

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 8 日現在

機関番号：34535

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：平成 21 年度～平成 23 年度

課題番号：21340067

研究課題名（和文）偏極 ^3He ガス生成による ^3He イメージング技術研究課題名（英文）Technology of ^3He Imaging with polarized ^3He gas

研究代表者

田中正義（MASAYOSHI TANAKA）

神戸常盤大学・保健科学部・教授

研究者番号：70071397

研究成果の概要（和文）：

超偏極 ^3He ガスを造影剤とした ^3He -MRI(磁気共鳴イメージング)を目指して、極低温と、強磁場による強制偏極法（BFM: Brute Force Method）による超偏極 ^3He ガス生成法の開発を行った。今回 BFM を用いたのは、従来のレーザー光ポンピング法では超偏極 ^3He ガスの収率が高々10/日程度しか期待できないが、BFM ではその千倍の収率が期待できるからである。

極低温（ $\sim 10\text{mK}$ ）を実現するのに、オランダ・ライデンクライオジェニクスから導入した $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機（DRS2500）を用い、17 T の強磁場発生には超電導ソレノイドコイルを用いた。本研究では、BFM で生成された超偏極固体 ^3He 生成用のポメランチュクセル、減偏極が起こらないように短時間で気化させる急速融解法を開発し、予備実験を行っている。

研究成果の概要（英文）：

We have developed a method to create the hyperpolarized, i.e., highly polarized ^3He gas for the ^3He -MRI using the Brute Force Method (BFM), where an extremely low temperature ($\sim 10\text{mK}$), and a strong magnetic field ($\sim 17\text{T}$) are employed. The reason why we use the BFM is that the production rate of the hyperpolarized ^3He created by the well established laser optical pumping is limited to about 1 liter/day, while that for the BFM is expected to exceed 1000 liter/day.

Currently, we use the $^3\text{He}/^4\text{He}$ cryogenic system (DRS2500) introduced from the Leiden Cryogenics, the Netherlands to realize a temperature lower than 10mK together with a Pomeranchuk cell, and the superconducting solenoidal coil to realize a strong magnetic field of 17T. We are almost ready to check the validity of the vaporization of the hyperpolarized solid ^3He through a liquid phase without sizable spin relaxation by use of a method called a rapid melting method. We have started a preliminary experiment toward the production of the hyperpolarized ^3He gas.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	8,300,000	2,490,000	10,790,000
2010 年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
2011 年度	2,200,000	660,000	2,860,000
年度			
年度			
総計			18,980,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学(分科)・素粒子原子核宇宙線(細目)

キーワード：超偏極 MRI、強制偏極法、高速融解法

1. 研究開始当初の背景

本研究は、元来大阪大学核物理研究センターで開発されていた BFM による偏極 HD 標的生成技術の応用から始まった。当時すでに、欧米ではレーザー光ポンピング法による ^3He -MRI が主流であったが、生成率が少なく、実用化に至っていなかった。一方、我々の BFM は、圧倒的に高い収率が期待でき、今後診断で使われる可能性が高いと判断した。

2. 研究の目的

本研究の目的は、BFM という新しい偏極原理に基づく超偏極 ^3He ガス生成法を開発し、超偏極 ^3He -MRI 撮像を確立する。

3. 研究の方法

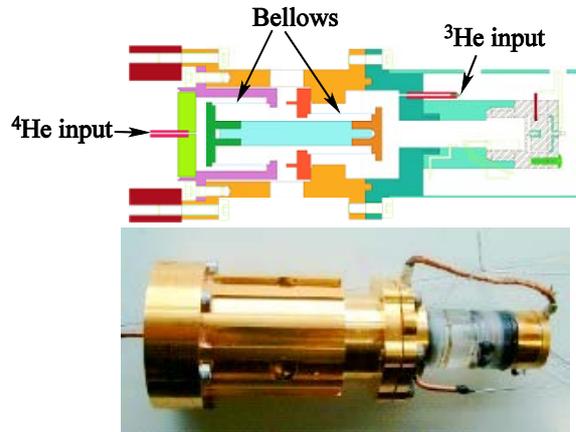
研究方法は、大阪大学核物理研究センターに設置されている既存の偏極 HD 生成装置 ($^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機 + 超電導ソレノイドコイル) を利用し、ポメラランチュクセル、高速融解装置、偏極 ^3He ガス取り出し装置、偏極度測定用 NMR 装置を配置した系を使い、定量的に固体、液体、気体の ^3He の偏極度を測定する準備を進め、予備的なデータを得た。

