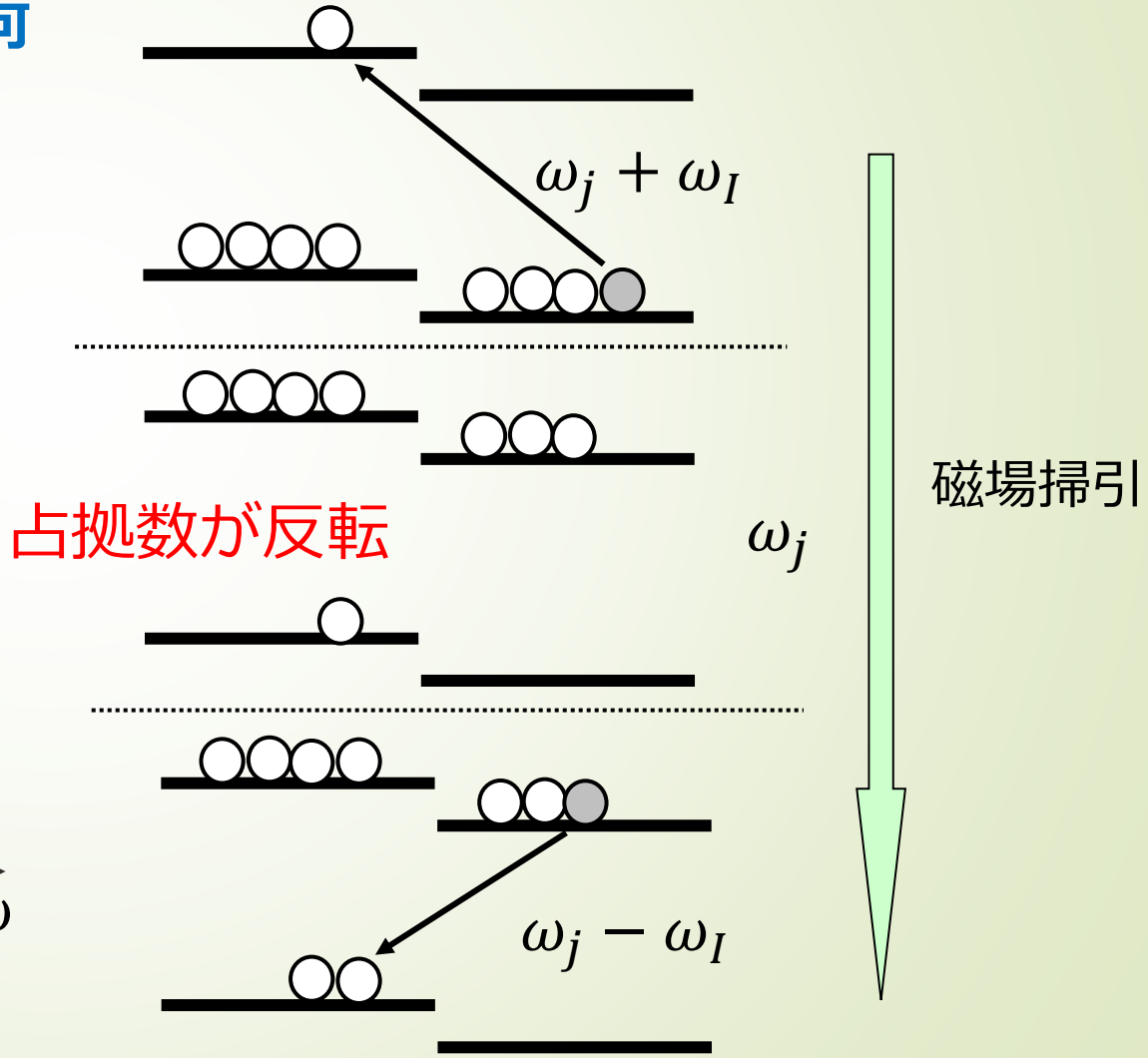

電子スピンの占拠数差：
磁場の強さ・温度に依存しない

# 積分固体効果（Integrated Solid Effect）

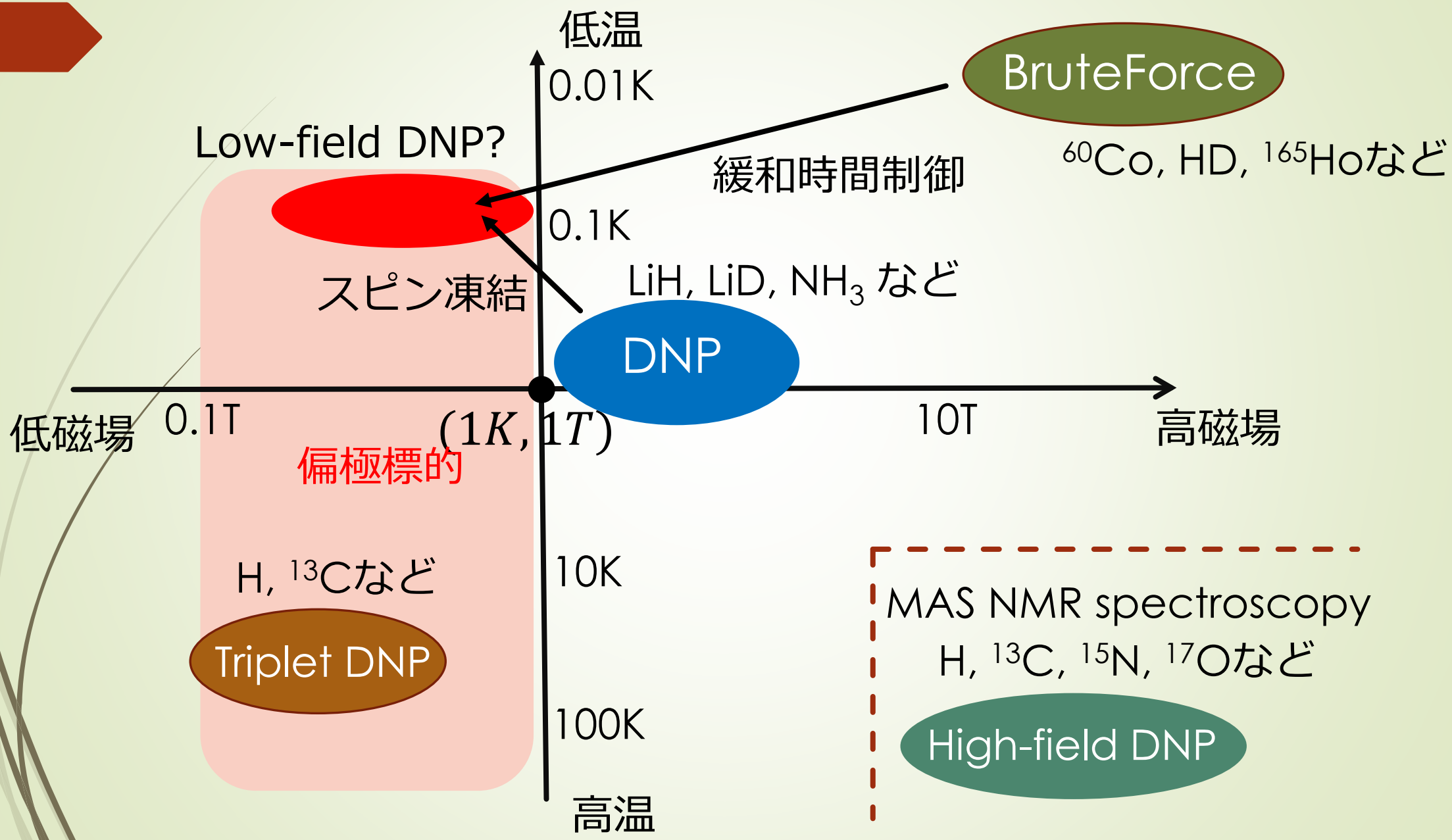
## 磁場掃引によるコヒーレント操作

**高温・低磁場**（$\Delta\omega_e \gg \omega_I$）**適用可**



# 核偏極法の比較（偏極標的）



# 低磁場への挑戦

**次世代の核偏極標的？**

- Triplet DNP
  - 高温（常温～77[K]）、低磁場（～0.3[T]）での高偏極
  - 光励起三重項状態・積分固体効果
  - 中性子の偏極フィルターして期待
  - Radiation damageに強い
  - 偏極標的以外への応用可能性

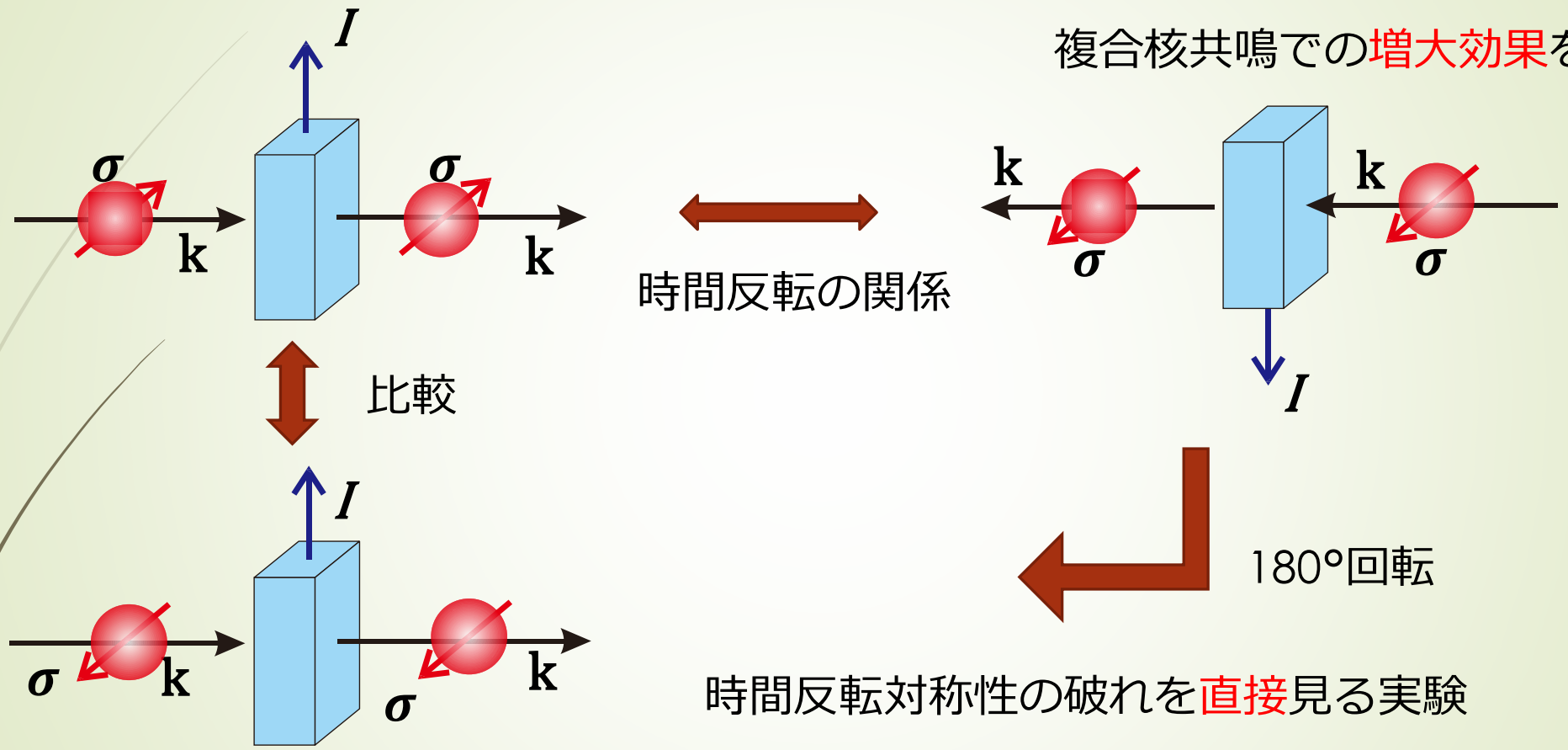
大型冷凍機を使わない偏極標的への第一歩

- ペロブスカイト結晶の対称性を利用した核偏極
  - La核（大きな四重極モーメント）偏極標的
  - DNPによる高偏極の実績
  - Low-field DNPの可能性？
  - BruteForce+緩和時間制御の可能性？

任意の核種での偏極標的への第一歩

# La核偏極

# 複合核共鳴を利用した時間反転対称性の破れ




時間反転対称性の破れを直接見る実験

増大が期待される核種：$^{139}$La, $^{131}$Xe, $^{81}$Br, $^{117}$Sn, $^{115}$In, etc…

Laでは$10^6$程度の増大が期待

T. Okudaira, et. al., Phys. Rev. C 97, 034622 (2018)
T. Yamamoto, et. al., Phys. Rev. C 101, 064624 (2020)

# La原子核

原子番号 Z = 57　　質量数 A=139

核スピン：$I = 7/2$
双極子モーメント
　$\mu = 2.783\mu_B$　（陽子：$\mu = 2.793\mu_B$）
四重極モーメント
　$Q = 0.20$ [barn]（重陽子：$Q = 0.00286$ [barn]）

