

機関番号：82118

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2013

課題番号：23654107

研究課題名(和文) 3He 偏極装置の高度化に向けた単結晶セルの開発と 3He 高偏極化の研究

研究課題名(英文) R&D on crystalline cells for 3He nuclear polarizers

研究代表者

猪野 隆 (Ino, Takashi)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・講師

研究者番号：10301722

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000 円、(間接経費) 810,000 円

研究成果の概要(和文)：スピン交換法による ^3He 核偏極には温度に依存する偏極緩和が存在し、これにより到達偏極率が80%程度で頭打ちとなっている。この偏極緩和については、現在その原因が不明だが、現象論的に ^3He ガスを封入するガラス容器(セル)内壁面で生じていることが示唆されている。通常、 ^3He セルは清浄なガラスでできているが、ガラスの多孔質性がこの未知の偏極緩和と関係している可能性がある。そこで、ガラス材料の代わりに単結晶材料を用いた ^3He セルを製作し、その偏極緩和を調べることにより、未知の偏極緩和に対する知見を得るとともに、85%を超えるスピン偏極率を実現する可能性を探るべく ^3He 偏極用単結晶セルの開発を目指した。

研究成果の概要(英文)：There is unknown temperature-dependent spin relaxation in the ^3He polarization by the spin exchange optical pumping (SEOP). Due to this excess spin relaxation, the ^3He polarization by the SEOP is limited up to ~80%. The mechanism of this relaxation is not yet revealed, but a study indicates that at the source of the excess relaxation is primarily a surface phenomenon. The ^3He gas is usually confined in a specially treated clean glass cell, and the unknown spin relaxation might be related with the porous structure of glass, where ^3He atoms permeate in the glass walls. To study the mechanism of the temperature-dependent spin relaxation as well as to overcome the limitation of the ^3He polarization, research and development of crystalline cells are performed.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：X線・粒子線 ^3He 偏極 偏極中性子

1. 研究開始当初の背景

^3He はスピン方向に依存した大きな中性子吸収断面積を持つため、これを偏極させることにより中性子スピンフィルターが実現できる。これを用いた偏極中性子ビームは、磁性材料や水素を含む物質の研究で期待されており、各国で偏極装置の開発と高度化が進められている。また、核偏極した ^3He はターゲットとして核子構造の研究にも用いられ、あるいは、偏極 ^3He ガスを肺の内部に導入することによる肺の MRI 撮像など、原子核研究や医療の分野でも利用が進みつつある。

^3He ガスは、主にスピン交換法 (Spin-Exchange Optical Pumping、以下 SEOP) または準安定法 (Meta-stability Optical Pumping、以下 MEOP) により高い核偏極が実現できる。SEOP では、密封されたガラス容器内に ^3He ガスと Rb を充填し、光ポンピングにより Rb 原子を偏極させ、スピン交換で ^3He 原子核へ偏極を移す。この時、Rb の濃度 (原子数密度) を適当な値にする必要があり、これは ^3He 偏極容器 (セル) を 150 ~ 200 に暖め、蒸気圧で調整をする。ところが、セルを昇温すると、温度とともに大きくなる未知の偏極緩和 (以下 x-factor [1]) が現れ、これにより ^3He 偏極率が 80% 程度で頭打ちとなっている。一方の MEOP では、 ^3He ガスを 1 bar 程度の希薄な状態で偏極した後、コンプレッサーにより必要な密度まで圧縮するため、圧縮中の偏極緩和により偏極率はやはり 80% 程度で頭打ちとなっている。

[1] E. Babcock, B. Chann, T. G. Walker, W. C. Chen, T. R. Gentile, Phys. Rev. Lett. **96**, 080083 (2006).

