

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 17 日現在

機関番号：82121

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2015

課題番号：24710105

研究課題名(和文)高性能偏極ヘリウム3生成技術の開発と応用の研究

研究課題名(英文) R&D on High-Performance Helium-3 Polarizing Technique and Polarized Helium-3 Neutron Spin Filter

研究代表者

吉良 弘(KIRA, HIROSHI)

一般財団法人総合科学研究機構(総合科学センター(総合科学研究室)及び東海事業・利用研究促進部・技師)

研究者番号：50400239

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：スピン交換光ポンピング法による ^3He 核偏極では、偏極の過程で利用しているRbの密度の低さが性能に対する制約の一つとなっている。そこで、ゼオライト中に分散させたRbを利用することで密度の問題を克服し、 ^3He ガス核偏極の効率を高める方法を提案し、実証実験を実施した。また、偏極 ^3He の応用として、パルス中性子対応の、大立体角検出器をカバー可能な偏極中性子回折測定用中性子スピナーライザーの開発を進めた。本研究で設計したOffline SEOP方式偏極 ^3He NSFアナライザーは、J-PARCのパルス中性子小角散乱装置のアナライザーとして採用されることが決定し、現在実機の製作が進んでいる。

研究成果の概要(英文)：In helium-3 nuclear spin polarization by the spin exchange optical pumping (SEOP) method, the low density of Rb used in the process of polarization is one of the factors that limit performance. Therefore, I proposed a new method that uses alkali metal loaded in zeolite in the SEOP method, and I conducted a demonstration experiment. I also proceeded with the development of the polarized ^3He neutron spin analyzer which can cover large solid angle detector banks. This polarized ^3He neutron spin analyzer has been determined to be installed to a small angle neutron scattering instrument in J-PARC.

研究分野：複合新領域

キーワード：ヘリウム3偏極 中性子偏極デバイス 偏極中性子 デバイス開発

1. 研究開始当初の背景

核スピンの偏極した ^3He ガスは、核スピンと反平行なスピンを持つ中性子に対しては非常に大きな吸収断面積を持つ一方で、平行なスピンを持つ中性子に対する吸収断面積は非常に小さいことから、物理の分野では従来の手法では難しかったパルス中性子ビーム対応の中性子スピントラップ(以下偏極 ^3He NSF)として利用可能である。偏極中性子回折測定は、磁性体やソフトマテリアルの研究において強力かつ重要な測定手段であり、世界各国において偏極装置の開発が進められている。

また、偏極 ^3He ガスは医療の分野でも超偏極 MRI の観測プローブとして肺の MRI 撮像に利用されるなど、近年その利用が急速に広まり重要性が増している。一方で ^3He ガスの供給量は非常に限られており、近年は世界的に深刻な ^3He ガス不足が続いている。偏極 ^3He ガスを用いた中性子偏極デバイスや超偏極 MRI では、 ^3He ガスの偏極度が高ければ高いほど性能が高まり、 ^3He ガスの効率的な利用につながることから、高性能な偏極 ^3He 生成装置の開発が急務である。

^3He ガスの偏極は、これまでスピン交換光ポンピング法 (Spin Exchange Optical Pumping, 以下 SEOP) などにより達成されてきた。SEOP 法では、 ^3He ガスを少量の Rb、窒素ガスとともにガラス製のセルに封入する。Rb を気化する目的で、このガラスセルを 160 ~ 200 に加熱し、さらに 20G 程度の均一な外部磁場を加える。そこへ外部より特定の波長の円偏光したレーザーを照射し、光ポンピングにより Rb の電子スピンを偏極させ、スピン交換により ^3He 原子核へ偏極を移す。このとき、Rb の密度が低いことと、電子スピンの偏極した Rb 原子が ^3He 原子核を偏極させる効率が低いことが、最終的な ^3He 偏極率を制限する要因の一つとなっている。

2. 研究の目的

(1) 本研究は ^3He 原子核偏極率をより高めることを目指すものである。上述の通り従来の Rb を使用した SEOP では、Rb の密度の低さが最終的な ^3He 偏極率を制限する要因の一つである。そこで、光ポンピングにゼオライト中に分散させた Rb を用いることで密度を増やし、偏極性能を高める基礎研究を行う。

(2) 偏極 ^3He NSF の応用研究として、パルス中性子対応の、大立体角検出器をカバー可能な偏極中性子回折測定用中性子スピントラップの開発を目指す。その際、限られた出力のレーザーで大きなセルに収めた ^3He ガスを効率よく偏極する必要があるが、前述の通り、従来の Rb を使用した SEOP では、Rb 原子が ^3He 原子核を偏極させる効率が低いことがネックとなる。そこで、K と Rb を混合して光ポンピングを行う K/Rb Hybrid SEOP 方式を採用する。

