レーザー核スピン偏極した表面 Xe 原子の低周波核磁気共鳴

石川 潔, 今井 宏彦, 高木 芳弘

姫路工業大学大学院 理学研究科 (〒678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1)

Low-Frequency NMR of Laser-Polarized Xenon on a Liquid Surface

Kiyoshi ISHIKAWA, Hirohiko IMAI, and Yoshihiro TAKAGI

Graduate School of Science, Himeji Institute of Technology, Ako-gun, Hyogo 678-1297

(Received November 26, 2002)

We have optically polarized the nuclear spin of xenon atoms using a frequency-narrowed high-power laser-diode. The free-induction signals of polarized xenon in gas and liquid phases were measured in a magnetic field of less than 3 mT. The polarized xenon plays the role of a probe atom sensitive to the local environment. For example, we could detect the atoms, selectively, on or below the surface of liquid ethanol utilizing chemical shift imaging. The free-induction signal is so large that we can track the polarized xenon atoms dissolving into liquid ethanol through its surface. We also observed the spin-polarization of protons of ethanol transferred from polarized xenon.

Key Words: High-power laser-diode, Polarized xenon, Surface NMR, Real-time imaging, Polarization transfer

1. はじめに

近赤外半導体レーザーの高出力化により, 医療の現場で技術革新が起きた。それまで見えなかったものが見えるようになったのである。何もなかった空洞である肺に偏極希ガスを吸引すると, 磁気共鳴(MR)イメージングによって, 細かなひだまで映し出された¹⁻³⁾。この有望な応用が示されて約10年で, 多くの研究者が希ガス原子の核スピン偏極の分野に参入した。現在では, 偏極中性子などの偏極ターゲット⁴⁾, 磁気モーメントの精密測定⁵⁾などの基礎分野で偏極希ガスの有用性は再認識され, 応用利用ではガスイメージングのほか, 分子の核スピン偏極^{6,7)}, 量子計算のための偏極率向上⁸⁾などで注目されている。

光ポンピングしたアルカリ金属原子による核スピン偏極は, 希ガス原子の種類を選ばない。その組合せによってスピン交換断面積の大きさが異なり, 偏極を移すのに費やす時間が異なるだけである。アルカリ金属としてルビジウム(Rb)が使われることが多い。これは, Li, Na, Kより蒸気圧が大きいため低温で実験ができ, D_1 線に共鳴する高出力半導体レーザーの入手が容易なことが, 主な理由である。つまり, 偏極する希ガスが何であれ, Rb D_1 線に共鳴するレーザーがあればよい。ただし, 最もMR信号の大きなヘリウム(^3He :核スピン $I=1/2$)原子の場合, アルカリ金属原子とのスピン交換断面積が非常に小さく, 偏極のために約1日のポンピングが必要である。そこで, 半導体レーザー(1083 nm)による準安定状態 ^3He の直接光ポンピングが見直された。現在では, 約100 Paの希薄な

^3He を, 偏極率を下げることなく大気圧まで圧縮する簡便な方法も開発され, 約1時間で偏極 ^3He を発生できるようになった⁹⁾。

ところで偏極希ガスの可能性は, 希ガスのMRや映像化だけにとどまらない。他分子の核スピンに偏極を移し多種の分子でMR信号が増大すれば, 既に広く普及しているNMR計測が受ける恩恵は計り知れない。以前から, 希ガス気体から粉末結晶などへの偏極移行はなされていたが¹⁰⁻¹²⁾, 最近, 液体で混合すると核スピン間で効率よく偏極が移ることが報告された^{7,8,13)}。

我々は, NMR量子計算分子に偏極を移すことを念頭に, キセノン(^{129}Xe : $I=1/2$)原子の核スピンを偏極している。その前段階として, さまざまな状態のXe原子の低周波MRを行なった。その偏極率は磁場に依存しないため, 低磁場でも大きなMR信号が得られる。低周波MRでは, 振動磁場が金属に吸収されない。これは, 金属容器内の試料を遠隔的に観測できるなどの利便性のほか, 金属表面の吸着Xe原子の高感度検出のような新たな物理計測を実現する。また, 周囲の常磁性体などによる共鳴周波数シフトが小さいので, 周波数(磁場)の精密測定に適している。もちろん, 偏極Xeを利用して超伝導磁石による高磁場NMRを行なえば, 共鳴周波数に比例して信号が大きくなり, また, 環境磁場の影響も少なくなり周波数分解能が向上する。しかし我々は, 高磁場では見えない微弱な磁気相互作用を, 低磁場で観測できるようにしたい。