イルの中心部に来るように設計されている。

(2) 超偏極 ^3He ガス生成手順

超偏極 ^3He ガス生成は、高速融解装置の熱スイッチ ON とし DRS2500 の混合室と熱接触させて、10mK 程度までポメラランチュクセルを冷却する。 ^3He は液化する。

次に、ディップスティックを使い加圧した ^3He ガスをポメラランチュク



Pomeranchuk cell

図2 ポメラランチュクセル。上図は構造図、下図はセル全体の写真

セルに注入してゆくと、固化が始まるが、ポメラランチュクセル付近のキャピラリーチューブは固化した ^3He で閉塞

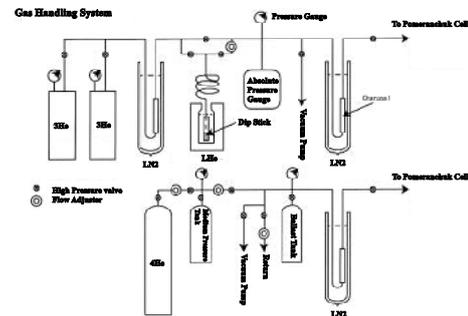


図3 ガスハンドリング系。上側が ^3He で、下側が ^4He の制御に使われる。

されるので ^3He 側からの加圧機能が失われる。そこで、 ^4He セル側から ^4He ガスを加圧してピストンで液体 ^3He を圧縮して、 ^3He セル内の ^3He

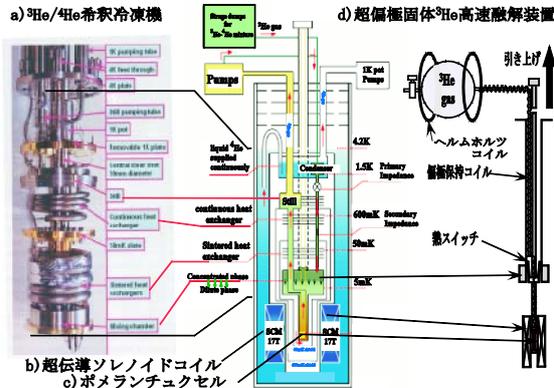


図1 偏極 ^3He ガス生成装置の全体図。右端の図は高速融解装置の概念図。

以下に、研究方法を具体的に記述する。

(1) 装置概略

今回製作した装置と既設の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機 (DRS2500)、超電導ソレノイドコイル、高速融解装置 (右端) の配置概略図を図1に示す。先端に超高純度銅製の熱伝導体であるコールドフィンガーを介してポメラランチュクセル(図2参照)が装着された高速融解装置は DRS2500 の中心軸に沿って挿入され、セル部分がソレノイドコ

固化を促進する。図3に、今回使用したガスハンドリング系の写真を示す。

次に、超電導ソレノイドコイルに電流を印加し、磁場を17Tまでかけ、固体 ^3He を強制偏極法で超偏極固体 ^3He を生成する。

超偏極固体 ^3He の気化には高速融解装置を用いる。磁場を1T程度に下げ、熱スイッチを遮断し、ポメラランチュセルを高温部に移動し、 ^3He セルの減圧をすると、固体 ^3He は、更に温度が上昇し液化する。固体 ^3He をヒータを用いて気化し、外部に取り出される。



図4 コールドフィンガーに取り付けられたポメラランチュセル 先端のポリカーボネートが ^3He セル。

取り出された ^3He ガスは弱磁場が、かけられ減偏極を防いだ保存容器に回収され、MRIに造影剤として使用される。外部に超偏極 ^3He ガスを取り出す過程で減偏極を避けることは重要であるので、検討した。

4. 研究成果

(1) 加圧テスト

ポメラランチュセルは、10mKという極低温の環境下で高圧の(30気圧以上)ガスを操作しなければならず、かなり困難な研究を強いられた。室温での加圧に耐えられても極低温では漏れてしまう問題が長い間、解決せず、本研究の進展を遅らせてしまった。その漏れの原

因は接合部に使用したエポキシ(スタイキキャスト)や半田付けが低温・高圧では耐えられない事だったので、接触面の密着度を上げて慎重な仕上げを何度か試み、漏れをなくすることにある程度成功した。