2. 研究の目的

本研究は、 ^3He 原子核偏極の高度化、とくに高偏極化を目指すものである。上に述べたように、スピン偏極した ^3He 原子核は原子核物理学から中性子散乱による物性研究、そして医療など様々な分野で利用されており、いずれの研究や利用でも ^3He 偏極率はできるだけ高い状態が望まれる。しかし、SEOP でも MEOP でも偏極率は 80% 程度で頭打ちになっており、この制限を克服し、より高い偏極率を実現することは、研究や利用の効率化という観点のみならず、100% に近い ^3He 偏極率が実現できれば、それらの質的な転換が期待できる。これらの事由により、本研究では SEOP における x-factor の機構を実験的に解明するとともに、80% 程度で頭打ちしている偏極率を向上させる技術の開発を目指した。

3. 研究の方法

本研究では、SEOP による ^3He 偏極において、頭打ちしている偏極率を向上させるべく、 ^3He 偏極セルの材料として通常用いているガラスではなく、単結晶によるセルを試作し、その x-factor を測定して、単結晶セルの性能

を評価するものである。

(1) x-factor 測定のためのシステム構築

x-factor の測定には、Rb 偏極セル内の Rb 密度を測定する必要がある。Rb 密度は、Rb 蒸気を透過する光がおこす Faraday rotation を測定することにより得られる。とくに Rb の D_1 、 D_2 吸収線付近では大きな Faraday rotation が生じるので、 D_2 吸収線付近で波長を調整できるレーザー光学系および Faraday rotation を測定する光学系を構築する。

(2) 単結晶セルの試作

^3He 偏極セルの材料は、780 nm 及び 795 nm の光に対して透明で、かつ中性子透過率の大きい物質でなければならない。795 nm は Rb の D_1 吸収線で、SEOP での光ポンピングに必要であり、780 nm は Rb の D_2 吸収線である。この条件を満たす単結晶材料としてサファイア (Al_2O_3) を用い、円筒形のセルを試作する。単結晶材料としては、diffusion bonding による接合技術が確立されている。 ^3He 偏極セルには ^3He ガス等封入用にガラス管を接合しなければならず、単結晶材料とこのガラス管との接合について新たな方法を試験する。

以上、単結晶による ^3He 偏極セルを試作し、Faraday rotation からセルの x-factor を測定し、その原因を探るとともに、偏極率向上の可能性を調べる。なお、先行研究から、x-factor はセルごとに大きなばらつきが生じるため、多数の ^3He 偏極セルを試作し、単結晶セルの x-factor については系統的な測定を行う必要がある。

4. 研究成果

(1) x-factor 測定のためのシステム構築

スピン偏極した ^3He 原子核は、その磁気モーメントが小さいため、わずかな磁場勾配により偏極緩和を起す。磁場勾配の原因は、外部磁場や、あるいは ^3He 偏極セル内壁面および壁内に存在する磁性不純物によるが、基本的には温度に依存しない。一方、 ^3He 原子同士の散乱や ^3He と Rb の散乱による偏極緩和は温度依存を持ち、この影響を正確に測定しないと、x-factor を求めることはできない。 ^3He 原子同士の散乱による偏極緩和は、散乱頻度に比例するので、すなわちガスの絶対温度に比例する。また、 ^3He と Rb の散乱による効果も散乱頻度に比例するが、それに加えて Rb の濃度 (数密度) にも比例する。Rb は、融点が 39.3、沸点が 700 であるため、SEOP による偏極時、ガスの温度は 150 ~ 200 になっており、液体である Rb の数密度、すなわち蒸気圧は温度で大きく変化する。

^3He の偏極緩和率と x-factor は次の式で関連づけられる。

$$d_{He} = -\{k_{SE}[Rb](1 + X) + \Gamma_r\}$$

d_{He} : ^3He depolarization rate
 k_{SE} : ^3He -Rb spin-exchange rate coefficient
 $[Rb]$: Rb number density
 X : x-factor
 Γ_r : room temperature ^3He relaxation rate

k_{SE} は既知で、 $(6.8 \pm 0.2) \times 10^{-22} \text{ cm}^3/\text{s}$ となっている[2]。室温における ^3He 偏極緩和率、すなわち温度に依存しない項は、NMR により容易に測定が可能である。Rb の蒸気圧については古くから調べられており、図 1 に示すように、150 ~ 200 で約一桁の変化を生じる。