本論文では, Rb原子の光ポンピングに使用する近赤外高出力半導体レーザーにふれ, 偏極Xeガスを連続発生させる装置について説明する。最後に, 液面における偏極

Xe原子の高感度磁気検出と実時間イメージングについて述べる。

2. 近赤外半導体レーザー

Xe原子の核スピン偏極に使用する半導体レーザーは、波長がRb原子 D_1 線の795 nmで、Nd:YAG結晶の吸収波長に近いので入手が容易である。通常、数Wから100 Wのパワーで光ポンピングするが、その効率を上げるため、ポンピングセルの温度を約400 KにしRb金属の蒸気圧を上げ、緩衝ガスの圧力を2~4気圧にし吸収線幅を広げる。レーザー線幅は約2 nmでRb原子の吸収線より広いので、すべての光出力がポンピングに使えない。希ガス原子を核スピン偏極する目的には単一モード化の必要はないが、約0.1 nmの線幅で光ポンピングしたい。そこで、単一モード化と同様に、光注入同期や回折格子による光フィードバックなどが行なわれる¹⁴⁻¹⁶⁾。我々はFig. 1のように、外部共振器による単一モード半導体レーザー光(50 mW)を、高出力半導体レーザーに注入し、Rb原子に共鳴する光を発生させた¹⁷⁾。種となる単一モード光とRb原子の超微細準位間遷移の共鳴と、注入同期した高出力半導体レーザーのスペクトルを常時モニターし、レーザー調整の指標にする。最終段の半導体レーザーの光出力は2.3 Wで、スペクトル幅はFig. 2 (a)のように、単一モード光の注入により分光器の分解波長以下になる。短波長側に残っている広い成分は、2つあるエミッタの片側の注入同期が十分でないことを示す。核スピン偏極に使われる波長成分をFig. 2 (a)に灰色の領域で示したが、この面積は全体の約70 %である。レーザーの特性を調べるため走査型ファブリーペロー共振器で分解能を上げて観測すると、Fig. 2(b)に示すスペクトルが得られる。単一モード光の強度は全体の約10 %である。

上に述べたレーザーで光ポンピングし、一辺22 mmの立方体バイレックスガラスセルに封入したXe核スピンの自由誘導緩和(FID)を観測した。セルには、Rb金属と自然同位体比のXeガス(室温換算44 kPa)のほか、消光のための N_2 (8 kPa)、拡散防止また圧力幅を広げるための 4He (43 kPa)を加えてある。共鳴周波数の振動磁場パルスにより誘起されたFID信号は、800回巻きのピックアップコイルで

Fig. 1 Setup of optical polarization of xenon by the frequency-narrowed laser diode. The scattered light from the output of high-power laser diode is collected with the optical fiber and introduced to the spectro-meter with CCD camera. The induced voltage is amplified by the OP amp. and measured by the digital oscilloscope.

Fig. 2 Spectra of power laser-diode observed with (a) CCD spectrometer and (b) a scanning Fabry-Perot cavity.

磁気検出し、インピーダンス変換と周波数フィルターを兼ねたOPアンプで8000倍増幅した後、デジタルオシロスコープで記録する。測定系のダイナミックレンジを上げる目的で、ロックインアンプも使用する。セルに封入した偏極Xe原子のFID信号をFig. 3 (a)に示す。これは、繰返しの平均をせずに記録した、ラーモア周波数24.3 kHzのシングルショット信号で、A/D変換した後バンド幅600 Hzのデジタルフィルターをかけている。次に、ロックインアンプを使って時定数1 msで記録した信号をFig. 3 (b)に示す。これはスピンエコー信号であり、均一な位相緩和時間が $T_2 \sim 0.5$ 秒になっている。電子軌道が閉殻の希ガスの核スピンであっても T_2 が短いのは、ラジカルであるRb原子と頻りに衝突することにより緩和しているためである。

さて、狭線幅化した半導体レーザーによる光ポンピングの効率を調べるため、核スピンの偏極率を見積もる必要がある。そこで気体Xeと水のプロトン(1H)の信号強度を比較し、Xe核スピンの偏極率を求めた。熱平衡状態の 1H の偏極率 P は、2準位のボルツマン分布により、

$$P \approx \frac{\hbar \gamma B_0}{2k_B T} \quad (1)$$

Fig. 3 Magnetic resonance signals of gaseous xenon filled in a glass cell. One-shot signals of (a) free-induction decay measured at Larmor frequency, and (b) echo detected with a lock-in amplifier. (c) Fourier transformed spectrum of FID signal was observed by applying the magnetic field gradient, showing the projection of polarized Xe density along the optical axis of pumping laser.

