科学研究費助成事業

研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 7 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) ·般財団法人総合科学研究機構(総合科学研究センター(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式を提案し、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ンアナ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

核スピンが偏極した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フィルター(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 が偏極した 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アナラ イザーの開発を目指す。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 Na₁₂Al₁₂Si₁₂O₄₈)を使用した。このゼオラ イト LTA を、KCI 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 RbCI 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 Rb_aK_a Al₁₂Si₁₂O₄₈、以下 Rb_aK_a-LTA)を作製した。 この Rb_eK_e-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 Rb₆K₆-LTA へ導入 した。Rbの導入量は組成式あたり4原子であ る (Rb₄/Rb₆K₆-LTA, 以下 Rb/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 2-2 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。

$$\sigma_1 \propto (P_i - 1) \cdot r^2 \cdot t^{-2}$$

$$\sigma_2 \propto (P_i - 1) \cdot r^2 \cdot t^{-2} \cdot R_t^{-1/4}$$

$$\sigma_3 \propto (P_i - 1) \cdot (r - 1.2R_t)^2 \cdot t^{-2}$$

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*=5mm とする必要 があることが分った(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 能であることが分った(図3)。



図3 (a)平面窓、(b)凸窓、(c)凹窓の計算 100×L100mm, Rt=8mm,内圧 6atm, t=3mm 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=2.7mm の K/Rb Hybrid Cell を試作した(図 4)。製作時には、 K と Rb は、それぞれ別のアンプルから気相で 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 雰囲気のグローブボックスで K:Rb=10:1 で混 合したアンプルを用意し、セルへの導入時に 比率の制御を必要としない手法を開発した。 最終的に、これらの改良を施した 69 × L121mm,充填圧力 1.5atm のセルを完成させ ることに成功した。

最後に、これらの大口径セルを偏極³He NSF アナライザーとして使用するための、磁場環 境の設計を進めた。SEOP ステーションで偏極 した後、装置に³He の偏極を維持したまま移 動、測定を行う Offline SEOP 方式を採用し た。Offline SEOP 方式の利点は、偏極システ ム全体ではなく偏極したセルと磁場環境の みを移動するので偏極³He NSF としてシステ ム全体の簡略化が可能となること、アナライ ザーとして用いる場合は測定中に偏極³He セ ルを加熱する必要がないので、試料をセル直 前に設置することが可能であり、検極可能な 立体角を大きく取ることができることであ る。

-方で、時間とともに³He 偏極率が低下す る点が問題となる。³He 偏極率の低下の主な 原因としては³He セル位置における不均一磁 場が挙げられる。実用に供するには、不均一 磁場による偏極³Heの緩和時間が200時間以 上であることが望ましい。このレベルになる と、地磁気を含む実験環境に存在する磁場も 問題となる。そこで磁気シールド(パーマロ イ B, t=0.1mm)により実験環境に存在する磁 場を遮蔽しつつ³He セルに一様性の高い磁場 を印可するソレノイドコイルを設計した。実 際の偏極中性子回折・散乱測定に使用するこ とを前提に、試料交換を行いやすいデザイン を採用した。 100×L100mm のセルに対し、 不均一磁場による緩和時間は 200 時間以上で ある。

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。





図5設計した偏極³He NSF 用磁場環境

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 2件)

<u>(1)H. Kira,</u> H. Hayashida, H. Iwase, et al., Demonstration Study of Small-Angle Polarized Neutron Scattering Using Polarized ³He Neutron Spin Filter, JPS Conf. Proc.,査読有, Vol. 8, 2015, 036008. DOI:

http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.8.03600 8

(2)H. Kira, Y. Sakaguchi, J. Suzuki, et al., Magnetic Shield Design of In-situ SEOP Polarized ³He Neutron Spin Filter System, Physics Procedia, 査読有, Vol.42, 2013, 200-205.

doi:10.1016/j.phpro.2013.03.195

〔学会発表〕(計 10件)

吉良弘、林田洋寿、他

0ffline SEOP 方式偏極ヘリウム3ガス中性子 スピンフィルター用の磁場環境の設計、2015 年度量子ビームサイエンスフェスタ、2016年 3月15日、つくば

吉良弘、林田洋寿、他

偏極³He 中性子スピンフィルターを使った 偏極中性子小角散乱デモ実験、日本中性子科 学会第 14 回年会、2014 年 12 月 11 日、札幌

<u>H. Kira</u>, T. Morikawa, *et al.* Current Status of the small and wide angle neutron scattering instrument TAIKAN at J-PARC, ICANS XXI, 2014 年 9 月 30 日、水戸

H. Kira, H. Hayashida, et al.

Design of Cylindrical Glass Cells for A SEOP Based Polarized ³He Neutron Spin Filter at J-PARC, Polarised Neutrons for Condensed Matter Investigations 2014, 2014年9月18日、シドニー(オーストラリア)

H. Kira, H. Hayashida, et al.

A Demonstration Study of Small Angle Polarized Neutron Scattering Using a Polarized ³He Neutron Spin Filter, The 2nd International Symposium on Science at J-PARC, 2014年7月14日、つくば

<u>吉良弘</u>,坂口佳史、他 In-situ SEOP 型偏極³He 中性子スピンフィル ターの実用化に関する研究、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19日、 つくば

<u>吉良弘</u>,坂口佳史、他 In-situ SEOP 方式偏極³He 中性子スピンフィ 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

<u>吉良弘</u>,坂口佳史、他 In-situ SEOP 方式偏極³He 中性子スピンフィ 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

<u>吉良弘</u>,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)

 研究組織
 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