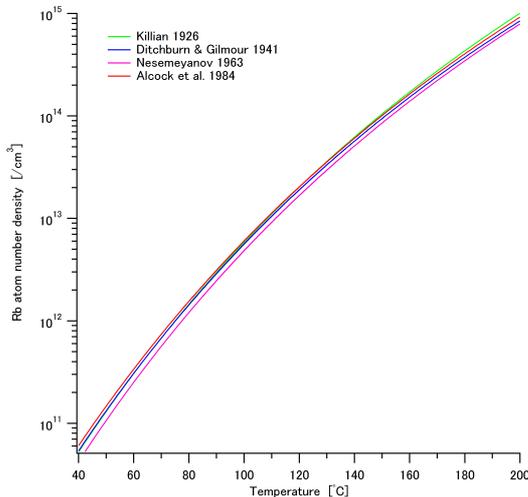


図 1 Rb 数密度と温度の関係。

Killian 1926 : Thomas J. Killian, "Thermionic phenomena caused by vapors of rubidium and potassium," Phys. Rev. 27, 578 (1926).

Ditchburn & Gilmour 1941 : R. W. Ditchburn and J. C. Gilmour, "The Vapor Pressures of Monoatomic Vapors," Rev. of Mod. Phys. 13, 310 (1941).

Nesemeyanov 1963 : A. N. Nesemeyanov, "Vapor pressures of the Chemical Elements," Elsevier, New York, 1963.

Alcock et al. 1984 : C. B. Alcock, V. P. Itkin, and M. K. Horrigan, "Vapor Pressure of the Metallic Elements," Canadian Metallurgical Quarterly 23, 309 (1984).

したがって、 ^3He 偏極セル内のガスの温度あるいは Rb の数密度を正確に測定できれば、それから x-factor を求めることができる。セル内ガスの温度は、セル表面温度を測定することで求めることができるが、実際はセル表面では場所により大きな温度むらがあり、この方法でセル内ガスの温度を精度よく見積もることは困難である。そこで、セル内 Rb の密度を直接的に測定する方法を用いる。Rb ガス中を光が透過するとき、透過光は Faraday rotation により偏光面が回転する。

その大きさは、以下の式に従う。

$$\theta_{Rb} = N_{Rb} \frac{le^2 \mu_B B}{18m_e hc} \left(\frac{4}{(\Delta_{1/2})^2} + \frac{7}{(\Delta_{3/2})^2} - \frac{2}{\Delta_{1/2}\Delta_{3/2}} \right)$$

$$\Delta_{1/2} = \nu - \nu_{1/2} = c \left(\frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_{1/2}} \right)$$

$$\Delta_{3/2} = \nu - \nu_{3/2} = c \left(\frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_{3/2}} \right)$$

θ_{Rb} : rotation angle
 N_{Rb} : Rb number density
 l : Rb thickness
 e : electron charge
 μ_B : Bohr magneton
 B : magnetic flux density
 m_e : electron mass
 h : Plank constant
 c : speed of light
 ν : frequency of transmission light
 λ : wavelength of transmission light
 $\nu_{1/2}$: frequency at the Rb D₁ resonance
 $\nu_{3/2}$: frequency at the Rb D₂ resonance
 $\lambda_{1/2}$: wavelength at the Rb D₁ resonance
 $\lambda_{3/2}$: wavelength at the Rb D₂ resonance

式からわかるように、Rb の吸収線付近では Faraday rotation が大きくなるため、吸収線付近で Faraday rotation を測定すれば、高精度で Rb の密度が求められることができる。そこで、D₂ 吸収線付近で波長を調整することのできるレーザー光源を開発した(図 2)。