3. 研究の方法

(1) 本研究では、市販のゼオライト LTA (組成式 $\text{Na}_{12}\text{Al}_{12}\text{Si}_{12}\text{O}_{48}$) を使用した。このゼオライト LTA を、KCl 水溶液中で攪拌することでカチオンを K^+ に置換した後、濃度を調整した RbCl 水溶液中で攪拌することでカチオンの半数を Rb^+ に置換したゼオライト LTA (組成式 $\text{Rb}_6\text{K}_6\text{Al}_{12}\text{Si}_{12}\text{O}_{48}$ 、以下 $\text{Rb}_6\text{K}_6\text{-LTA}$) を作製した。この $\text{Rb}_6\text{K}_6\text{-LTA}$ を、ターボ分子ポンプで真空引きしながら 500 で 36 時間加熱し脱水した後、適量の Rb とともにガラス管に封入、160 でアニールし、Rb を気相で $\text{Rb}_6\text{K}_6\text{-LTA}$ へ導入した。Rb の導入量は組成式あたり 4 原子である ($\text{Rb}_4/\text{Rb}_6\text{K}_6\text{-LTA}$ 、以下 $\text{Rb}/\text{RbK-LTA}$)。Rb/RbK-LTA では、cage 内部に Rb/K カチオニッククラスターが形成される。Rb/RbK-LTA の合成は磁化測定により確認する。この Rb/RbK-LTA を ^3He ガスとともにガラスセルに封入した試験セルを作製し、SEOP を試み、 ^3He 核スピン偏極率の時間発展を FID-NMR 法で確認する。

(2) 偏極中性子回折・散乱測定用の偏極 ^3He NSF は、主に偏極 ^3He ガスを収める GE180 ガラス製のセルと、均一な磁場を印可する磁場環境から構成される。偏極中性子回折・散乱測定において大立体角検出器をカバー可能な偏極 ^3He NSF アナライザーを実現するには、直径 7 ~ 10cm 程度の大きなガラスセルが必要であるが、このようなセルは ^3He 偏極時に内圧が上昇し破損する危険性が高い。そこで、有限要素法計算により安全なセルのデザインを決定する。また、従来の Rb を使った SEOP ではこのような直径の大きなセルを効率的に偏極することが出来ない。そこで、K と Rb を利用した Hybrid SEOP 方式のセルを製作する。K/Rb Hybrid SEOP では K:Rb=10:1 程度で ^3He 偏極効率が良いことが知られているので、作製したセルについて光吸収測定により K と Rb の比率を確認する。最後に、J-PARC のパルス中性子回折・散乱装置のアナライザーとして利用することを念頭として、直径 10cm のセルに対して均一な磁場を印可できる磁場環境の設計を行う。

4. 研究成果

(1) Rb/RbK-LTA を用いた SEOP

まず、前述の方法で作製した Rb/RbK-LTA について磁化測定を実施したところ、約 4K で自発磁化の発現を確認できた。これは、予定通り cage 内部に Rb/K カチオニッククラスターが形成されたことを示唆する。この Rb/RbK-LTA を ^3He 、窒素とともに試験セルに封入した。

試験セルに充填した量は Rb/RbK-LTA が 127mg、 ^3He が 0.8atm、窒素が 0.08atm である。この試験セルに、ソレノイドコイルで 19.2G の均一な磁場を印可し、波長 794.7nm の円偏光したレーザーを照射し、室温で SEOP を試みた(図 1)。しかし、有意な FID-NMR 信

号を観測することは出来なかった。一般に固体のスピン緩和時間は気体に比べ非常に短い。このため、Rbの偏極率が十分高くならなかった可能性がある。今後は、セルを加熱しRbを一部気化させて、再実験を試みたい。

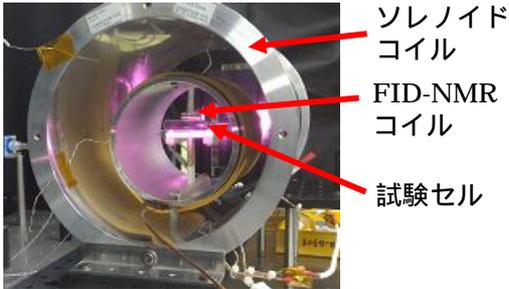


図1 試験セルの光ポンピング時の様子

(2) 偏極 ^3He NSF の応用研究

最初に、セルの安全性の評価計算を行った。計算にあたり、図2-1に示すパラメータを仮定した。計算は窓がフラットの場合について行い、外気圧は1atmとした。

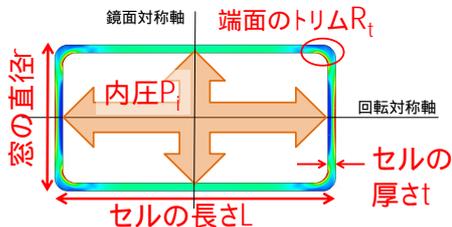


図2-1 セル応力計算のパラメータ

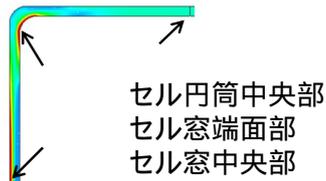


図2-2 特徴的な部位

各パラメータを系統的に変化させ、最大応力の変化を調べ整理したところ、特徴的な部位として図2-2に示す3カ所が挙げられ、それぞれ以下のような関係式があることが明らかとなった。

$$\begin{aligned} \sigma_1 &\propto (P_i - 1) \cdot r^2 \cdot t^{-2} \\ \sigma_2 &\propto (P_i - 1) \cdot r^2 \cdot t^{-2} \cdot R_t^{-1/4} \\ \sigma_3 &\propto (P_i - 1) \cdot (r - 1.2R_t)^2 \cdot t^{-2} \end{aligned}$$