である。ここで、 γ は原子核の磁気回転比、 B_0 は静磁場の大きさ、 T は温度である。検出コイルに対する試料の充填率と共鳴周波数を同一にし、低磁場における ^1H のFID信号を多数回平均し比較すると、気体 ^{129}Xe の偏極率は約1%であった。次に、セル内での偏極Xeの空間分布を調べるため、勾配磁場を印加してFID信号を観測した。ポンピング光軸(z軸)方向に勾配させたときの、FID信号のフーリエ変換をFig. 3 (c)に示す。これは、偏極原子分布の光軸方向への射影である。勾配磁場中では、原子の拡散に起因する位相緩和によりMR画像の位置分解能が決まる。セル端の立上がりは位置分解能に依っているが、内部の曲線は偏極原子分布を反映している。一様でないものの偏極Xeが満遍なく分布しているので、Rb原子密度は適切であった。

3. 偏極キセノンの連続生成

ガラスセルに封入した偏極Xeの信号が大きいことがわかったが、このままではXe原子を取り出すことができない。そこでFig. 4のような、偏極Xeを連続生成する装置を製作した。装置の動作原理は文献¹⁸⁾に詳しいので、ここでは我々の実験条件に沿って簡単に説明する。まず、Xeガスを含む混合ガスを約2気圧にし、光ポンピングセルに送る。ガス混合比はXe:N₂:⁴He = 1:1:8で、1気圧換算で合計150 cm³/minの流量である。フロー型偏極装置では、光ポンピングされたRb原子と混在する短時間のうちに偏極を移す必要があるため、封入セルの場合よりXeガスの混合比が低い。使用しているXeガスは、¹²⁹Xeを自然同位体比26%で含む。他に¹³¹Xe($I=3/2$)が21%含まれるが、これは固体Xeのスピン緩和の原因の1つで、温度50K以下で重要になる²⁰⁾。温度400Kのポンピングセルから流れ出た気体は、速やかにRb原子から分離され、さらに下流へ流れる。セルから約30 cm離れた場所でFID信号を550回巻コイルで検出し、Xe核スピン偏極率を見積もると、封入セルと同様、約1%であった*。

次に、ガラス配管の一部を冷却し偏極Xeを液化した。偏極Xeを固体や液体にすると、N₂ガスや⁴Heガスと分離でき、また、一時に大量の偏極Xeを使用する目的で蓄える

Fig. 4 Experimental apparatus for optical polarization of the flowing Xe gas. Rb atoms are removed at the trap connected to the exit of a pumping cell. Polarized xenon is accumulated as solid in the trap at 77 K and 0.5 T.

ことができる。ただし、単に液体窒素で冷やすだけでは、固体となったXe原子の磁気双極子相互作用とフォノンの影響でスピン緩和時間 T_1 が10秒程度まで短くなり¹⁹⁾、偏極を保ったままXeを蓄えることができない。そこで、固体として蓄積している間、永久磁石で約0.5 Tの磁場を印加した。十分な量の偏極Xeがたまったら、融点(161 K)を超えるまで速やかに温度を上昇させ、永久磁石を取り除く。混合ガスを15分間流して蓄積した後の、偏極XeのFID信号をFig. 5 (a)に示す。使用したOPアンプは400倍の増幅である。信号の振幅から、液体Xeの偏極率は約0.2%である。液体の体積は約0.4 cm³で、気体より密度が高く信号も大きいので、振動磁場のパルス面積を小さくして、繰返しFID信号を観測できる。そこで $\pi/22$ パルスによるFID信号を30秒おきに観測し、Fig. 5 (c)に示す振幅の時間変化を得た。永久磁石を取り除く際、一時的に温度が上昇し偏極Xeが蒸発している。最初の数分間、緩和が遅く見えるのは、蒸発した偏極Xeが液体として観測領域に戻っているためである。磁場2.7 mTにおける液体の緩和時間 T_1 は、減衰曲線の後半から約250秒であることがわかる。