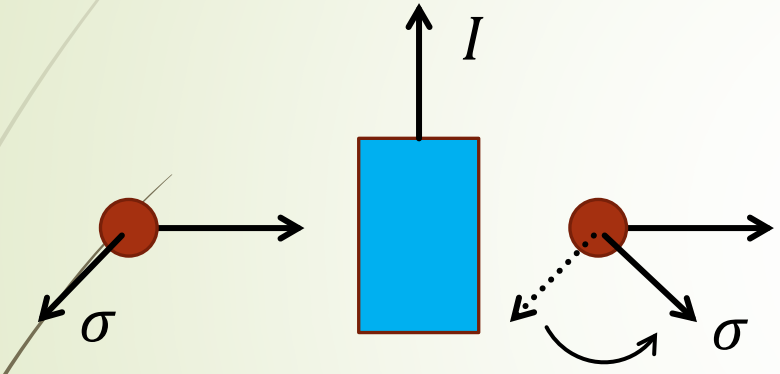
$I = 1/2$ or $I = 1$以外の核スピン
（重陽子と比べて）二桁大きい四重極モーメント

任意の原子核の偏極標的開発への第一歩

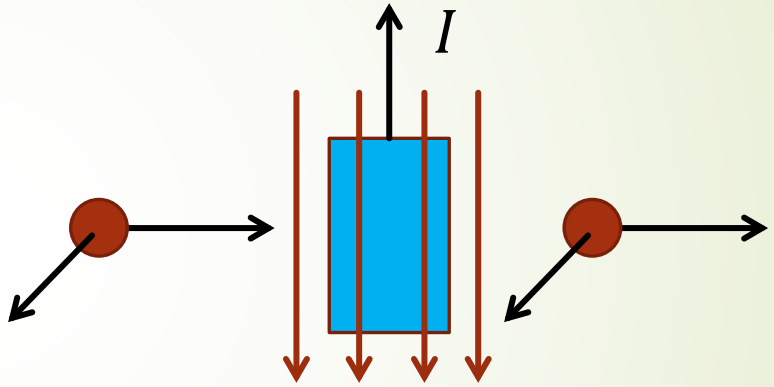
# T-violation実験用標的としての条件

高偏極した核スピン（擬磁場）　⇒　中性子スピンの回転

**擬磁場による回転**




**磁場印加でキャンセル**




$LaAlO_3$の擬磁場：100%La核偏極 $H' = 0.2$ [T]

V. Gudkov and H. M. Shimizu, Phys. Rev. C **95** 045501, 2017

50%La偏極標的に印加する磁場～0.1 [T]

DNPでの磁場：2.3T

BF　での磁場：17T

偏極達成後、磁場を下げる

0.1K、0.1Tの緩和時間が重要

# $Nd^{3+}$:$LaAlO_3$結晶の利用

ペロブスカイト構造（Perovskite)の対称性の利用

利点 (Y. Takahashi, et. al., NIM A 336, 583 (1993) )

- 狭いESR幅 ： ~ 6G
- すべてのLa(or Nd)のサイトが磁気的等価
- 四重極結合が$C_3$ 軸（結晶軸）で対角化

g因子 of $Nd^{3+}$ : $g_{//} = 2.12 \quad g_{\perp} = 2.68$

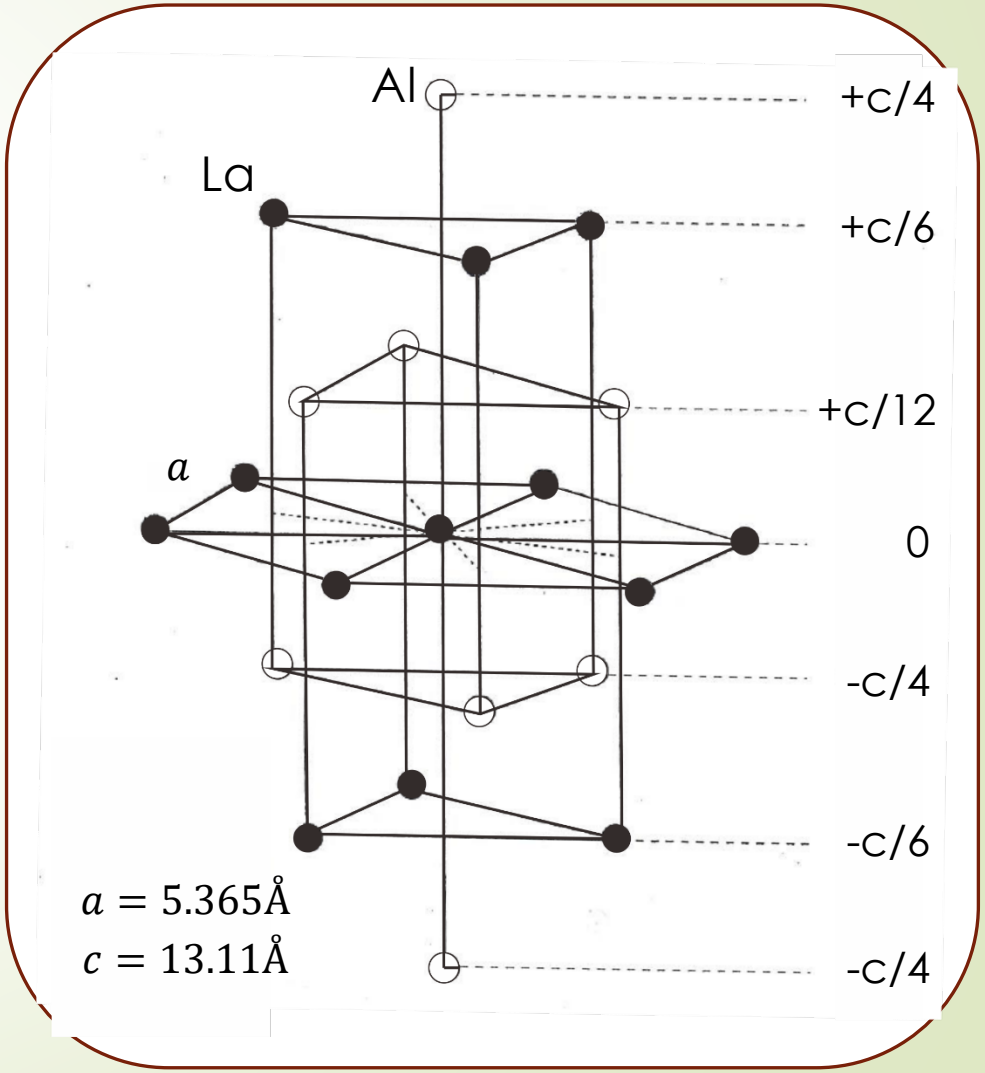
スピンハミルトニアン

$$H = -\hbar\gamma_N \vec{I} \cdot \vec{H} + \hbar D_{zz}(I_z^2 - I(I+1)/3)$$

$\gamma_N$ : 磁気回転比 ( $\gamma_N/2\pi = 0.6$ kHz/G)

$I$ : La核スピン （ I = 7/2 )

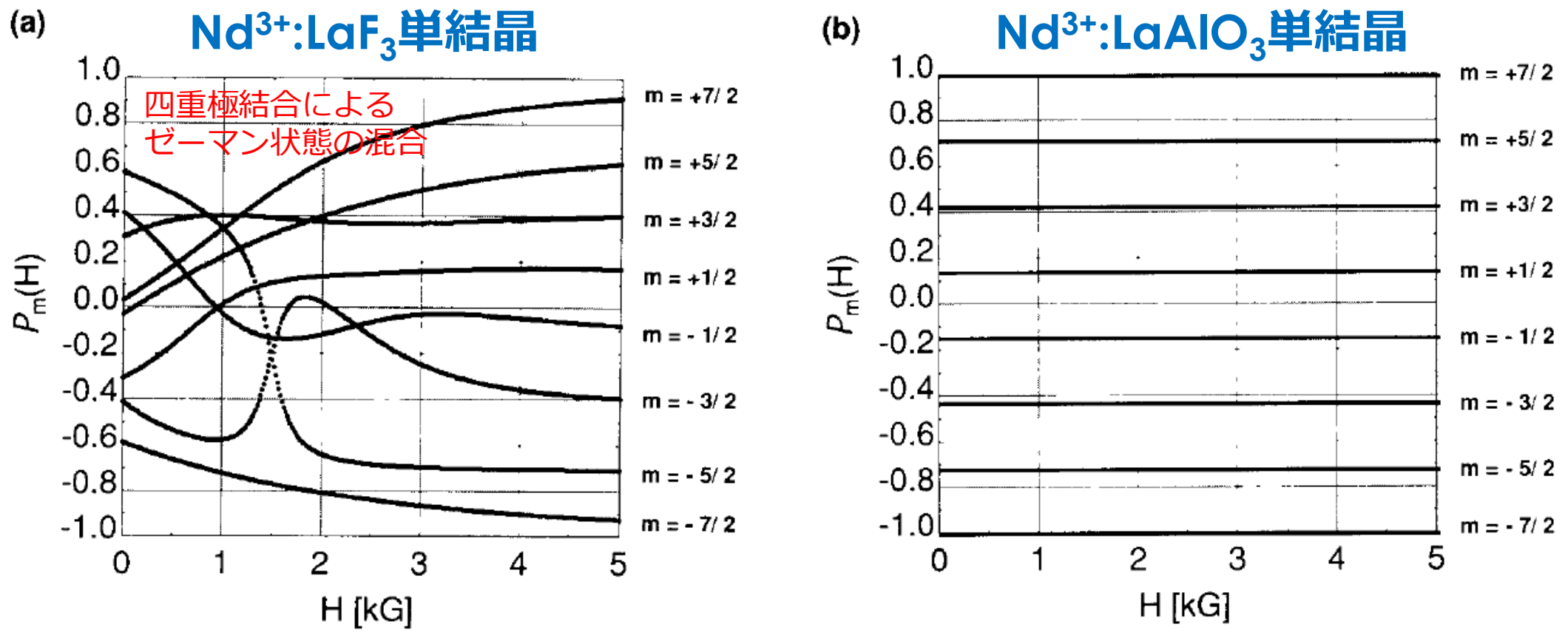
$D_{zz}$: 四重極結合定数 ( $D_{zz}/2\pi = 0.36$ MHz )



# 低磁場での特性

ゼーマンサブレベル$\psi_m$での偏極度：$P_m(H) \equiv \langle \psi_m | I_Z | \psi_m \rangle / I$

磁場方向：$C_3$軸（結晶軸）




低磁場で偏極保持が困難

低磁場で偏極保持が可能

# これまでの経緯

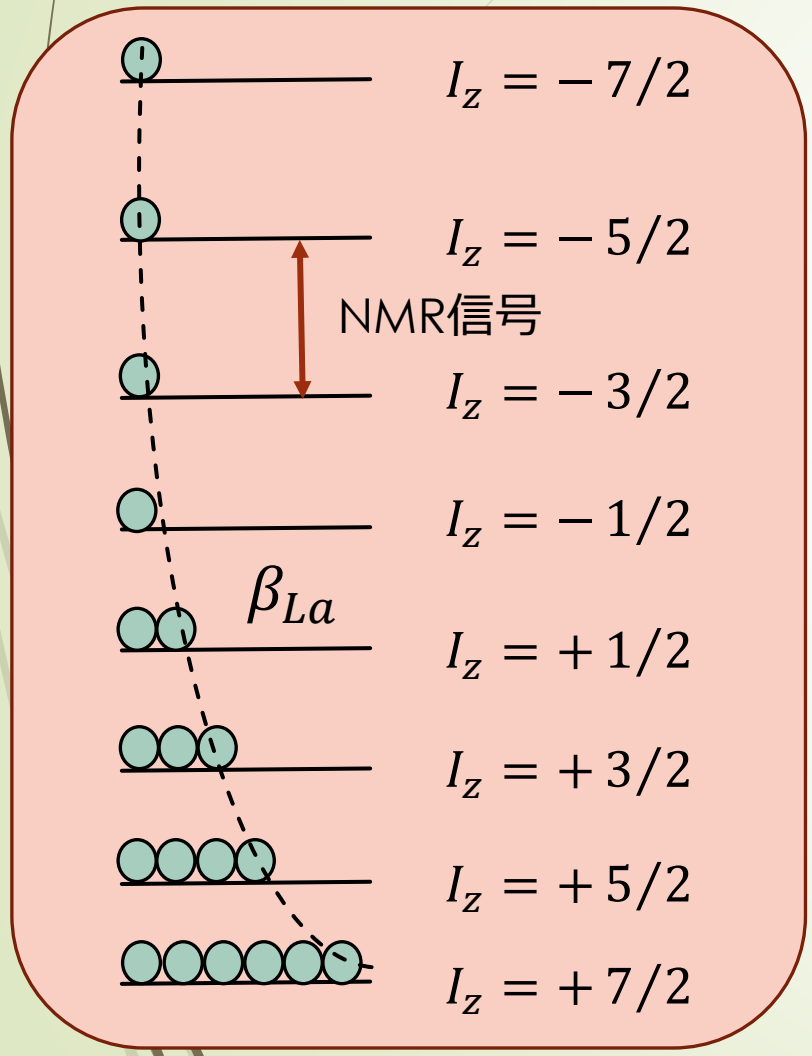
1993: $Nd^{3+}$:$LaAlO_3$結晶の提案
ESR測定と低磁場下での特性
( Y. Takahashi, H. M. Shimizu, T. Yabuzaki, NIM A 336, 583 (1993) )

1995: 最初の偏極実験（京都大学）
$B_0 = 2.3[T]$ $T = 1.3[K]$
-> 偏極度：20％ （大きな四重極を持つ核の最初の高偏極）
-> DNPメカニズム：電子スピン・スピン熱浴（thermal mixing）
( T. Maekawa, Y. Takahashi, H. M. Shimizu, M. Iinuma, A. Masaike, and T. Yabuzaki, NIM A 366, 115 (1995) )

