

# 山形大学での 偏極ターゲット開発

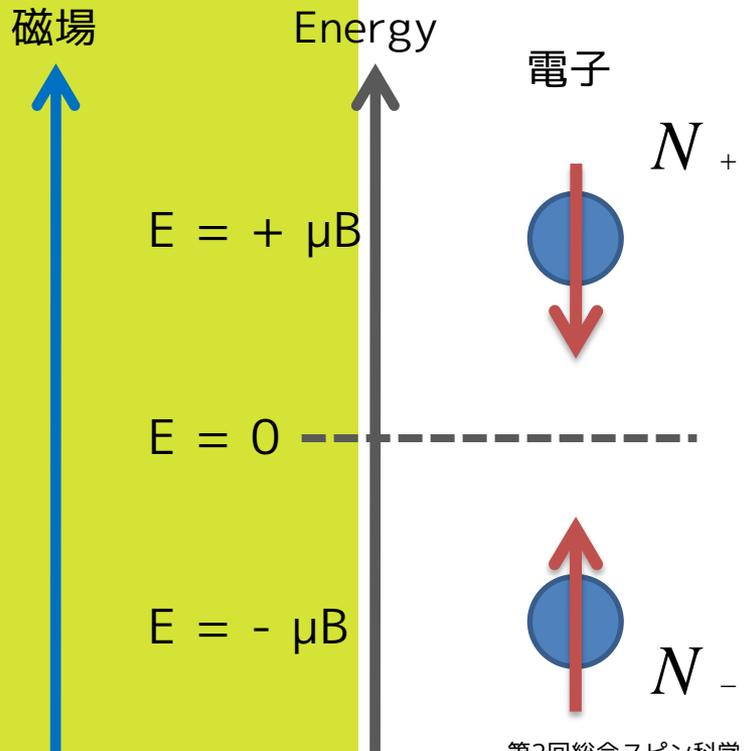
山形大学大学院理工学研究科 松田洋樹

# 内容

- ◎ DNP - 能動核偏極法
- ◎ ESR - 電子共鳴スピン
- ◎ He3-He4 希釈冷凍機
- ◎ これまでの冷却実験
- ◎ NMR測定
- ◎ 偏極標的開発@山形大学
- ◎ まとめ&将来計画？

# 能動核偏極法 – 概要

## ◎ Dynamic Nuclear Polarization



$$\text{Polarization} = \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-}$$

熱平衡時: スピン分布はBoltzmann 分布

$$= \tanh\left(\frac{\mu B}{kT}\right)$$

Magnetic Moment  $\mu$

電子 : 陽子  $\approx 1000 : 1$

$\Rightarrow$  Pol ; **93% : 0.26%** @ (1K, 2.5T)