液体XeのFID信号の観測を始めて20分経過すると、Fig. 5 (b)のように緩和時間 T_2 の長い信号が得られた。つまり、共鳴線幅は時間の経過とともに狭くなっている。線幅と振幅の関係は、Fig. 5 (d)に示す比例関係になった。偏極Xeの磁化は振動成分が約10 nTにもなり、誘導起電力で検出コイルに流れる電流も大きい。その電流の発生する磁場は、反転分布した偏極の縦成分($P_z > 0$)を横成分に変換する(radiation dumping)²⁰⁾。そのとき T_2 は、

Fig. 5 FID signals of polarized Xe liquid stored in the cold trap at 180 K and 2.7 mT. One-shot FID signal induced by a $\pi/22$ pulse of 31.7 kHz at (a) 1 minute and (b) 20 minutes, after the permanent magnet is removed. The signal of Xe gas above the liquid appears as the amplitude modulation at the beat frequency of 7.5 Hz. (c) Decay curve of FID amplitude. The loss of polarization by the excitation pulse has been corrected. The decay constant of Xe polarization is approximately 250 seconds. (d) The dependence of linewidth on FID amplitude.

* 偏極率は、レーザー強度、ガス流量、全圧力、Xe分圧などに依存するので単純に比較できないが、我々の条件に近い例として、文献¹³⁾ではレーザー線幅の制御なしの40 Wで偏極率5~10%を得ている。

$$1/T_2 = 1/T_2^* - \Gamma P_2, \quad (2)$$

と表される。 Γ は、コイル形状や磁化試料により決まる正の定数である。このメーザー作用は T_2 を長くする傾向にあるが、我々の場合 $P_2 < 0$ であり、むしろ T_2 が短くなった。不均一磁場による緩和時間は、Fig. 5(d)の縦軸切片から、 $T_2^* = 1.3$ 秒である。

4. エタノールと偏極キセノン

偏極Xeを大量に生成できるようになったが、ここではエタノールに溶ける偏極Xeの磁気検出について述べる。Xeは化学シフトの大きな原子で、原子のおかれた環境をNMR計測するためのプローブとして使われることが多い。また、エタノールのような極性溶媒は、凝縮系で多種多様な分子にスピン偏極を移す際に重要な役割をはたすと思われる。まず、偏極Xeガスの流れ出るガラス管をエタノールに浸し、Xe原子のFID信号を観測した。Xe原子は極性溶媒に対する溶解度が高いので²¹⁾、飽和溶液では大気圧の気体と同程度の密度で存在し、低磁場でも大きな信号が得られる。そのFID信号のフーリエ変換スペクトルをFig. 6 (a)に示す。気体Xeとエタノールに溶解した溶質Xeのスペクトルが、低磁場で明確に分かれている。気体Xeの共鳴周波数の圧力・温度依存性は、実験の範囲内では無視しうる²²⁾。そこで気体の周波数を基準にし、Fig. 6 (b)に示すように、エタノール中Xe原子の化学シフトの温度依存性を計測した。通常の熱平衡状態のNMRとは異なり、温度ごとに1つのシングルショット信号を記録すればよく、また、広い温度範囲でもスピン偏極率を一定にして測定できる。

ここで、Fig. 6 (a)の低磁場MRスペクトルの周波数分解能について検討する。共鳴は気体を流したまま観測したので、核スピンの歳差運動しているXe原子の一部は、 T_2 以内に検出コイルの観測領域から逃げていた。そのため、気体Xeの線幅が広がっている。これに対しエタノール中では拡散が遅いので、原子の運動は線幅に影響しない。溶質Xeの共鳴線幅が約9 ppmなのは、主に磁場用電源の安定性による。今後、電流の安定化と周囲の装置が発

Fig. 6 Chemical shifts of xenon atoms in ethanol at 2.7 mT. The mixed gas of ^4He , N_2 , and the polarized Xe is flowed into the liquid ethanol at the pressure of 250 kPa. (a) Fourier transform of the FID signal of xenon which is one shot signal induced by a $\pi/22$ pulse of 31.7 kHz at 320 K. The line of gaseous xenon is broader than that of the dissolved xenon because of a gas flow. (b) The temperature dependence of the chemical shift of xenon.