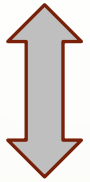
2000: Paul Scherrer Institut( PSI )での実験
$B_0 = 2.3[T]$ $T < 0.3[K]$
偏極度: 50% ( latest results )
( P.Hautle and M. Iinuma, NIM A 440, 638 (2000) )

# 偏極増大メカニズム

La核スピンゼーマン系



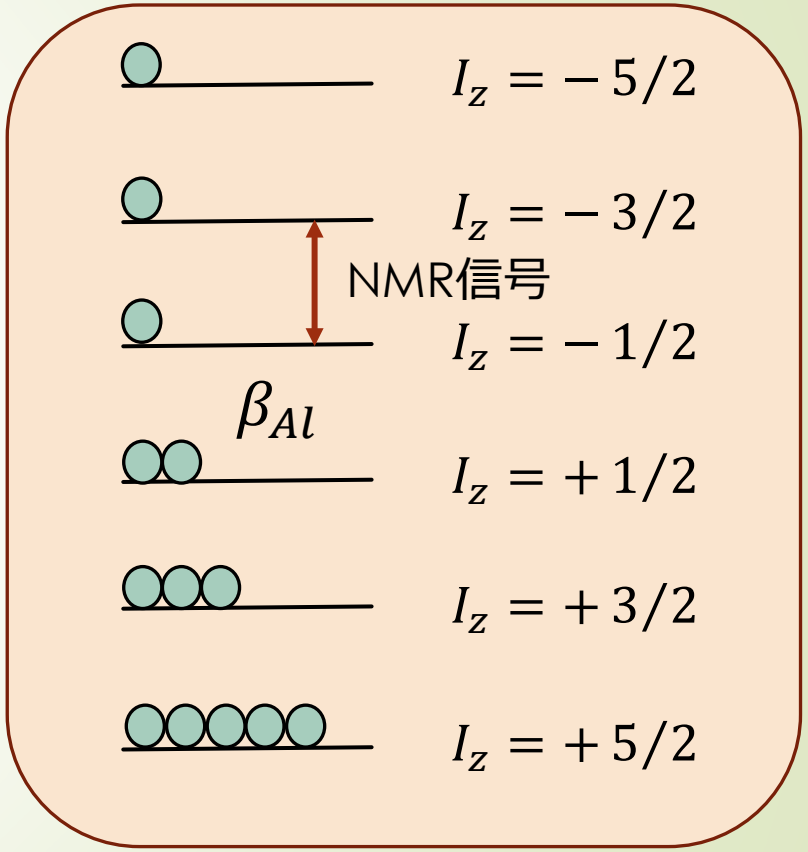

電子スピン・スピン熱浴
（スピン・スピン相互作用）



マイクロ波照射
$\beta_{SS} = \beta_{Ze}$

電子スピンゼーマン系
$\beta_{Ze}$

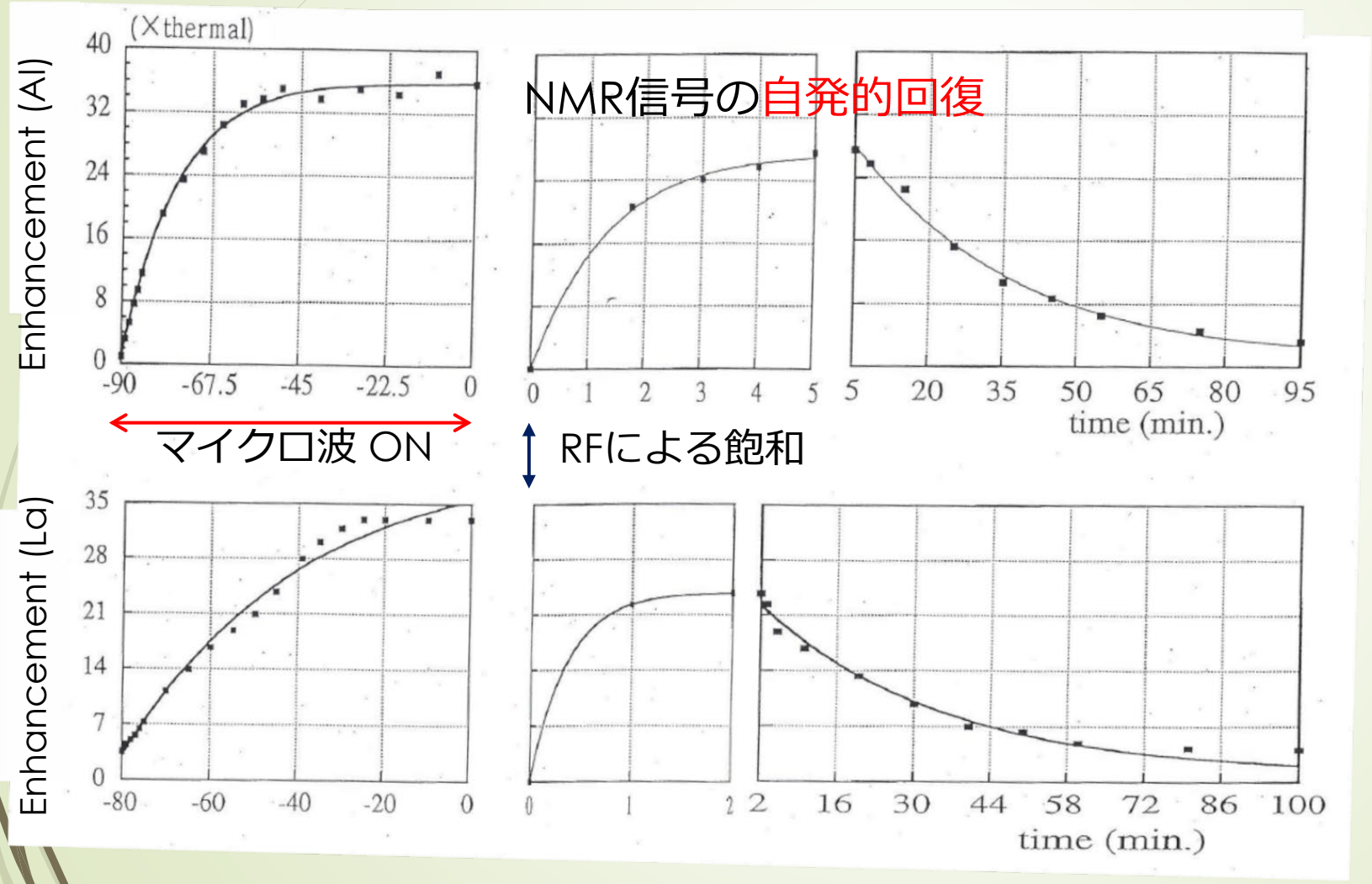
Al核スピンゼーマン系




スピン温度：$\beta = {}^{1}/_{kT}$

# SSRの実証実験

温度: 1.8K　　磁場: 0.8T　　マイクロ波: 24GHz, 200mW




La遷移

$I_z = -5/2 \leftrightarrow I_z = -3/2$

Al遷移

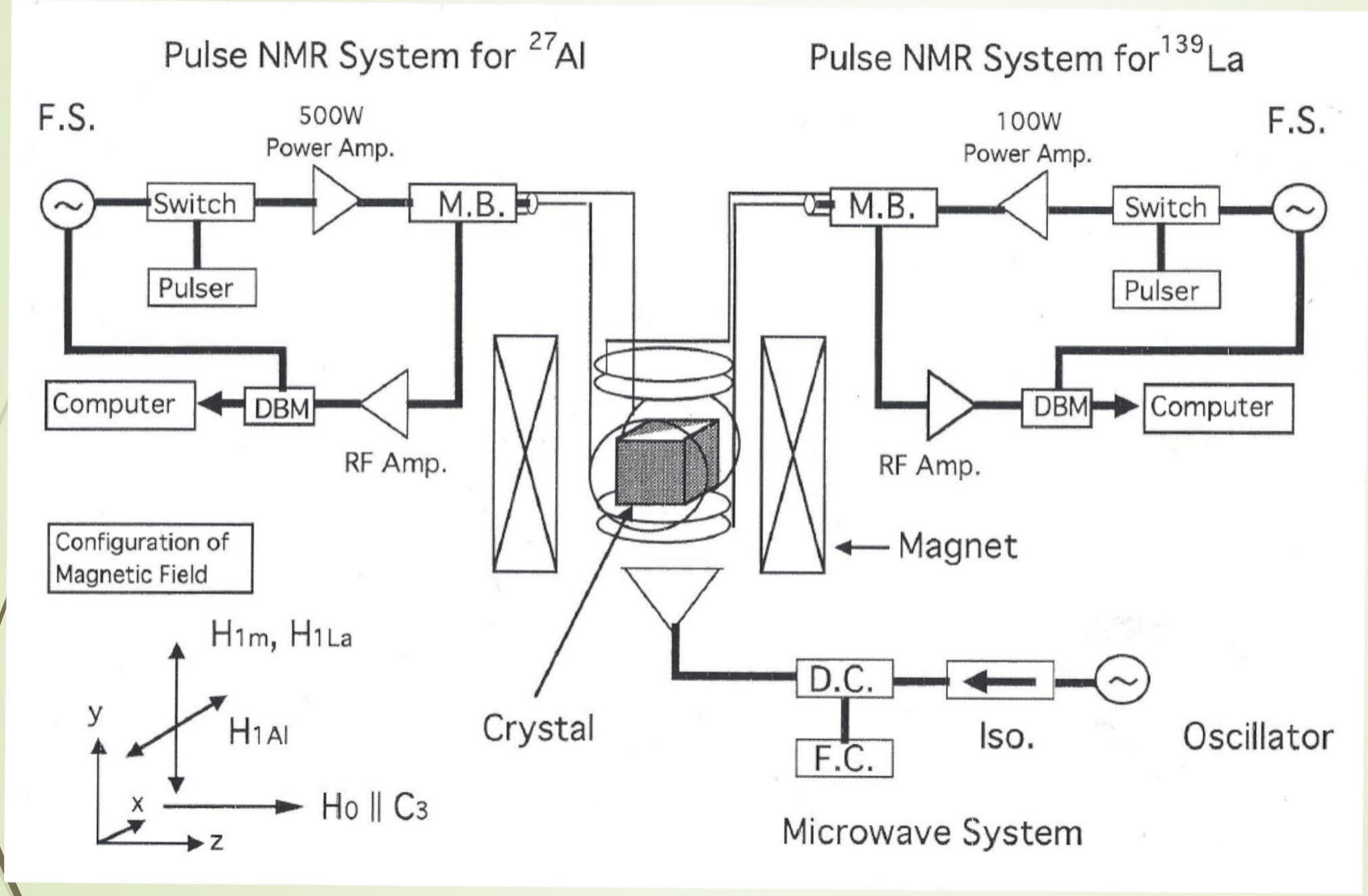
$I_z = -1/2 \leftrightarrow I_z = +1/2$

NMRの増大(La)

: 220 ( about 4.2% )

# La実験用パルスNMRシステム

T. Maekawa, et al., NIM A 366, 115 (1995)



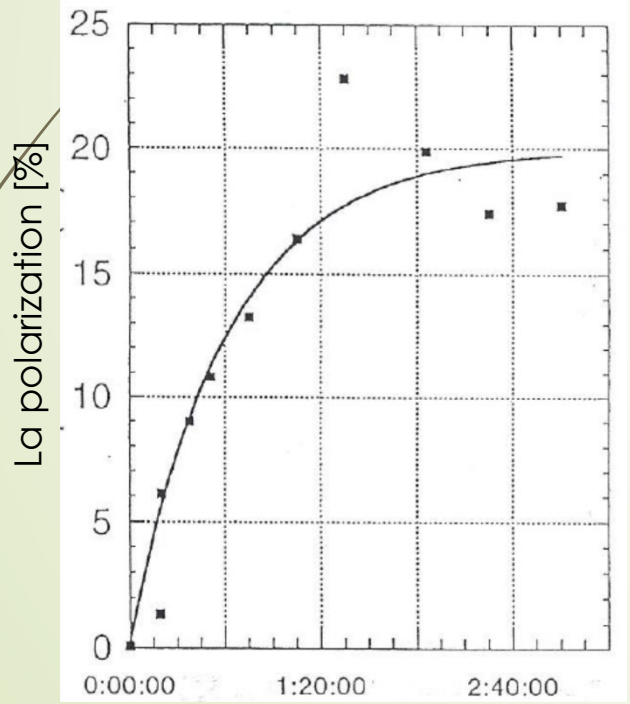
# 偏極度測定

$B_0 = 2.3[T]$　$T = 1.3[K]$ ( $P_e = 82.9\ \%$ )
マイクロ波条件: 69.82GHz, 100mW

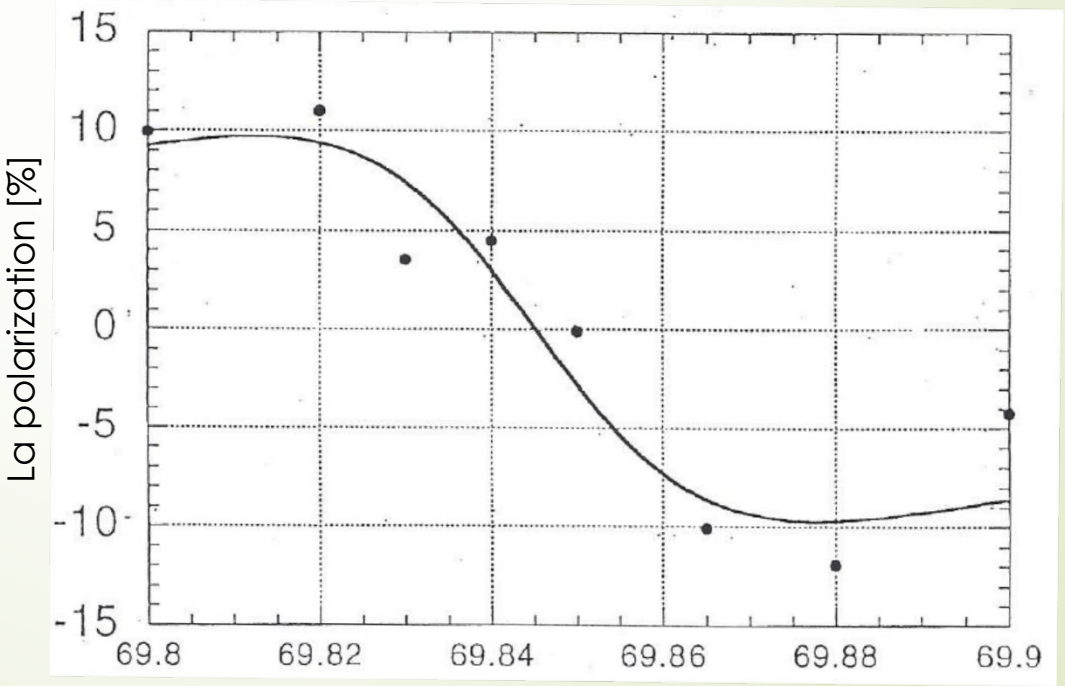
T. Maekawa, et al., NIM A 366, 115 (1995)