ガラスセルに加わる応力は、全ての部位で充填圧力と外圧の差($P_i - 1$)とセルの直径 r の二乗に比例し、ガラスの厚さ t の二乗に反比例することが分かった。また、応力が特に集中するのは、窓中心部と窓の縁部分であることも明らかとなった。セルの安全性を高めるには、窓中心部と窓の縁部分の応力を小さくする必要がある。そのためには充填圧力を下げるか、セルの直径を小さくするか、ガラスの厚さを増せばよい。しかし、充填圧力は実験の要請、セルの直径は検出器の立体角によって決定されており、セル製作の都合で変更す

ることはできない。また、端面のトリム R_t は通常5~15mm程度で、これより大きく取ると実験上都合が悪い。結局、実験で必要とされるセルのサイズ、充填圧力を決定すると、自動的に安全なセルの厚み t が決定されることが分かった。一方で、各所に加わる応力はセルの長さによらないことも確認された。

この計算から、100mm×L100mm、 ^3He ガス充填圧力3atm(ポンピング時は6atm)、安全係数2のセルを作る場合、 $t=5\text{mm}$ とする必要があることが分かった(充填圧力3atmは、偏極 ^3He NSFとして運用が想定される最大圧力である)。

このようなセルの重量は1kgにも達し、製作上や実験上の取扱いに困難が生じる。そこでガラスの厚みを増すのではなく、窓形状を変更して応力を分散させる、高耐圧セルの検討を行った。その結果、窓中心部を直径の5%膨らませる(凸窓)かへこませる(凹窓)と、ガラスの厚さを半分程度まで減ずることが可能であることが分かった(図3)。

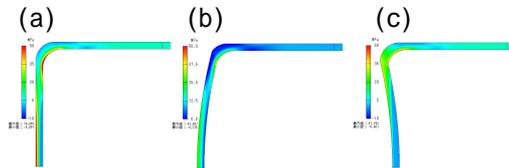


図3 (a)平面窓、(b)凸窓、(c)凹窓の計算
100×L100mm, $R_t=8\text{mm}$, 内圧6atm, $t=3\text{mm}$ の場合。窓中央部を(b)は5mm膨らませ、(c)は5mm凹ませた。

本研究では、69×L79mmで、一方の窓を凸窓、他方を凹窓とした $t=2.7\text{mm}$ のK/Rb Hybrid Cellを試作した(図4)。製作時には、KとRbは、それぞれ別のアンブルから気相で導入後、窒素、 ^3He を順に導入し封入した。KとRbが導入されていることを確認する目的で、完成したセルで光吸収測定を実施した。

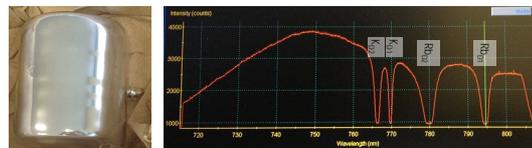


図4 製作したセル(左)と光吸収測定結果(右)

試作の結果、凹窓のガラス工作が難しく量産に向かないことが判明したので、これ以降製作するセルは両側凸窓とした。安全性評価計算の妥当性を確認する目的で、実際のセルとほぼ同じ両側凸窓の耐圧試験専用セルを別途製作し、7.5気圧までの加圧試験を実施、破損しないことを確認した。

アルカリ金属をガラスセルに気相で導入する際は、K:Rb=10:1となるように制御を試みたが、非常に困難であることが分かった。図4の光吸収測定からは、KよりもRbが多く入っている様子が見てとれる。そこで、予めHe雰囲気グローブボックスでK:Rb=10:1で混

ルターの応用と磁気シールドの開発、物構研サイエンスフェスタ 2013/第 5 回 MLF シンポジウム/第 31 回 PF シンポジウム、2014 年 3 月 18 日、つくば

吉良弘, 坂口佳史、他

In-situ SEOP 方式偏極 ^3He 中性子スピフィルター
の応用と磁気シールドの開発、日本中性子科学会第 13 回年会、2013 年 12 月 12 日、
柏

吉良弘, 坂口佳史、他

In-situ SEOP 方式 ^3He 偏極フィルター用磁
気シールドの設計、日本中性子科学会第 12
回年会、2012 年 12 月 11 日、京都

H. Kira, Y. Sakaguchi, *et al.*

Magnetic Shield Design of In-situ SEOP
Polarized ^3He Neutron Spin Filter System,
9th International Workshop on Polarised
Neutrons for Condensed Matter
Investigations, 2012 年 7 月 4 日、パリ(フ
ランス)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉良 弘 (KIRA HIROSHI)

総合科学研究機構・東海事業センター・利
用研究促進部・技師

研究者番号：50400239