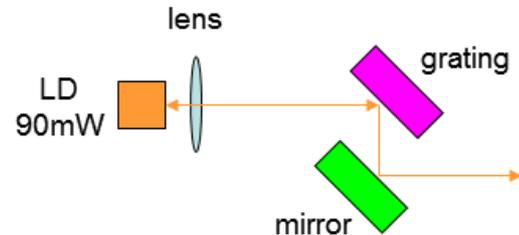


図 2 半導体レーザー (LD) と holographic grating を用いた Littrow configuration による波長可変半導体レーザー光源。

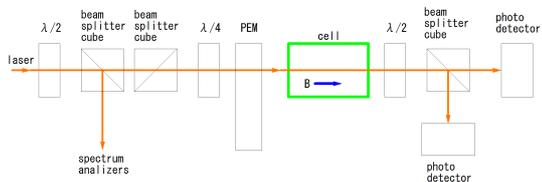


図 3 Faraday rotation 測定の光学系。/2、/4 は、各々 1/2、1/4 波長板。

レーザーの Faraday rotation は、光弾性変調器 PEM、偏光ビームスプリッター、波長板、光強度計を用い測定する。開発した測定光学系の概要を図 3 に示す。入射レーザーは線偏光で、光量調整のため 1/2 波長板 (/2) を透過させ、次段の偏光ビームスプリッター 2 個で、偏光面が決められ、次の 1/4 波長板

(1/4)で円偏光になる。光弾性変調器 PEM は、偏光に動的な変調をかけ、それと同期した成分のみを光強度計 (photo detector) で検出することにより、バックグラウンド成分を取り除く。³He 偏極セルは、150 ~ 200 で保温し、かつレーザーと平行に磁場 B がかけられる。セル透過後の 1/2 波長板は、Faraday rotation による回転角の絶対値較正に用いる。テスト用のガラス製 ³He 偏極セルを用いて Rb による Faraday rotation を測定した例を図 4 に示す。³He 偏極セルは、厚さ (内側の長さ) 6.1 cm で、レーザーと平行に 4.5 mT の磁場を印加した。セル表面のある点に熱電対を接触させてセルの温度をモニターした (図 4 の TC)。

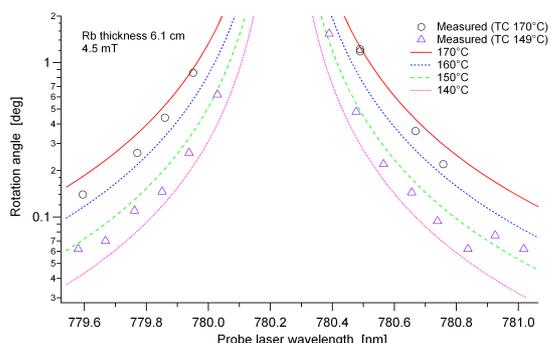


図 4 Rb による Faraday rotation の測定。縦軸は偏光面の回転角、横軸は入射レーザーの波長。実線、点線等は各温度における計算値。○ と △ は TC (熱電対によるセル表面温度) が 170 及び 149 °C での実測値。

図 4 の測定例では、TC 170 °C に対して、Rb の数密度から計算した温度は 165 °C 程度、TC 149 °C に対しては Rb 145 °C 程度となっている。

以上、x-factor 測定のためのシステムは成功裏に構築できた。

(2) 単結晶セルの試作

単結晶セルの材料としてサファイアを用いた。一般に、単結晶は結晶軸により熱膨張率が異なるため、複数の単結晶を接続する場合、各々の結晶軸をそろえないとうまくつなげることができない。あるいは、熱膨張収縮により大きな歪みが生じ割れや分離をおこしてしまう。サファイアの場合、C 軸方向の熱膨張率は $7.7 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ で、C 軸に垂直な方向では $7.0 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ となっており、10%もの差があるため、接続するサファイア同士の結晶軸は高い精度でそろえる必要がある。Diffusion bonding を用いたサファイア単結晶セルは過去に実現できていたが[3]、歩留まりが非常にわるく、また長時間の使用に耐えるものは実現できていない。Diffusion bonding によりサファイア同士を接合し、十分な強度を持ったセルとして実現する技術は確立されているものの、これを ³He 偏極セルとするためには、セルが清浄な状態で Rb や ³He ガス等