すべてのNMR遷移を観測

- 20% 偏極度の達成 ( 緩和時間 ~ 120 min )
- DNP曲線の幅 ~80MHz ( >> 期待されたESR幅(~8.2MHz) : g因子の不均一性 )



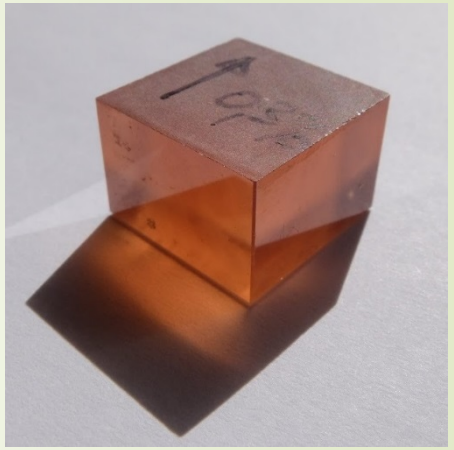

Time(hour:min:sec)




Microwave frequency [GHz]

# PSI（Paul Scherrer Institut）での実験

P.Hautle and M. Iinuma, NIM A 440, 638 (2000)



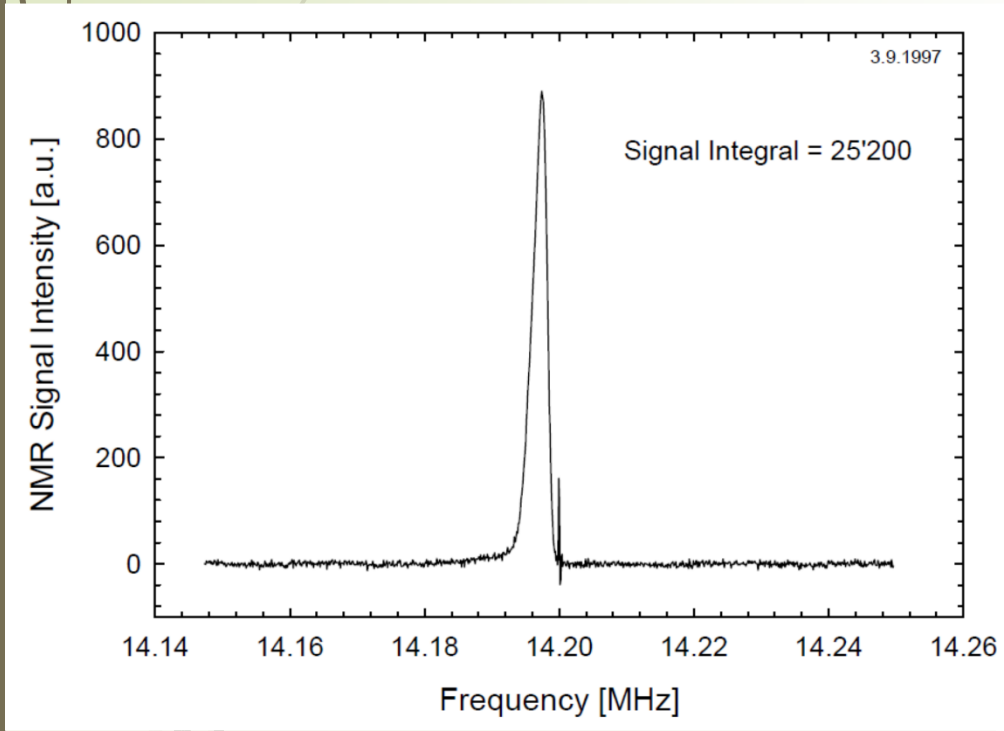
- サンプル ( 1995年に使用したものと同一の結晶 )
  - 結晶サイズ : 15x15x4 [mm]
  - $Nd^{3+}$ 濃度 : 0.3, 0.1, 0.03 mol%
- DNP 条件 : 磁場 2.35 T 温度 < 0.3 K ( $P_e = 99.99\ \%$ )
- NMR 検出 : 2台のQ-メータ spin-frozen modeで操作 ( T<0.1 K )
  - Alのスペクトル　Q-メータの周波数掃印
  - Laのスペクトル　周波数14.198MHzを固定磁場の電流を操作

データまとめ

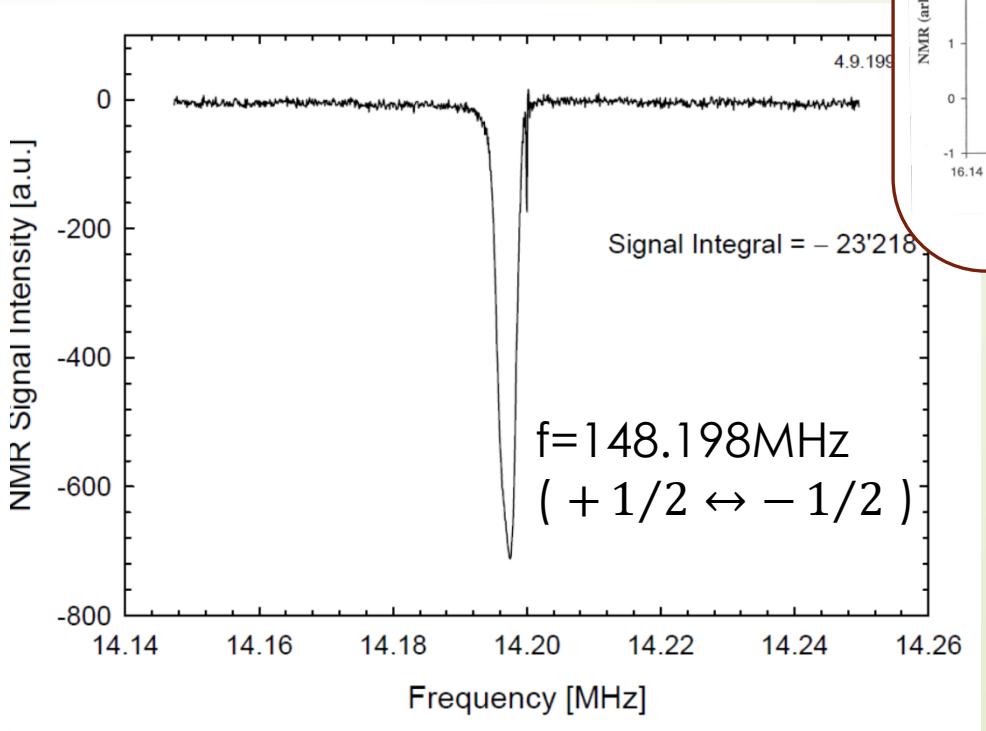
| 核種 | 熱平衡状態の条件 | 正方向のDNP | 負方向のDNP |
|---|---|---|---|
| Al | スペクトル　2.17 [K] | スペクトル（再解析） | スペクトル（再解析） |
| La | 二つの遷移のみ 2.17[K]<br>$-1/2 \leftrightarrow +1/2$<br>$+1/2 \leftrightarrow +3/2$ | 1 遷移のみ<br>$-1/2 \leftrightarrow +1/2$ | 全ての遷移（再解析） |

# La核のNMR信号

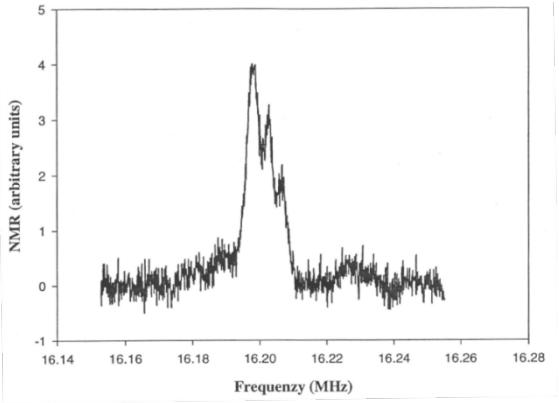
正方向DNPの信号（ $+1/2 \leftrightarrow -1/2$ ）




負方向DNPの信号（ $+1/2 \leftrightarrow -1/2$ ）

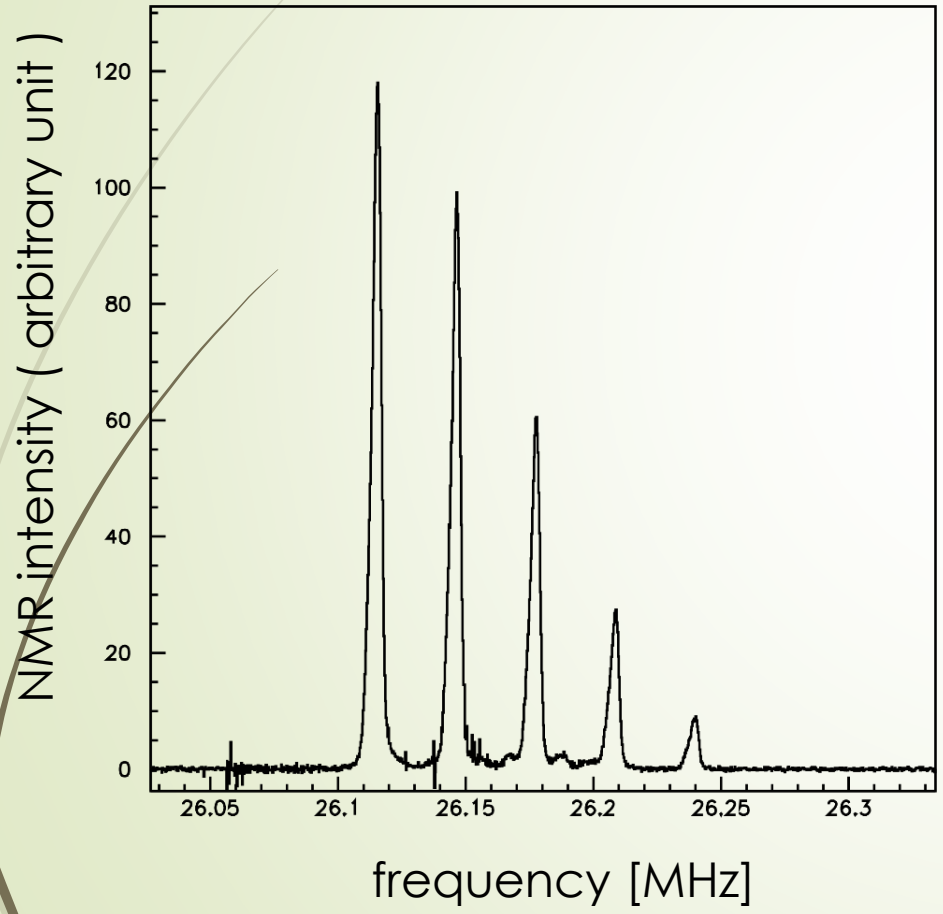



熱平衡状態 ( $+1/2 \leftrightarrow -1/2$ )