# 能動核偏極法 - 熱平衡

陽子を100%偏極させるには？

- ◎ 磁場を上げる
- ◎ 温度を下げる

Polarization  $\approx$  100% @ 1mk, 10T

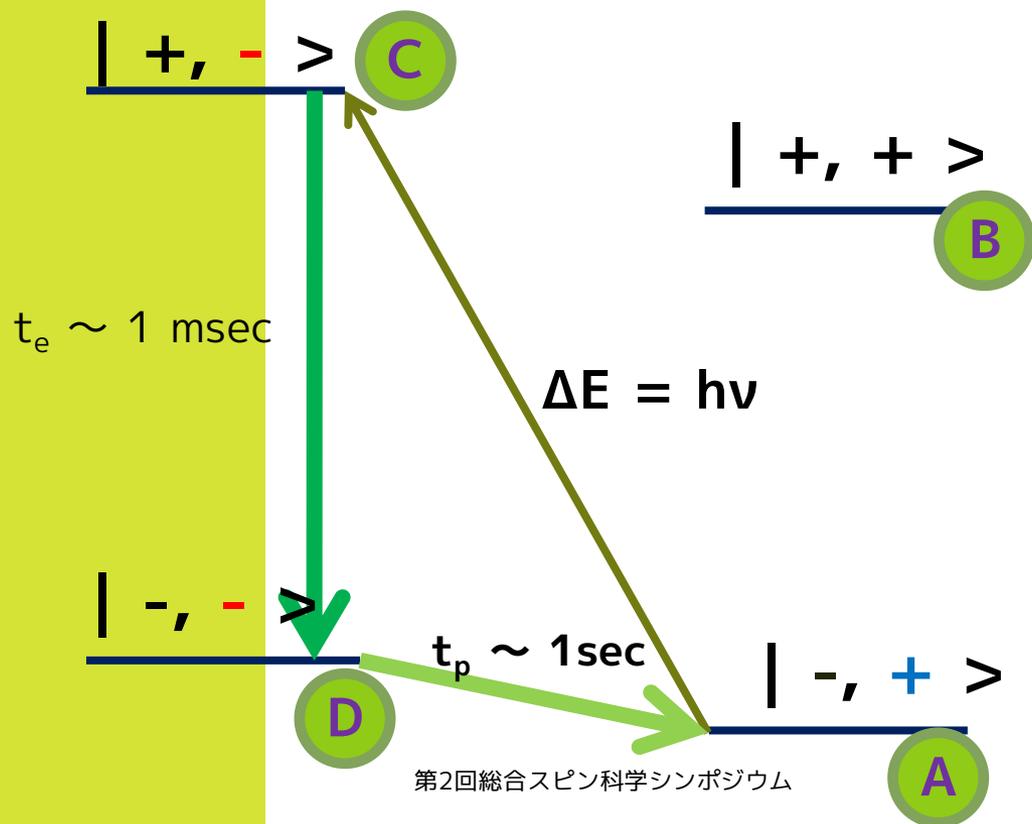
いろいろと考えると、この方法は現実的ではない…

# 能動核偏極法 - 簡単な説明

“能動的”に電子のスピンを陽子に“移”せばよい

スピン状態: |電子, 陽子>

Energy



電子スピン緩和時間  $t_e$   
 : 陽子スピン緩和時間  $t_p$   
 = 1 : 1000

$A \rightarrow C \rightarrow D \rightarrow A \rightarrow \dots$   
 Aに対してDの占有数が大きくなる  
 $\Leftrightarrow$  偏極度向上

# ESR – 電子スピン濃度測定

DNPでは、電子スピン濃度が重要

→ **電子スピン共鳴(Electron Spin Resonance)**を利用

原理？

磁場中でゼーマン効果により電子のエネルギー準位が分離

→ そのエネルギー差に対応するエネルギーを与える

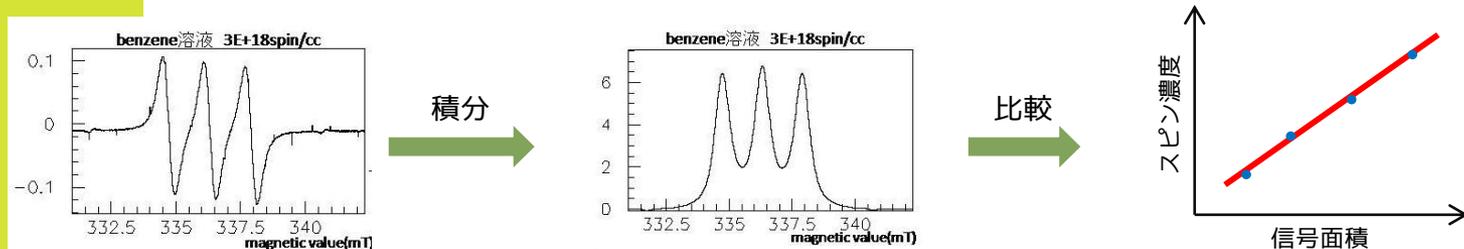
→ 吸収共鳴

$$E = h\nu = \mu B$$

# ESR – 電子スピン濃度測定

## 実際の測定

1. 一定の電磁波を加え，磁場を変化させる
2. 反射された電磁波を測定
3. 共鳴吸収が起こると，反射が変化  
スピン濃度  $\propto$  信号強度
4. スピン濃度がわかっている物質の信号と比較して，  
サンプルのスピン濃度を見積もる



# ESR – 装置概要

## 装置概要

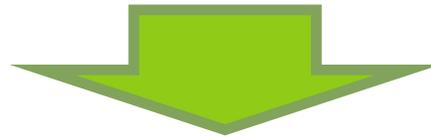
- ◎ JEOL製
- ◎ 2009年度末 納入
- ◎ 液体窒素，液体ヘリウム温度での測定が可能



# He3-He4 希釈冷凍機

極低温(1k以下)を可能にする冷凍機に求められるもの

- ◎ 大きな冷却能力(cooling power)  
→ マイクロ波の出力(数十mW)をとれる
- ◎ 運用・整備が容易なもの  
→ 繰り返しの運用に耐え切れる



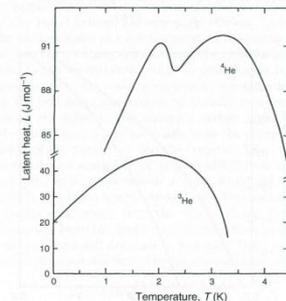
He3-He4 希釈冷凍機(He3-He4 Dilution Cryostat)