を導入し、かつ封じ切ることができるようにサファイア・セルにガラス管を接合しなければならない。しかし、このガラス管とサファイア・セルとの安定な接合ができず、実用的な ³He 偏極単結晶セルは実現できていない。本研究では、サファイア・セルとガラス管導入部とを金属 O リングでシールすることにより ³He 偏極セルとしての実現を目指した。セルとガラス管導入部のフランジ面に内部がコイルスプリングとなっている金属 O リングをはさみ、専用のクランプで固定する。図 5 に接続部の断面図を示す。

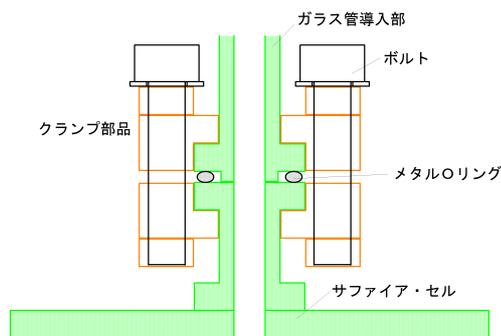


図 5 サファイア・セルとガラス管導入部との接続部断面図。

図 5 に見るよう、ガラス管導入部のフランジ側に突起をだし、金属 O リングとセル内 ³He ガスとの接触面積を可能な限り小さくして、金属 O リングによる ³He 偏極緩和を抑えている。また、クランプ部品やボルト類も非磁性である真鍮やチタンを使用している。一方、フランジ面には金属 O リングの固定により応力がかかるが、これについては、金属 O リングの規定圧力や材料強度を検討し、ボルト締結時にトルクの管理をして十分なシールを得られるよう設計した。実際、室温で金属 O リングのシールテストを複数回行い、十分な真空シール効果を確認した。その後、セル内を清浄にするため ³He 偏極時と同程度の温度 150 ~ 200 °C で真空ベーキングを行ったところ、サファイア・フランジ面に割れが生じた。複数のセルについて同様のベーキング処理を施したが、同様にサファイア・フランジ面の割れが生じ、³He 偏極セルとして ³He ガス等の導入まで実現できなかった。基本的には、各材料の熱膨張率を考慮してフランジ面にかかる圧力を設計しているが、金属 O リングの特性から不確定な部分もあり、あるいはサファイア・セル製作時の内部応力の変化からフランジ面の割れが生じてしまったのかもしれない。

結論としては、本研究期間中に単結晶セルに Rb および ³He を導入することが実現できなかった。しかし、本研究により x-factor を測定するシステムは完成したので、³He 偏極単結晶セルさえ実現できれば、その性能評価を進めることができる。³He 偏極用単結晶セ

ルの開発研究は今後も継続して行う予定で、具体的には、サファイア・セルとガラス管導入部との接続シールを別材料や別形状の Oリングとする、あるいはこの接続に耐熱性の接着剤を使用するなどの検討やテストを継続する。SEOP での ^3He 核偏極では、x-factor の存在は世界的にも大きな謎となっており、また、これによる ^3He 偏極率の頭打ちも大きな問題として立ちはだかっている。その解決あるいは克服は、 ^3He 核偏極を利用した研究に質的な転換を及ぼす可能性を秘めており、今後の発展は世界的に注目を集めている。 ^3He 偏極用単結晶セルの継続的な開発研究は重要なテーマであることに間違いなく、今後も精力的に研究を続けていく所存である。

[2] B. Chann, E. Babcock, L. W. Anderson, and T. G. Walker, "Measurements of ^3He spin-exchange rates," *Phys. Rev. A* 66, 032703 (2002).