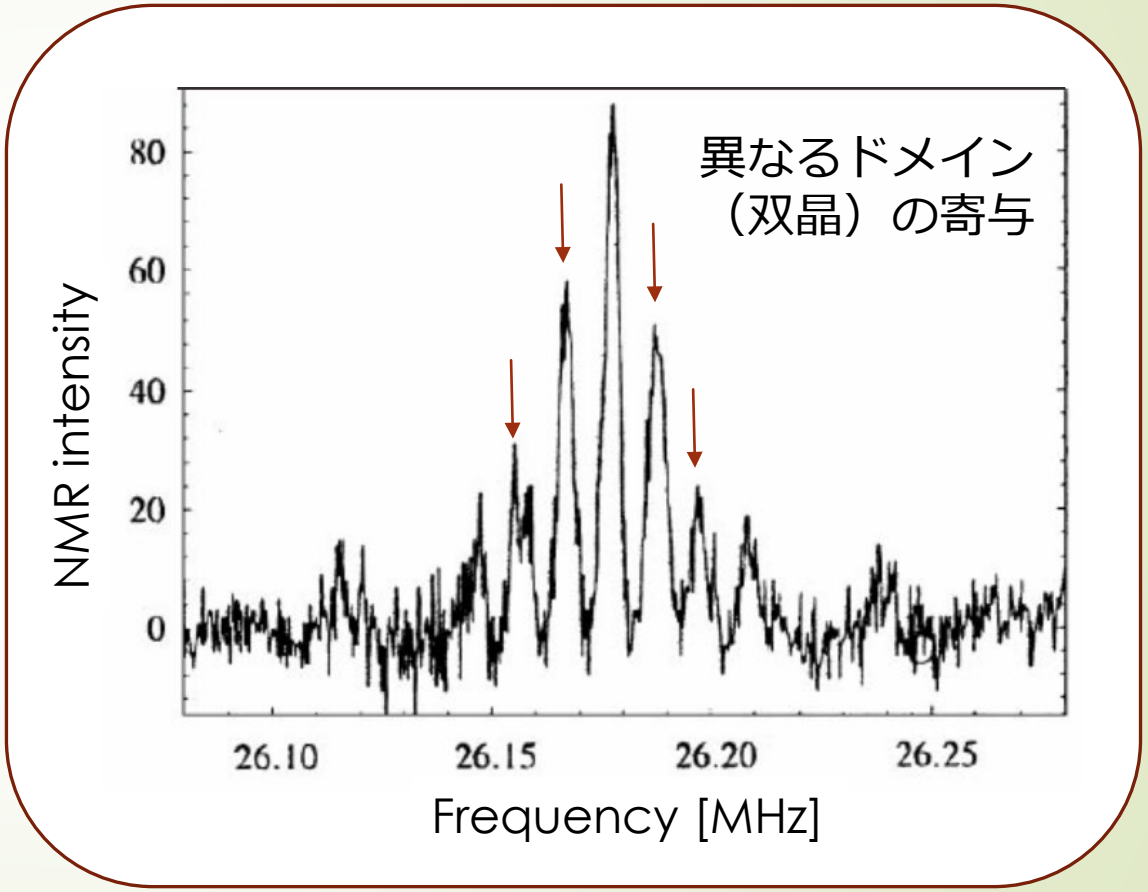


# Al核のNMR信号

正方向DNP




熱平衡状態のスペクトル



# La核偏極の測定結果

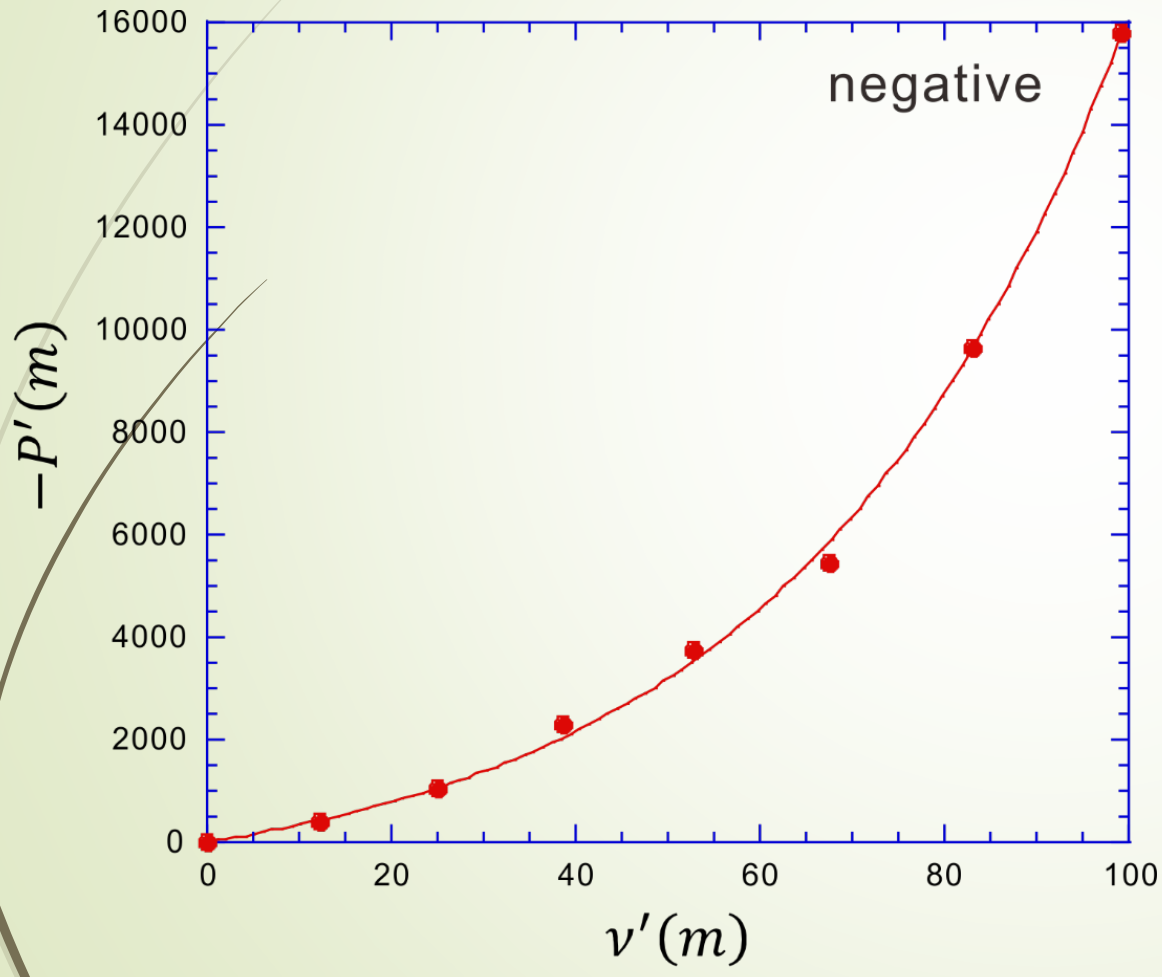
負方向DNPのNMR データ（平衡状態のNMRとは逆向きの信号）

| ピーク# | 遷移 | 電流値(A) | 校正された周波数 (MHz) | ピーク面積 | $f(m \leftrightarrow m+1)$ | $\Delta P$ |
|---|---|---|---|---|---|---|
| #1 | $+7/2 \leftrightarrow +5/2$ | 31.0 | 12.155 | -2825 | 7 | -403.57 |
| #2 | $+5/2 \leftrightarrow +3/2$ | 29.6 | 12.816 | -8084 | 12 | -673.67 |
| #3 | $+3/2 \leftrightarrow +1/2$ | 28.3 | 13.517 | -18582 | 15 | -1238.8 |
| #4 | $+1/2 \leftrightarrow -1/2$ | 27.1 | 14.198 | -23218 | 16 | -1451.1 |
| #5 | $-1/2 \leftrightarrow -3/2$ | 25.8 | 14.827 | -25370 | 15 | -1691.3 |
| #6 | $-3/2 \leftrightarrow -5/2$ | 24.5 | 15.508 | -50429 | 12 | -4202.4 |
| #7 | $-5/2 \leftrightarrow -7/2$ | 23.2 | 16.241 | -43109 | 7 | -6158.4 |

$$f(m \leftrightarrow m+1) = |\langle m+1|I_x|m\rangle|^2 = (I-m)(I+m+1)$$

$$\Delta P(m \leftrightarrow m+1) = P(m) - P(m+1) \propto \frac{Area(m \leftrightarrow m+1)}{f(m \leftrightarrow m+1)}$$

# Laのスピン温度




$\beta = -0.027969\ [\mathrm{MHz}^{-1}]$

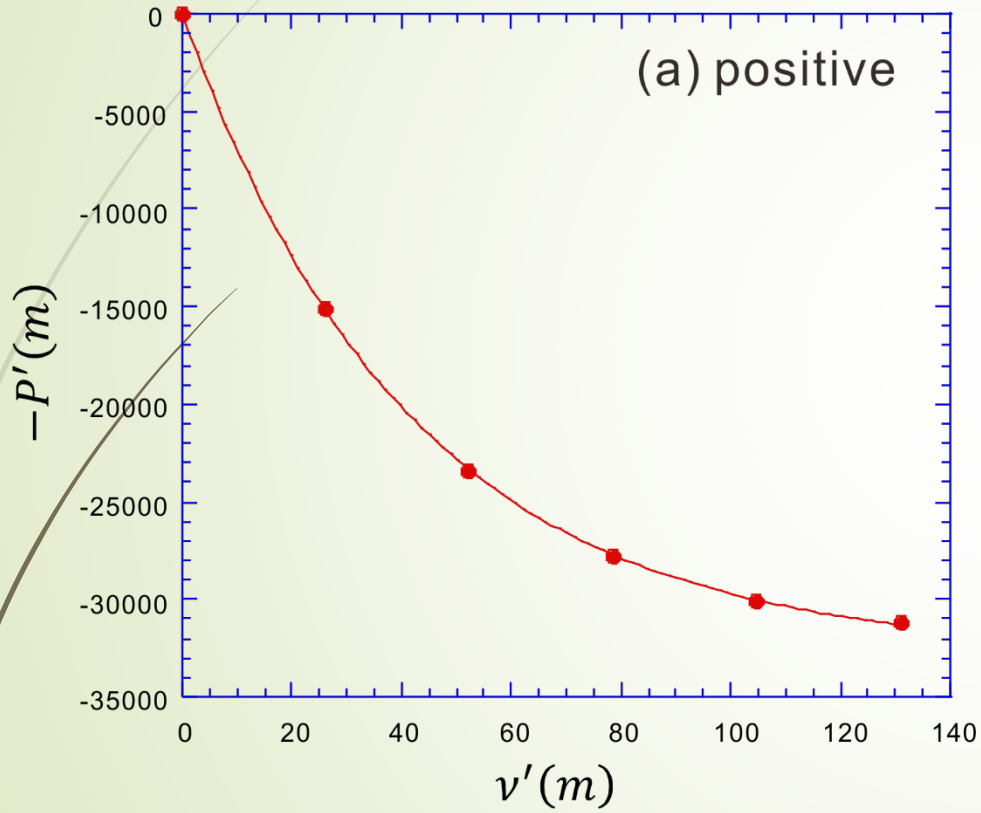
$T = -1.72\ [\mathrm{mK}]$

$P = -49.8\ [\%]$

ボルツマン分布に従っている

# Alのスピン温度

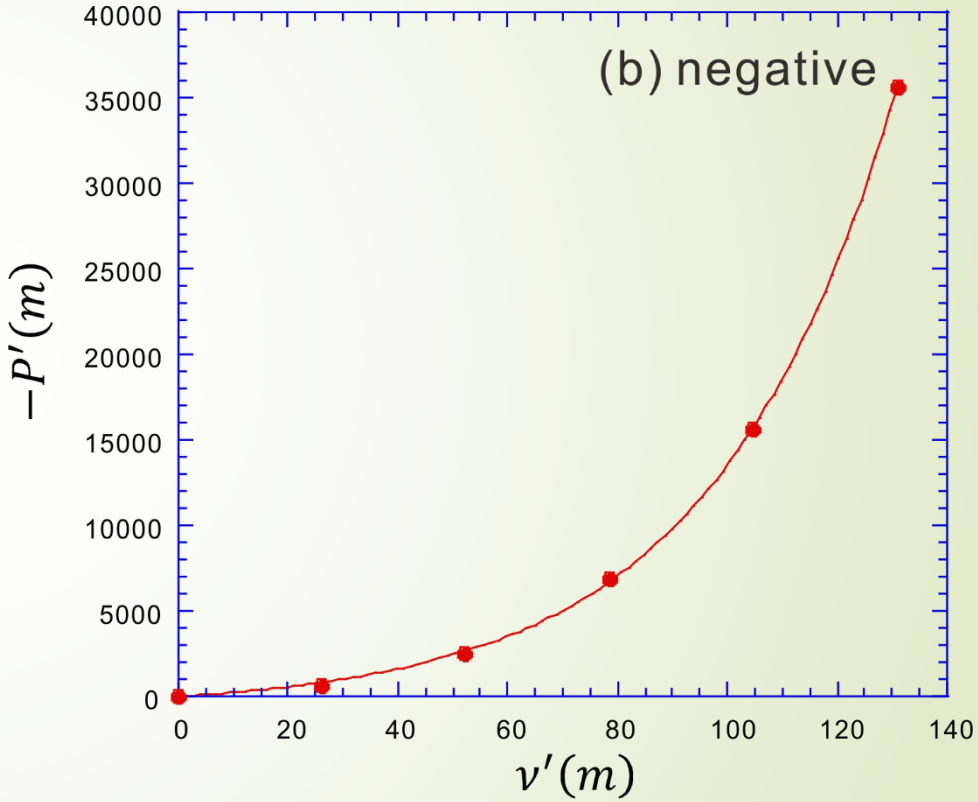
正方向DNP




$\beta = 0.023969\ [\mathrm{MHz}^{-1}]$

$T = 2.0[\mathrm{mK}] \quad P = 61.9\ [\%]$

負方向DNP




$\beta = -0.030415\ [\mathrm{MHz}^{-1}]$

$T = -1.58[\mathrm{mK}] \quad P = -71.0\ [\%]$

# 測定結果のまとめ

P.Hautle and M. Iinuma, NIM A 440, 638 (2000)のデータの再解析結果

| | スピン温度 | 偏極度 |
|---|---|---|
| Al ( 正方向 ) | + 2.00 [mK] | + 61.9 % |
| Al ( 負方向 ) | - 1.58 [mK] | - 71.0 % |
| La ( 負方向 ) | - 1.72 [mK] | - 49.8 % |