生する浮遊磁場の遮蔽を行ない、低磁場MRで1 ppmの分解能をめざす。それにより、微弱な相互作用による周波数シフトや緩和を検知する。

以上のように偏極Xeの信号は非常に大きく、繰返しの平均をしなくてもスペクトルを測定できる。この特徴を生かすと、XeNMRの実時間計測が可能になる。そこで、偏極Xeをエタノールの入った容器に流し、エタノールに溶けるようすを時間分解して観測した。ただし、Xeの流れ出るガラス管は液に浸っていない、上方からガスを吹きつけた。Xeの溶解の時間分解次元MR画像を、Fig. 7 (a), 7 (b)に示す。スペクトルに位置分解能を持たせるため、鉛直方向に勾配のある磁場を印加した。もともとエタノールにより高周波側に化学シフトしているので、液体側つまり鉛直下方ほど磁場を大きくすれば、気体のスペクトルと重ならない。ガスを流し始めるとFig. 7 (a)のように、まず偏極Xeガスが増加し、その後エタノール表面付近にXe原子が滞在してから、エタノール内部に溶けていく。特に、表面付近のXe原子を高感度に観測できている点に注目したい。表面は勾配の方向と直交しているので、表面上の偏極Xeは同じ周波数で共鳴し、スペクトルは広がらない。熱平衡状態では偏極率が式(1)のように小さいので、表面原子を観測するために活性炭のような固体で表面積を増やす必要があった。偏極Xeでは 1 cm^2 程度の面積でも表面原子を検出できるので、液体表面においてFig. 7 (a)のように位置分解能を持たせることができた。文献²³⁾では溶解した後の偏極Xeを画像化しているのに対し、我々の実験では、表面と内部を区別し溶解の初期段階をとらえている。

次に、エタノールの温度を272 Kに下げ、Fig. 7 (b)のような時間分解MR画像を得た。これにはFig. 7 (a)のような液体内部のXe原子が見られず、表面Xeの信号が大きくなっている。飽和溶解度は低温の方が大きい、Xe原子は表面付近に長く滞在し、30秒程度では内部まで侵入して行かないのが時間分解測定によりわかった。この傾向

Fig. 7 Real-time chemical-shift imaging of polarized xenon detected by blowing the gas on the surface of ethanol around the magnetic field of 2.7 mT. One-dimensional images were observed every 4 seconds at (a) 283 K and (b) 272 K. There is no spectrum of polarized Xe dissolved in the ethanol bulk at 272 K.

は、事前のエタノールの脱気の有無には関わらない。今後、表面張力・粘性率・水素結合などの温度依存性を考慮して現象を理解する必要がある。

偏極Xeがエタノールに溶けると、最終的にXeからエタノールの ^1H へ偏極が移る^{7,13}。偏極移行の過程を化学シフトイメージングで調べるための準備として、 ^1H の低周波MR信号を観測した。まず、偏極Xeガスをエタノール中に流しながらポンピングの円偏光の向きを変えると、Fig. 8 (a)のように ^1H の信号が増減する。信号増大率は温度に依存し、室温付近で最も大きく約1.5倍であった。これは ^1H の T_1 の温度依存性を反映している。次に、溶解したXeではなく、密度の高い液体Xeを使い偏極を移した。まず、温度77 Kで蓄積した偏極Xe固体上にエタノールを移し、温度を175 Kまで上げ永久磁石を取り除く。その後 ^1H のFID信号を観測し、Fig. 8 (b)に示す時間変化を得た。観測開始時における信号増大率は6倍である。磁石を除いてから観測開始まで約1分経過していたので、約10倍の増大率が得られていたことになる。偏極の減衰時間が85秒であるが、これは ^1H ではなく偏極を供給しているXeの T_1 であり、Fig. 5 (c)に示す純粋な液体Xeに比べ1/3である。さて、Xe密度が気体Xeに比べ 10^3 倍であるにも関わらず偏極率が10倍にとどまったのは、上で述べたように低温の液体では T_1 が短いこと、液体の混合が十分でないことが挙げられる。今後は、ガラス耐圧強度の15気圧まで加圧し、偏極移行の最適温度を見つける。文献⁷⁾ではエタノールの ^1H の偏極率が液体Xeにより750倍になっているが、我々との最大の相違点は、Xeの偏極率が20%に達している点である。次の目標は、強力な半導体レーザーを併用しガラスセルの両側から光ポンピングし、Xe核スピン偏極率を10%にすることである。多くの実験では約2 nmの線幅のまま40~100 Wで十分に時間をかけてポンピングし、10%を超える偏極率を得ている。光注入同期はエミッタが多くなると難しいので、現在、15 Wのレーザーで19個のエミッタに対応したミラーアレイで注入を試みている。最近市販の半導体レーザーはエミッタごとの波長のばらつきが小さいので、2個のエミッタへの注入を行ったFig. 2 (a)のような、線幅0.1 nmへの制御は可能であると考えられる。

Fig. 8 Polarization transfer from optically-polarized xenon to proton of ethanol. (a) The resonance of proton is observed by flowing the polarized xenon gas into the liquid ethanol at 290 K. The line amplitude depends on the direction of circular polarization of pump light. (b) Time dependence of FID amplitude of proton observed every 20 seconds for the mixture of xenon and ethanol at 175 K. The decay time is 85 seconds at 2.7 mT.