[3] Y. Masuda, T. Ino, V. R. Skoy, G. L. Jones, " ^3He polarization via optical pumping in a birefringent cell," *Appl. Phys. Lett.* 87, 053506 (2005).

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5件)

T. Ino, G.N. Kim, M.W. Lee, S.M. Lee, J.Y. Kim, S.W. Lee, V. R. Skoy, "Measurement of polarization of ^3He with mobile polarized ^3He neutron spin filter," *Nucl. Instrum. Methods B* 323, 87-90 (2014), 査読あり . DOI: 10.1016/j.nimb.2014.01.018

K. Ohoyama, T. Yokoo, S. Itoh, J. Suzuki, K. Iwasa, T. J. Sato, H. Kira, Y. Sakaguchi, T. Ino, T. Oku, K. Tomiyasu, M. Matsuura, H. Hiraka, M. Fujita, H. Kimura, T. Sato, J. Suzuki, H. M. Shimizu, T. Arima, M. Takeda, K. Kaneko, M. Hino, S. Muto, H. Nojiri, C. H. Lee, J. G. Park, and S. Choi, "Basic Concepts of Polarisation Analysis for Neutron Chopper Spectrometer POLANO at J-PARC," *J. Phys. Soc. Jpn.* 82 (2013) Supplement A SA036, 査読あり . DOI: 10.7566/JPSJS.82SA.SA036

Takashi Ino, Yasushi Arimoto, Hiroshi Kira, Yoshifumi Sakaguchi, Takenao Shinohara, Kenji Sakai, Takayuki Oku, Kazuhisa Kakurai, Kenji Ohoyama, "Precision Magnetic Field Mapping for the ^3He Neutron Spin Filter," *Physics Procedia* 42, 183-190 (2013), 査読あり . DOI: 10.1016/j.phpro.2013.03.193

Sungman LEE, Seung Wook LEE,

Takashi Ino, Vadim R. SKOY, Manwoo LEE, and Guinyun KIM, "A compact spin-exchange optical pumping system for ^3He polarization based on a solenoid coil, a VBG laser diode, and a cosine theta RF coil," *Journal of the Korean Physics Society* 62, 419-423 (2013), 査読あり . DOI: 10.3938/jkps.62.419

Takashi Ino, Yasushi Arimoto, Hirohiko M. Shimizu, Yoshifumi Sakaguchi, Kenji Sakai, Hiroshi Kira, Takenao Shinohara, Takayuki Oku, Jun-ichi Suzuki, Kazuhisa Kakurai and Lieh-Jeng Chang, "A compact SEOP ^3He neutron spin filter with AFP NMR," *J. Phys.: Conf. Ser.* 340 012006 (2012), 査読あり . DOI: 10.1088/1742-6596/340/1/012006

[学会発表](計5件)

Takashi Ino, "Polarized ^3He neutron spin filter - development and application," The 12th Korea-Japan Meeting on Neutron Science, February 3-6, 2013, University of the Ryukyus, Okinawa, Japan, 招待講演.

Takashi Ino, "Precision magnetic field mapping for the ^3He neutron spin filter," PNCMI 2012, the 9th International workshop on Polarised Neutrons in Condensed Matter Investigations, July 2-5, Paris, France.

猪野 隆, 「韓国研究用原子炉 HANARO に於ける ^3He 中性子スピフィルターの開発」日本物理学会、2012年3月25日、関西大学

猪野 隆, 「 ^3He 中性子スピフィルターによる偏極中性子散乱実験の最適化を考えるその二」日本物理学会、2011年9月22日、富山大学

Takashi Ino, "A compact SEOP ^3He neutron spin filter with AFP NMR," ECNS 2011, the 5th European Conference on Neutron Scattering, July 20, 2011, Prague, Czech Republic.

[図書](計0件)

該当なし

[産業財産権]

該当なし

[その他]

<http://nop.kek.jp/Zope2/Home/hgdjyv/m4kf4c>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

猪野 隆 (INO, Takashi)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・講師

研究者番号：10301722