- Laの正方向の信号：-1/2<->+1/2の遷移のみ観測　負方向に比べて、増大は大きい
- Solid effectの可能性

良い結晶の利用とDNPの最適化　⇒　実用的な偏極La標的として期待
結晶の厚み30mm～50mmが望ましい

# La核偏極標的開発に向けて

## ー任意の核偏極標的実現法への第一歩ー

# La偏極標的開発にむけた課題

BF法とDNP法の両方からの核偏極標的開発

- 結晶性の良い$LaAlO_3$結晶の準備
  - 長い緩和時間（低磁場　～0.1[T]）
    - Ndドープの結晶（DNP用）
    - 純粋な結晶（BF用）
  - 双晶構造を持たない結晶
  - 大きなサイズの結晶（～4cmの厚み）
- DNPの基礎研究
  - Nd濃度の最適化
  - DNPテスト用冷凍機　⇒　将来に向けた冷凍機の準備
  - 低磁場DNPの可能性
- BFの基礎研究
  - 核スピン緩和の制御
  - 標的インストール用冷凍機、移送用冷凍機（RCNPの技術活用）

# 研究体制

## ７つの研究機関と６つの大学での共同研究

結晶成長

東北大金属材料研究所

共同利用研究

名古屋大学

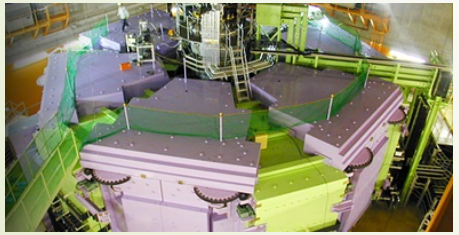
基礎的な研究

広島大学（緩和制御）
京都大学
山形大学（基礎DNP）
足利大学（冷凍機開発）
日本女子大学（冷凍機開発）

核偏極標的

PSI

RIKEN Nishina
RIKEN CEMS

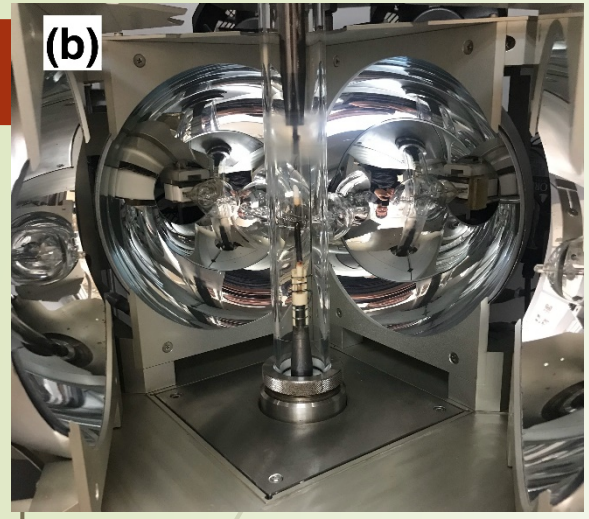


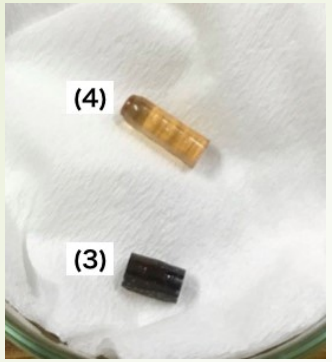
RCNP

KEK IPNS
KEK IMSS

プロジェクト研究

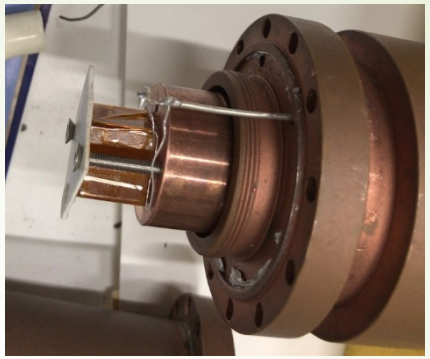
## 結晶育成　東北大金属材料研



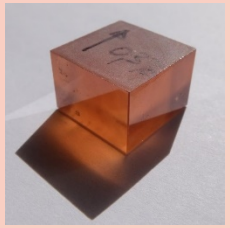

東北大金研
名古屋大
広島大

## 核偏極研究　阪大核物理研究センター



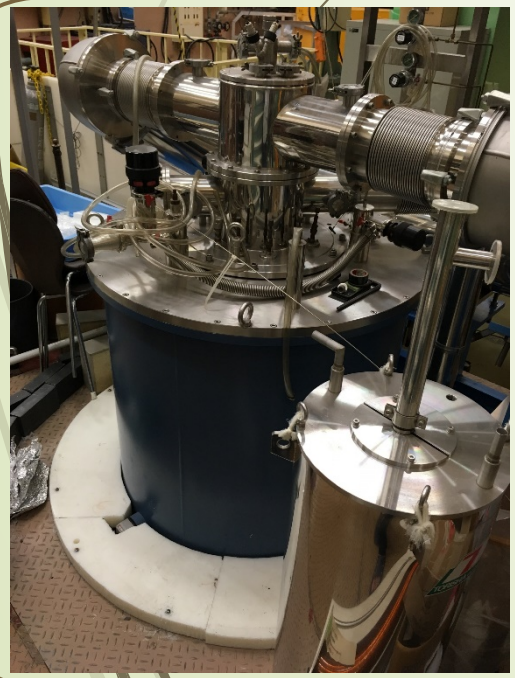
RCNP、名古屋大
広島大、山形大
理化学研究所、PSI

## 偏極La核標的



$LaAlO_3$単結晶
Ndドープ結晶
純粋結晶

## 低温技術



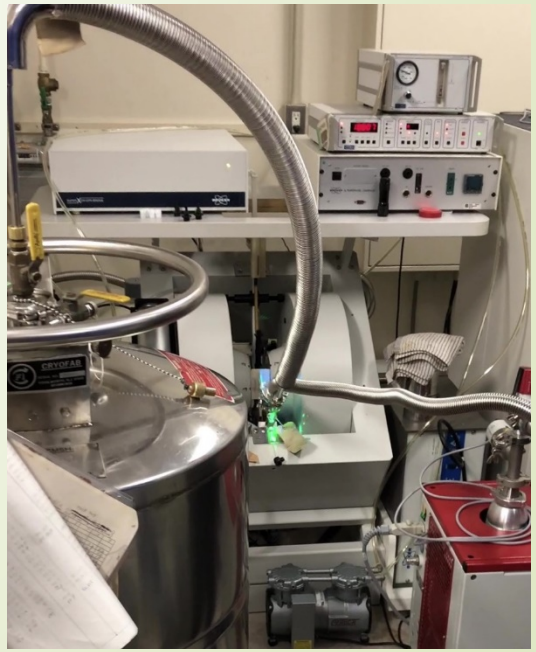
名古屋大学
理化学研究所
日本女子大
足利大
広島大

極低温・高冷却能力
冷凍機開発

## 緩和時間制御

広大自然開発センター

広島大
名古屋大



# 共同利用研究

- RCNPプロジェクト研究 ( 2018年4月～2022年3月 )
  "Development of polarized target for new physics search via T-violation"

- 東北大金研共同利用
  - 新素材センター：「高偏極La標的実現のためのペロブスカイト系La結晶育成法の研究」
    課題番号：18G0034 （2018年度）、19G0037（2019年度）
  - 研究部：「La核高偏極実現のためのペロブスカイト系La標的結晶の基礎研究 」
    課題番号：19K0081（2019年度）、20K0018（2020年度）
  - 中性子センター：「中性子照射によるペロブスカイト系La標的結晶の簡易構造解析法の研究」
    課題番号：20N0002（2020年）

- 東北大金研海外共同利用
  - Type B: "Studies on the development of large size perovskite-based lanthanum crystals for a polarized lanthanum target"
    課題番号：19K0604 (2019年)

# これまでの経緯

| | | |
|---|---|---|
| 2018年度 | 東北大金研 | NdイオンドープLaAlO$_3$単結晶育成開始 |
| 2019年度 | 名大 | 結晶のESR・NMR測定（種結晶） |
| | 東北大金研 | 基本的な育成技術確立（小サイズ、傾斜組成結晶） |
| | RCNP | DNPテスト用冷凍機の移送・整備開始 |
| | | 様々な条件下での緩和時間測定実験 |
| 2020年度 | RCNP | 緩和時間測定＆解析　⇒　論文 submission 直前 |
| | | DNPテスト用冷凍機・パルスNMR装置整備 |
| | 東北大金研 | 大型結晶育成準備 |
| | 広大 | 緩和時間制御の基礎研究開始 |
| | 山形大 | 育成した結晶を用いた最初のDNPテスト |

# まとめ

# 次世代の固体偏極標的？

**スピン物理への貢献**

高偏極、低磁場での偏極保持、ビーム実験に適したサイズ・物質

低磁場・高温での
核偏極標的（$I = 1/2$）

**光励起三重項状態**

任意の核種の偏極標的
（大きな四重極モーメント）

**ペロブスカイト結晶**

スピン凍結標的

PHIP

積分型固体効果

BF+緩和時間制御

従来のDNP
(SSR, SE)

# NOPTREX collaboration

(Neutron Optical Party & Time Reversal Experiment)

**Nagoya Univ.**
H. M. Shimizu, M. Kitaguchi, K. Hirota, T. Okudaira, T. Yamamoto, K. Ishizaki, Y. Niinomi, I. Ide, H. Tada, H. Hotta, T. Hasegawa, Y. Ito, Y. Kiyanagi, N. Wada, T. Matsushita

**Kyushu Univ.**
T. Yoshioka, S. Takada, J. Koga,

**JAEA**
S. Endoh, A. Kimura, H. Harada, K. Sakai, T. Oku

**Osaka Univ.**
T. Shima, H. Yoshikawa, K. Ogata, H. Kohri, M. Yosoi

**Tokyo Inst. Tech.**
H. Fujioka, Y. Tani, K. Kameda

**Ashikaga Univ.**
D. Takahashi

**Hiroshima Univ.**
M. Iinuma, M. Abe, S. Wada

**Japan Women's Univ.**
R. Ishiguro

**Yamagata Univ.**
T. Iwata, Y. Miyachi, D. Miura

**Univ. British Columbia**
T. Momose

**Tohoku Univ.**
M. Fujita, Y. Ikeda, T. Taniguchi

**KEK**
T. Ino, S. Ishimoto, K. Taketani, K. Mishima, G. Ichikawa

**RIKEN**
Y. Yamagata, T. Uesaka, K. Tateishi, H. Ikegami

**Kyungpook Univ.**
G. N. Kim, S. W. Lee, H. J. Kim

**Kyoto Univ.**
K Hagino, Y. I. Takahashi, M. Hino

**Indiana Univ.**
W. M. Snow, C. Auton, J. Carini, J. Curole, K. Dickerson, J. Doskow, H. Lu, G. Otero, J. Vanderwerp, G. Visser

**Univ. of South Carolina**
V. Gudkov

**Oak Ridge National Lab.**
J. D. Bowman, S. Penttila, P. Jiang

**Univ. Kentucky**
C. Crawford, B. Plaster, H. Dhahri

**Los Alamos National Lab.**
D. Schaper

**NIST**
C. C. Haddock

**Southern Illinois Univ.**
B. M. Goodson

**Ohio Univ.**
P. King

**Middle Tennessee State Univ.**
R. Mahurin

**Eastern Kentucky Univ.**
J. Fry

**Western Kentucky Univ.**
I. Novikov

**UNAM**
L. Barron-Palos, A. Perez-Martin

**Berea College**
M. Veillette

**Paul Scherrer Institut**
P. Hautle

**Juelich**
E. Babcock

**Nottingham**
M. Barlow

**Depauw**
A. Komives

# Backup

# 解析方法

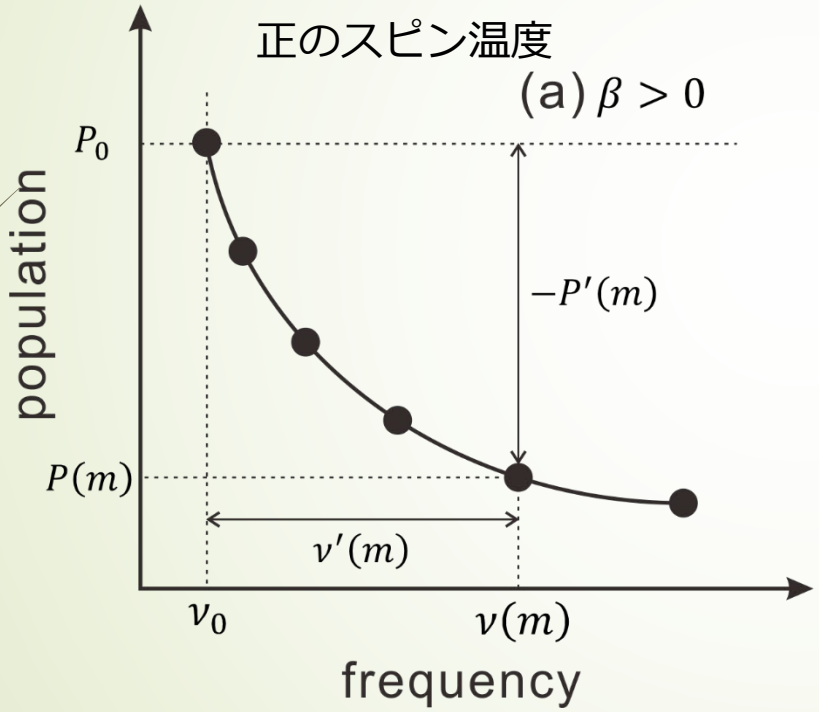
エネルギーレベル $E_m$ ( $-I_z \leq m \leq +I_z$ )