5. 結 論

気体と液体の偏極Xe原子のMR信号を、低磁場・シングルショットで観測した。さらに、エタノールに溶ける偏極Xeについて1次元MR画像化により、面積が 1 cm^2 程度の液面の原子を液体内部の原子と分離して実時間計測することもできた。通常、高磁場ではFID信号の振幅は周波数(磁場)の約2乗に比例する。しかし、偏極原子の偏極率は観測領域の磁場に依存しないので、振幅は周波数に比例すると考えられる。ただし、低周波では検出コイルを 50Ω ではなく高インピーダンスにできるので、コイルの巻数や試料を大きくできる。信号強度は、高周波NMR信号の外挿値と比べれば大きいのである。今後は、低磁場における周波数分解能を上げることが課題である。

謝 辞

本研究は、科学研究費補助金の基盤研究(B)と光科学技術研究振興財団の研究助成によって行なわれた。

参考文献

- 1) T. G. Walker and W. Happer: Rev. Mod. Phys. **69** (1997) 629.
- 2) T. Beardsley: Scientific American (1999), No. 6. 日経サイエンス **29** (9) (1999) 8.
- 3) 石川 潔: 磁気共鳴医学会誌 **20** (2000) 1.
- 4) M. E. Wagshul and T. E. Chupp: Phys. Rev. **49** (1994) 3854.
- 5) M. V. Romalis and M. P. Ledbetter: Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 067601.
- 6) G. Navon, Y. Q. Song, T. Room, S. Appelt, R. E. Taylor, and A. Pines: Science **272** (1996) 1848.
- 7) S. Appelt, F. W. Haesing, S. Baer-Lang, N. J. Shah, and B. Blümich: Chem. Phys. Lett. **348** (2001) 263.
- 8) A. S. Verhulst, O. Liivak, M. H. Sherwood, H. M. Vieth, and I. L. Chuang: Appl. Phys. Lett. **79** (2001) 2480.
- 9) E. Courtade, F. Marion, P. J. Nacher, G. Tastevin, K. Kiersnowski, and T. Dohnalik: Eur. Phys. J. D **21** (2002) 25.
- 10) E. Brunner, M. Haake, A. Pines, J. A. Reimer, and R. Seydoux: Chem. Phys. Lett. **290** (1998) 112.
- 11) B. Driehuys, G. D. Cates, and W. Happer: Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 4943.
- 12) T. Room, S. Appelt, R. Seydoux, E. L. Hahn, and A. Pines: Phys. Rev. B **55** (1997) 11604.
- 13) J. C. Leawoods, B. T. Saam, and M. S. Conradi: Chem. Phys. Lett. **327** (2000) 359.
- 14) M. V. Romalis: Appl. Phys. Lett. **77** (2000) 1080.
- 15) B. Chann, I. Nelson, and T. G. Walker: Opt. Lett. **25** (2000) 1352.
- 16) S. B. Bayram and T. E. Chupp, Rev. Sci. Instrum. **73** (2002) 4169.
- 17) I. Shvachuk, K. Dieckmann, M. Zielonkowski, and J. T. M. Walraven: Appl. Phys. B **71** (2000) 475.
- 18) B. Patton, N. N. Kuzma, and W. Happer: Phys. Rev. B **65** (2001) 020404(R).
- 19) N. N. Kuzma, B. Patton, K. Raman, and W. Happer: Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 147602.
- 20) T. E. Chupp, R. J. Hoare, R. L. Walsworth, and B. Wu: Phys. Rev. Lett. **72** (1994) 2363.
- 21) H. L. Clever (ed): *Krypton, Xenon and Radon - Gas Solubilities* (Solubility Data Series Vol. 2, Pergamon Press, Oxford, 1979).
- 22) D. Raftery and B. F. Chmelka: in *Solid-State NMR I* ed. P. Diehl, E. Fluck, H. Günther, R. Kosfeld, and J. Seelig (NMR Vol. 30, Springer-Verlag, Berlin, 1994) p. 111.
- 23) P. Berthault and H. Desvaux: Eur. Phys. J. D **22** (2003) 65.