図4は $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機

(DRS2500)に取り付けたポメラランチュセル(最終バージョンではない)の写真である。

(2) ^3He 偏極測定結果

本研究の第1ステップは、超偏極固体 ^3He の生成である。そのため、ポメラランチュセルをDRS2500のコールドフィンガーに取り付け、DRS2500を作動させ、低温に冷却していった。今回は、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍の動作まで入らず、 ^3He 1Kポットと ^3He のジュールトムソン効果を利用して、0.6Kまでの測定を行った。

図5は、1.2Tでの ^3He のNMR信号測定の結果である。横軸は、 ^3He の温度、縦軸は熱平衡(TE)を仮定した偏極度を表す。図の実験値はNMR信号の大きさを理論曲線に合わせたもので、絶対値の測定はまだ行っていない。(相対値は正しい。) ^3He の圧力が0.3bar (~0.3気圧)

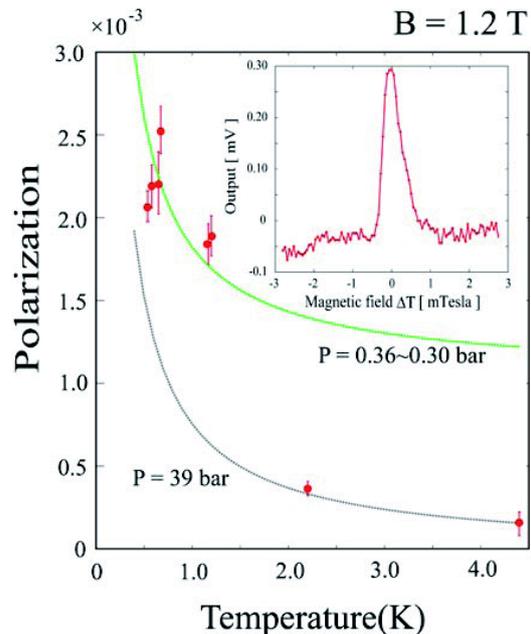


図5 ^3He 偏極度と温度との関係。図の曲線は熱平衡を仮定した ^3He 偏極度 (詳細は本文)

付近では ^3He の状態は、液体と考えられるが、39bar (~39気圧)になると、液相でも気相でもない状態になり、偏極度に変化はなく密度が液体よりも下がり、結果としてNMR信号が小さくなると考えられる。圧力をかける過程で、漏れが発

生し、実験が中断した。今後は固体 ^3He の固体化に成功させ、大きな偏極度があることを確認する予定である。

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 8 件)

- ① M. Tanaka, T. Kunimatsu, M. Fujiwara, H. Kohri, T. Ohta, M. Utsuro, M. Yosoi, T. Akenaga, S. Imoto, K. Takamatsu, K. Ueda, J. P. Didelez, G. Frossati, and A. de Waard, "Feasibility study on the nuclear spin imaging (NSI)", 査読あり, 2012, Proceedings of Science(POS), Italy, in press.
- ② T. Ohta, S. Bouchigny, J. P. Didelez, M. Fujiwara, K. Fukuda, H. Kohri, T. Kunimatsu, C. Morisaki, S. Ono, eda, G. Rouille, M. Tanaka, K. Ueda, M. Uraki, M. Utsuro, S. Y. Wang, M. Yosoi, "Distillation of hydrogen isotopes for polarized HD targets", 査読あり, Nucl. Instr. Meth., **A664** (2012) 347-352 (オランダ・エルゼビア出版).
- ③ T. Ohta, S. Bouchigny, J. P. Didelez, M. Fujiwara, K. Fukuda, H. Kohri, T. Kunimatsu, C. Morisaki, S. Ono, G. Rouille, M. Tanaka, K. Ueda, M. Uraki, M. Utsuro, S. Y. Wang, M. Yosoi, 査読あり, "HD gas analysis with gas chromatography and quadrupole mass spectrometer", Nucl. Instr. Meth., **A640** (2011) 241-246 (オランダ・エルゼビア出版).
- ④ T. Ohta, M. Fujiwara, K. Fukuda, H. Kohri, T. Kunimatsu, C. Morisaki, S. Ono, M. Tanaka, K. Ueda, M. Uraki, M. Utsuro, S. Y. Wang, and M. Yosoi, "Development of portable NMR system for polarized HD target", 査読あり, Nucl. Instr. Meth., **A633** (2011) 46-50 オランダ・エルゼビア出版).
- ⑤ H. Kohri, M. Fujiwara, M. Fukuda, T. Hotta, T. Kunimatsu, C. Morisaki, T. Ohta, S. Ono, K. Ueda, M. Uraki, M. Utsuro, M. Yosoi, S.Y. Wang, S. Bouchigny, J. P. Didelez, G. Rouille, and M. Tanaka, "Polarized HD target for future Leps Experiments at Spring-8 in Japan", Int. J. Modern Phys. E (IJMPEA) (2010) 903-914.
- ⑥ M. Tanaka, T. Inomata, Y. Takahashi, M. Fujiwara, M. Yosoi, H. Kohri, T. Ohta, C. Morisaki, and T. Kunimatsu, "Production of