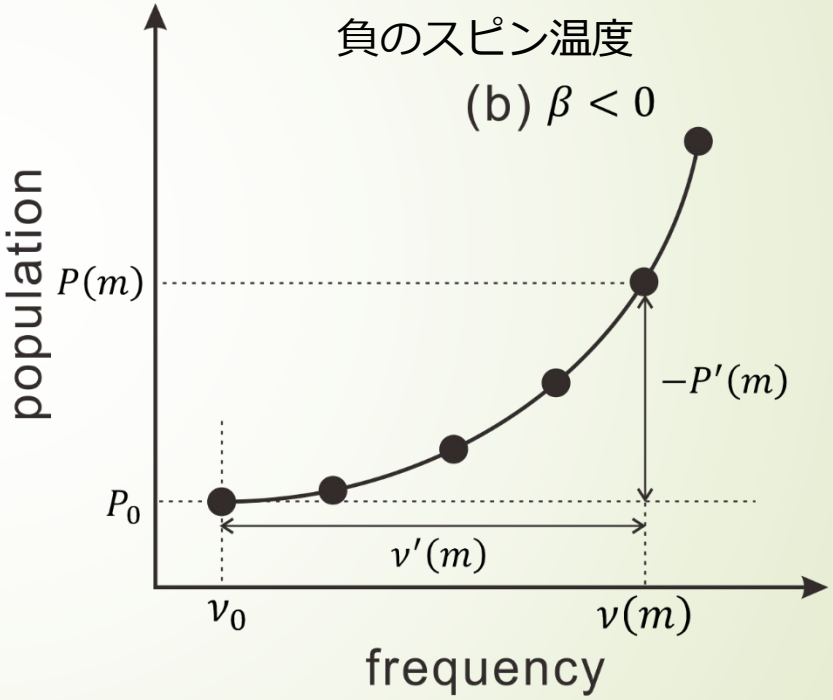
周波数 $\nu(m) = \nu'(m) + \nu_0$

占拠数 $P(m) = P_0 - P'(m)$

$\nu_0$ : 最も低いレベルの周波数

$P_0$ : 最も低いレベルの占拠数




( $\nu(m), P(m)$ )　のプロット

$P(m) = Nexp(-\beta\nu(m))$

→

( $\nu'(m), -P'(m)$ )　のプロット

$-P'(m) = P_0 - P_0 exp(-\beta\nu'(m))$

# RCNPのプロジェクト研究

"Development of polarized target for new physics search via T-violation "

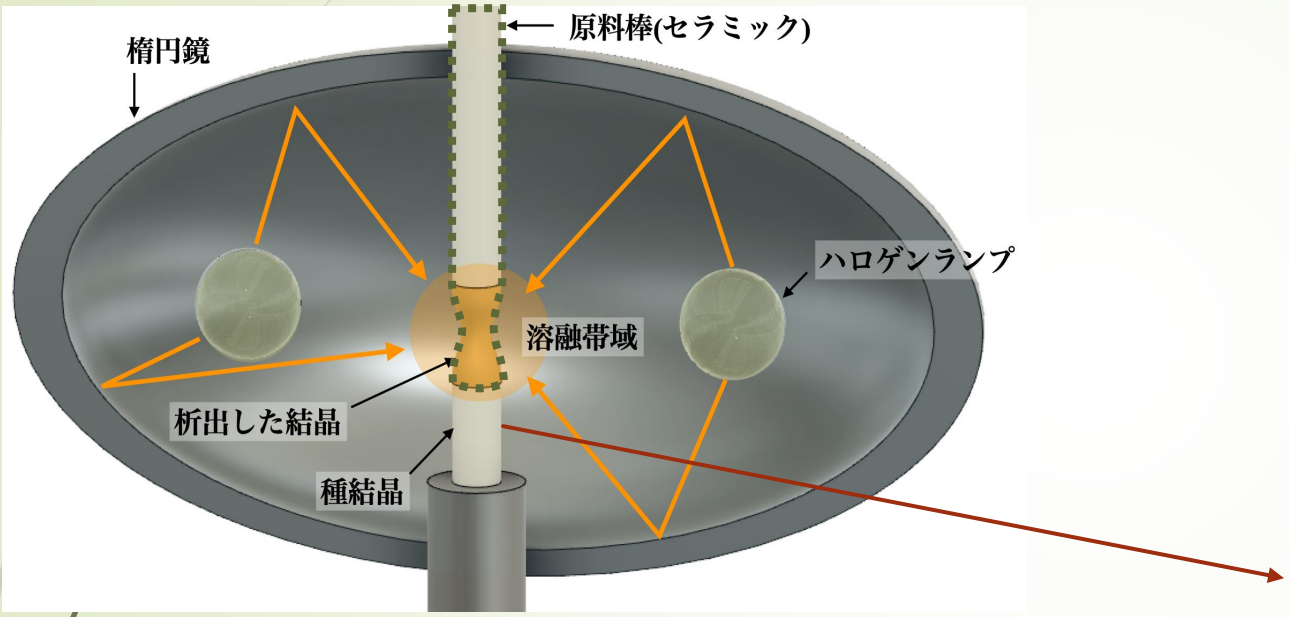
2018年度～2021年度：(2年間＋2年間延長)
BF法とDNP法の併用による核偏極標的開発

代表者：清水裕彦（名大）
飯沼昌隆（広大）

| 方法 | BF法 | High-field DNP法 | Low-field DNP法 |
|---|---|---|---|
| サンプル | $LaAlO_3$<br>（cmサイズ） | $Nd^{3+}$:$LaAlO_3$<br>（cmサイズ） | $Nd^{3+}$:$LaAlO_3$<br>（cmサイズ） |
| 期待される偏極度 | 最大偏極度59%<br>（17T、10mK） | 50%以上の偏極度<br>（2.3T、300mK) | 最大偏極度58%<br>（0.1T、100mK） |
| 操作法 | 17Tでの偏極<br>0.1Tでの偏極保持 | 2.3TでのDNP<br>0.1Tでの偏極保持 | 0.1Tでの常時DNP |
| 課題 | ・緩和時間制御法<br>・運搬方法<br>・ビームラインへのマウント法 | ・結晶育成<br>・0.1Tでの長い緩和時間<br>・DNPの再現<br>・DNP最適化 | ・結晶育成<br>・0.1Tでの長い緩和時間<br>・0.1Tでの偏極移行<br>・DNP最適化 |
| | 結晶の大型化（16cm$^2$×4cm）<br>装置の拡張 | | |

# 結晶育成（東北大金研）

## 浮遊帯域溶融法（Floating-Zone法）




原料の純度：99.99%

表　$Nd^{3+}$ : $LaAlO_3$ 結晶の重要パラメータ

| | |
|---|---|
| 育成法 | Floating-Zone(FZ) 法 |
| 原料棒の成分 / 純度 | 水酸化ランタン ($La_2O_3$) / 4N<br>アルミナ ($Al_2O_3$) / 4N |
| 常磁性不純物濃度 | 常磁性不純物 Nd<br>Nd 0.05 mol% |
| 結晶融解温度 | 2373 K |
| 双晶の有無 | 有り *1 |
| 育成速度 | 10.0 mm/h |

Φ5mm×20mm Nd濃度0.05%

結晶成長の方向に結晶軸を合わせることに成功
傾斜組成結晶育成技術確立：Nd濃度最適化に利用
双晶形成制御
大型結晶育成法を検討中

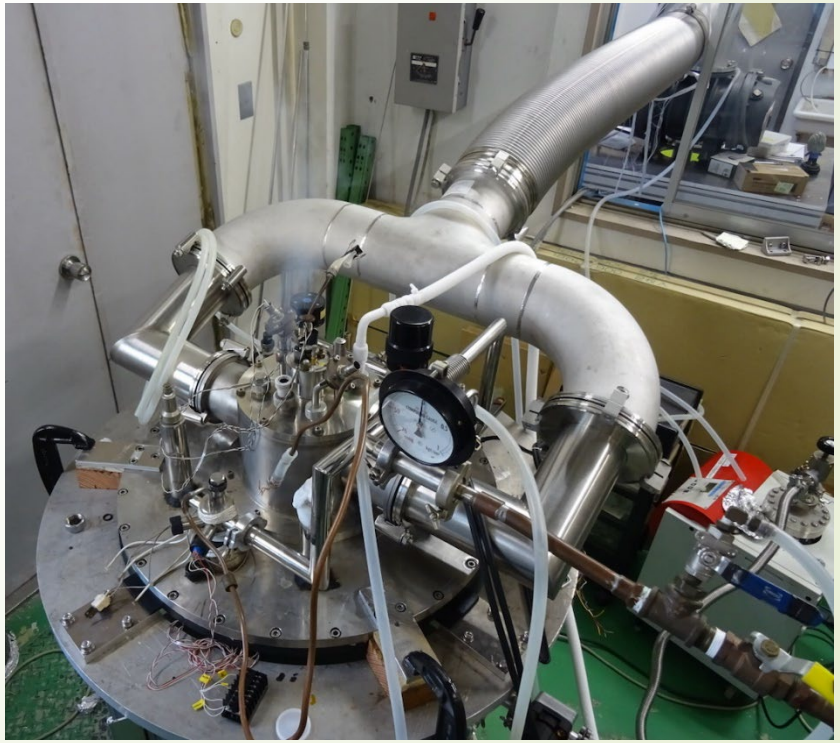
Nd濃度制御には99.999%の純度の原料が必要

# DNPテスト用冷凍機の整備

He4 冷凍機 ( 1K, 5T )

古い冷凍機のため、整備に時間が必要

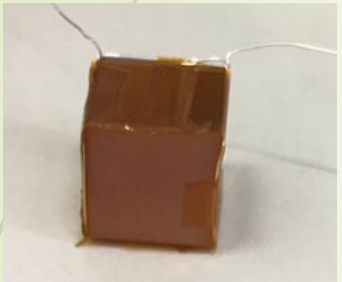
- 1.38Kの冷却を確認
- 3.8Tのマグネット励磁を確認
- オイルフィルター整備終了
- 液面計整備中
- 予冷が不十分であることが判明
  ⇒　改良済・テスト中
- パルスNMR装置の整備開始



# RCNPでの緩和時間測定

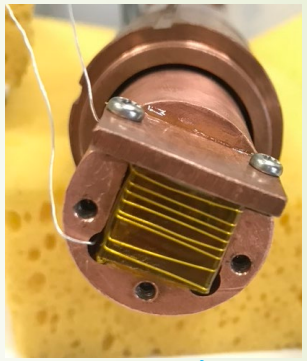
様々な条件下で測定し、0.1K・0.1Tでの緩和時間を見積もる

## 測定した結晶



- 15mmX15mmX15mm
- Nd濃度：0.03mol%
- 磁場方向：C3軸（他のドメインは70°）

17T、10mKの希釈冷凍機（DRS2500)



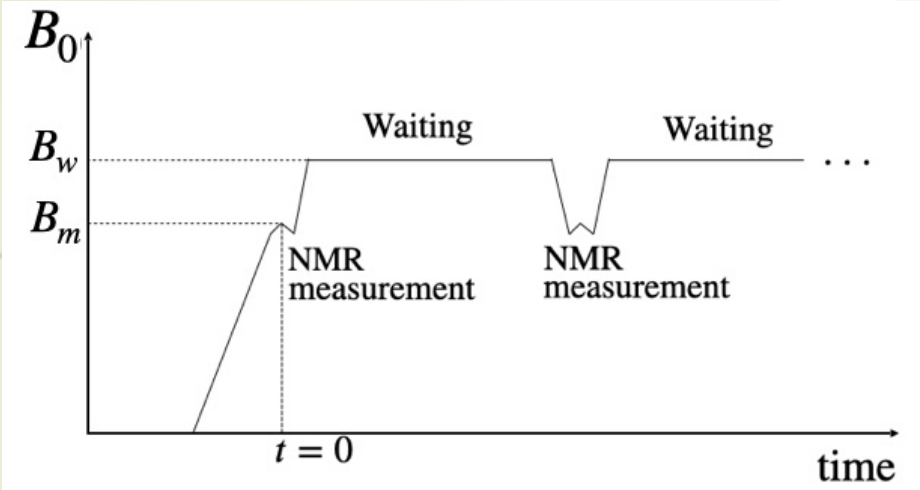
サンプル

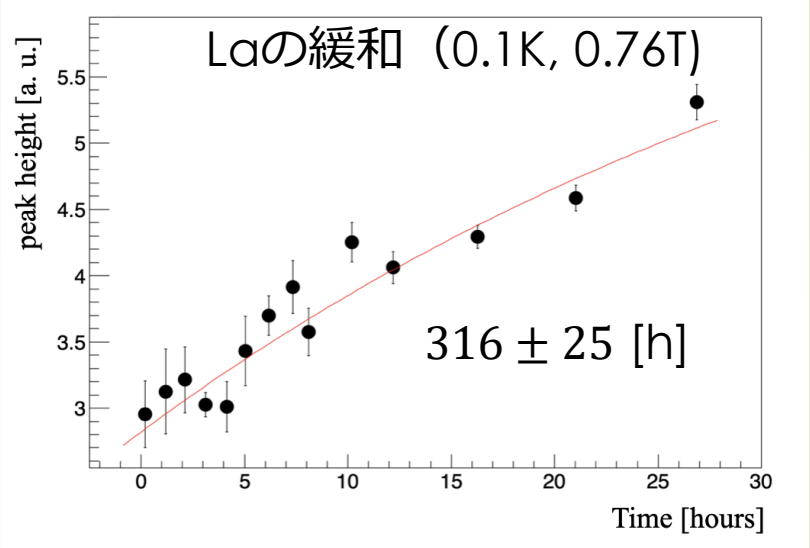
## 測定条件

| | 測定条件　温度（磁場） | |
|---|---|---|
| | La | Al |
| 2019年10月－12月 | 0.5K (5.0 T) | 0.5K ( 0.5, 1.0, 2.5 T ) |
| 2020年 3月－ 4月 | 0.5K (0.5, 1.0, 2.5 T)<br>0.1K (0.75 T) | 1.5K (1.0, 2.0 T) |

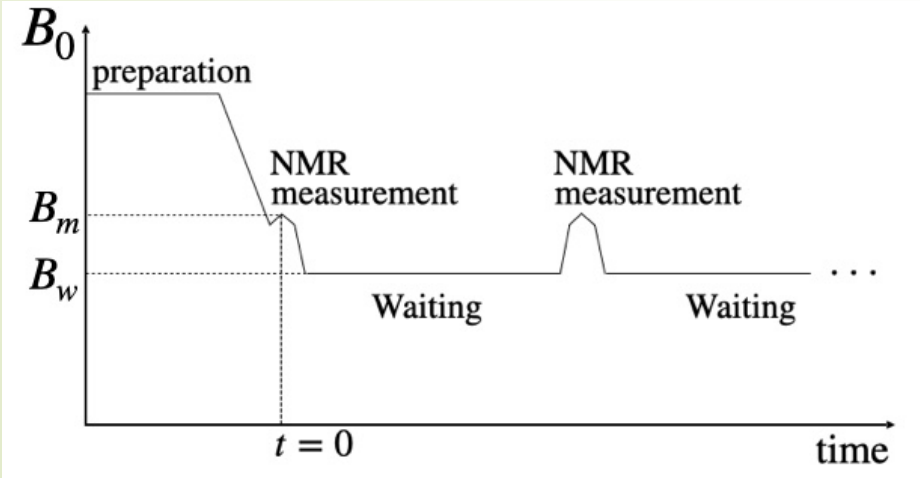
# 測定方法

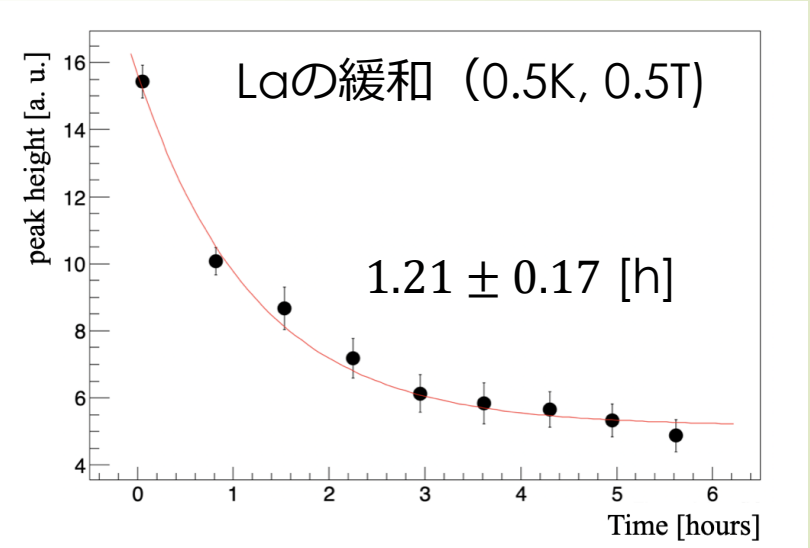
## Buildupの測定




## Decayの測定



# 育成結晶による最初のDNP実験（山形大）

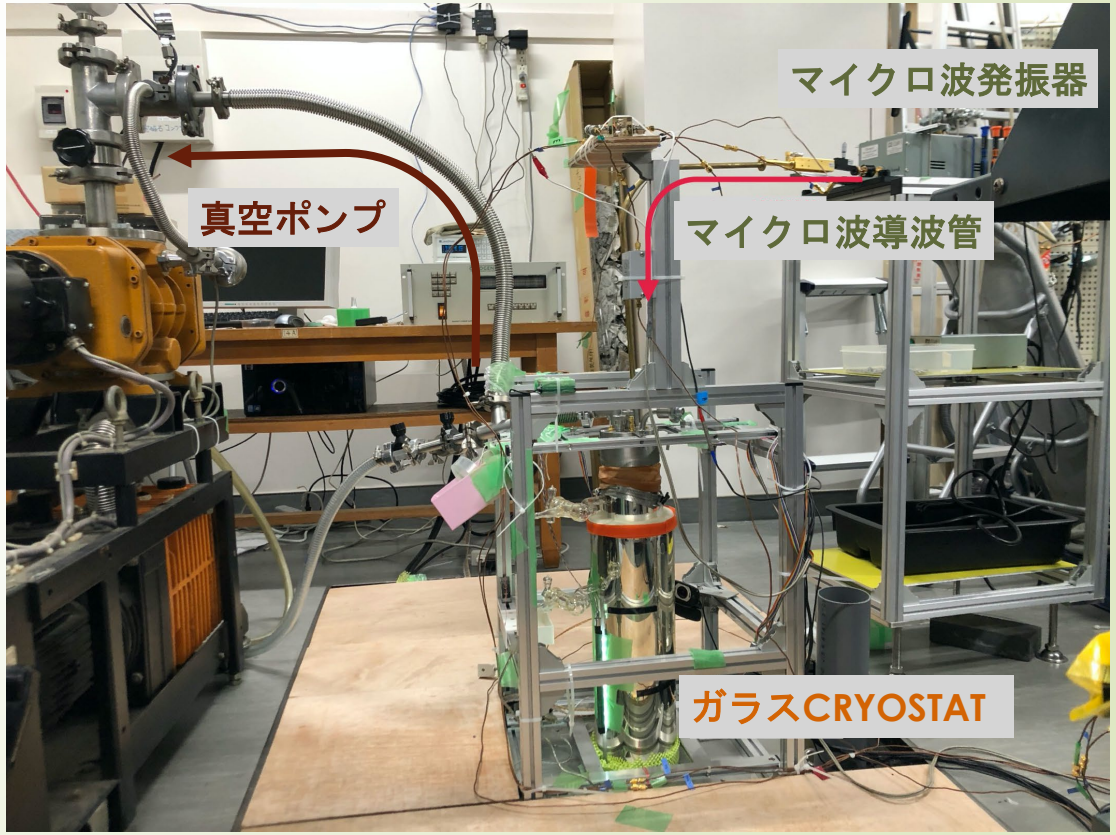
目的：高偏極を示す結晶を見出す
　　マイクロ波照射条件を明確にする

➡ RCNP冷凍機でのDNP準備実験

実験条件：磁場 2.336 T, 温度 1.33 K

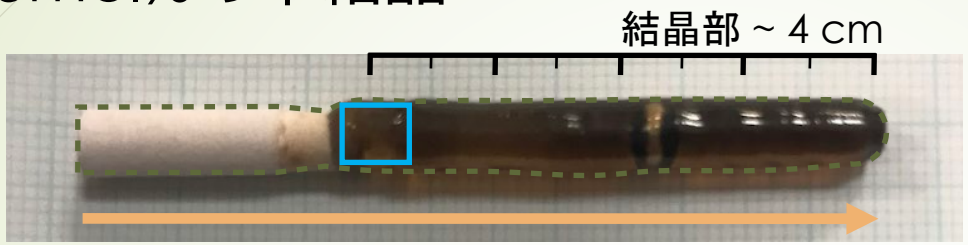
NMR: Al 25.915 MHz　La 14.505 MHz

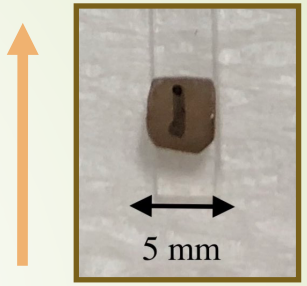
マイクロ波周波数の探索と偏極増大度の確認
緩和時間・立ち上がり時間の測定



# 結晶の特性

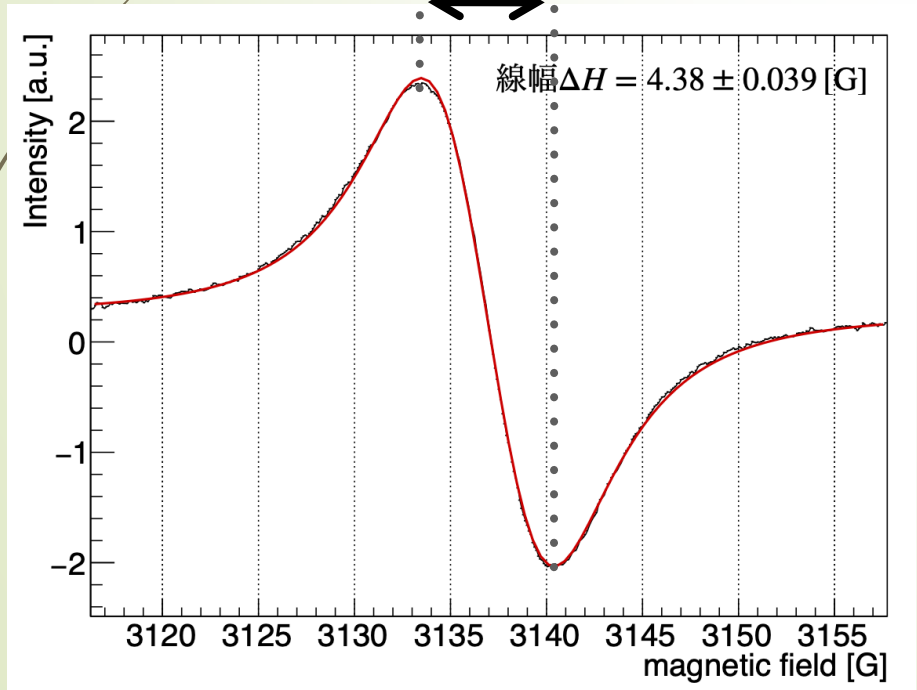
Nd濃度　0.05mol%の単結晶

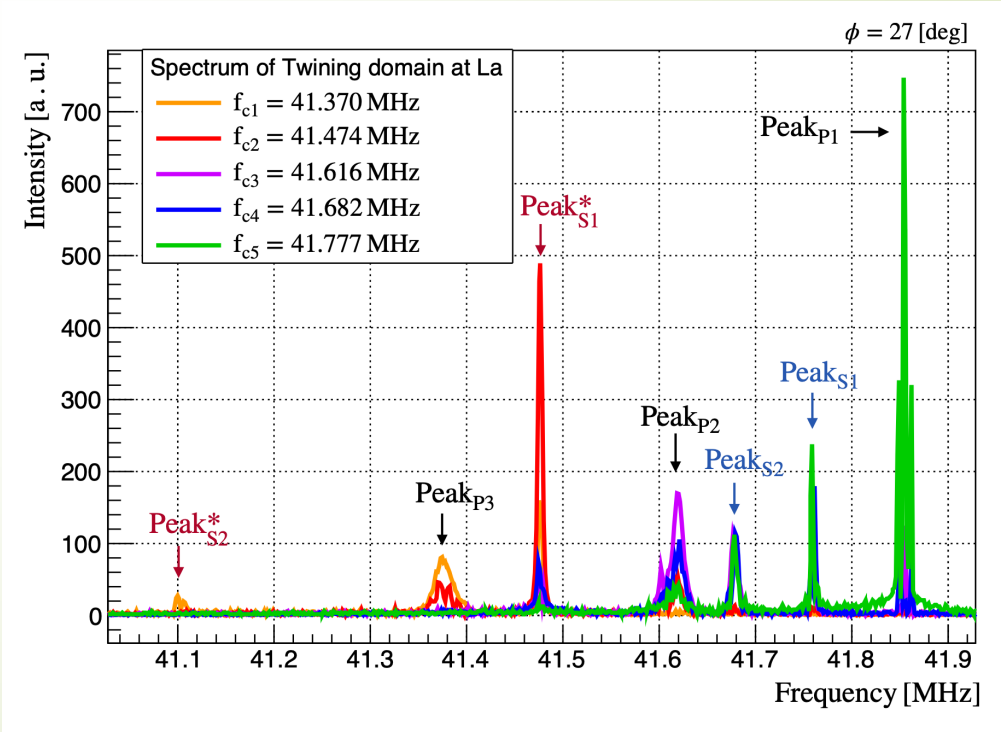



ESR測定

4.38G (以前の結晶 6G)




NMR測定

二つのドメインの存在