polarized ^3He gas by means of very low temperature and high magnetic field", Bulletin of Kobe Tokiwa University, 査読あり, **2012**, p.42-47.

<http://bulletin.kobe-tokiwa.ac.jp/>

_userdata/ktu_kiyou01_05.pdf

- ⑦ M. Tanaka, T. Kunimatsu, M. Fujiwara, H. Utsuro, M. Yosoi, S. Ono, K. Fukuda, K. Takamatsu, K. Ueda, J. P. Didelez, G. Frossati, and A. de Waard, "Nuclear spin imaging with hyperpolarized nuclei created by brute force method", 査読あり, J. Physics Conference Series **295** (2011) p.012167-1 - -5, IOP publishing.
- ⑧ M. Tanaka, T. Akenaga, K. Takamatsu, K. Ueda, T. Kunimatsu, M. Fujiwara, H. Kohri, T. Ohta, M. Utsuro, K. Fukuda, J. P. Didelez, G. Frossati, and A. de Waard, "Brute-force polarized solid ^3He and possible application to the production of polarized gas for medical use", Proceedings of PSTP2011, 2011, p.146-149, ISBN 978-5-86763-282-3.

[学会発表] (計 7 件)

- ① 発表者：國松貴之
題名：「MRI を用いた核スピニメージング法のための高偏極 ^3He ガス生成」
学会名：日本物理学会
年度：2010 年春季大会
会場：岡山大学
形態：口頭発表
- ② 発表者：國松貴之
題名：「MRI を用いた核スピニメージング法のための高偏極 ^3He ガス生成 II」
学会名：日本物理学会
年度：2010 年秋季大会
会場：九州工業大学
形態：口頭発表
- ③ 発表者：田中正義
題名：Polarized solid ^3He target created by the brute force method for medical use
学会名：14th International Workshop on Polarized Sources, Targets & Polarimetry
年度：2011 年 9 月 12-16 日
会場：ロシア、サンクトペテルブルグ
形態：口頭発表
- ④ 発表者：郡英輝
題名：Development of polarized HD target for LEPS experiment
学会名：14th International Workshop on Polarized Sources, Targets & Polarimetry

- 年度：2011年9月12-16日
会場：ロシア、サンクトペテルブルグ
形態：口頭発表
- ⑤ 発表者：田中正義
題名:Polarized solid ^3He target created
by the brute force method for
medical use
学会名：The 19th International Spin
Physics Symposium (SPIN2010)
年度：2010年9月27日—10月2日
会場：Institute for Nuclear Physics
(IKP), ドイツ
- ⑥ 発表者：田中正義
題名：Nuclear spin imaging with
hyperpolarized nuclei created
by brute force method
学会名：The 7th Workshop on Particle
Correlations and
Femtoscopia(WPCF2011)
年度：2011年9月20-24日
会場：東京大学小柴記念館
形態：招待講演
- ⑦ 発表者：田中正義
題名：核スピニング (NSI) 法
開発の現状
学会名：第2回総合スピン科学シンポジ
ウム
年度：2011年10月15-16日
会場：山形大学理学部
形態：口頭発表

[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.rcnp.osaka-u.ac.jp/~tanaka>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中正義 (TANAKA MASAYOSHI)

研究者番号：70071397

(2) 研究分担者

藤原 守 (FUJIWARA MAMORU)

研究者番号：00030031

(3) 研究分担者

郡 英輝 (KOHRI HIDEKI)

研究者番号：40448022

(4) 研究分担者

高松邦彦 (TAKAMATSU KUNIHICO)

研究者番号：80392017