# He3-He4 希釈冷凍機

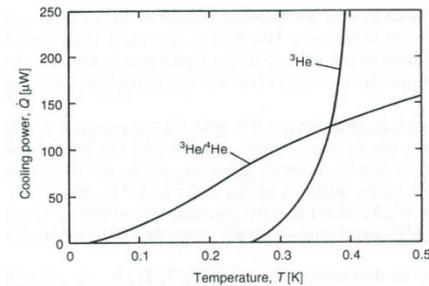
He4冷凍機 → 比較的容易に低温を作り出せる(1.3~4.2k)  
到達温度が低い+極低温でのcooling powerが小さい

He3冷凍機 → 到達温度はHe4より低い(0.3k)  
ランニングコスト高, 蒸発潜熱が小さい  
(Heの1/4~1/2)

He3-He4 冷凍機 → 上記2種類の利点ばかり集めた冷凍機  
到達温度良好(10 mk)+極低温での冷却能力大



He3/4 蒸発潜熱

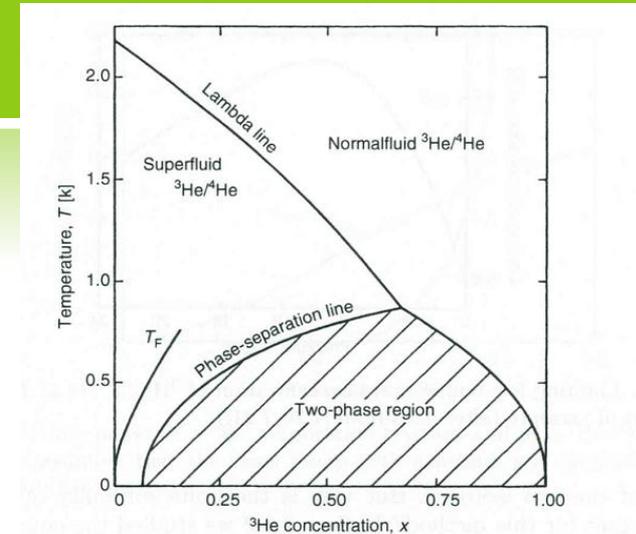


Cooling power

# HE3-HE4 希釈冷凍機 – 原理

## 強力なCooling powerの理由

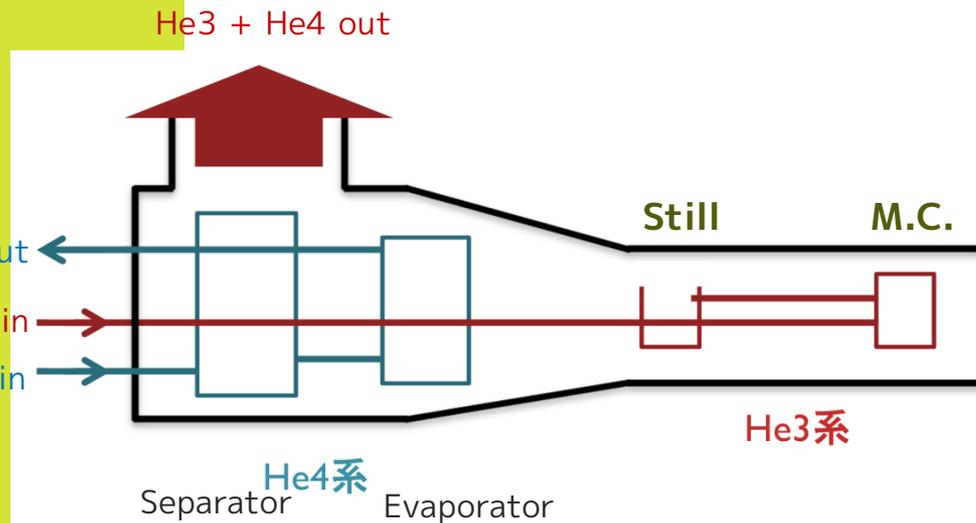
1. He3/4混合液を0.87k以下に冷却すると, 相分離する  
→ He3-rich相, He4-rich相
2. He3-rich相は, He4-rich相に浮く
3. He4は超流動状態≒真空 ⇒ He4-rich相のHe3: “気体”  
He3-rich相のHe3: “液体”
4. He4-rich相からHe3を強制排気  
→ “液体”が“蒸発”. その“蒸発潜熱”により冷却



# HE3-HE4 希釈冷凍機 – 構造

## 大雑把な構造

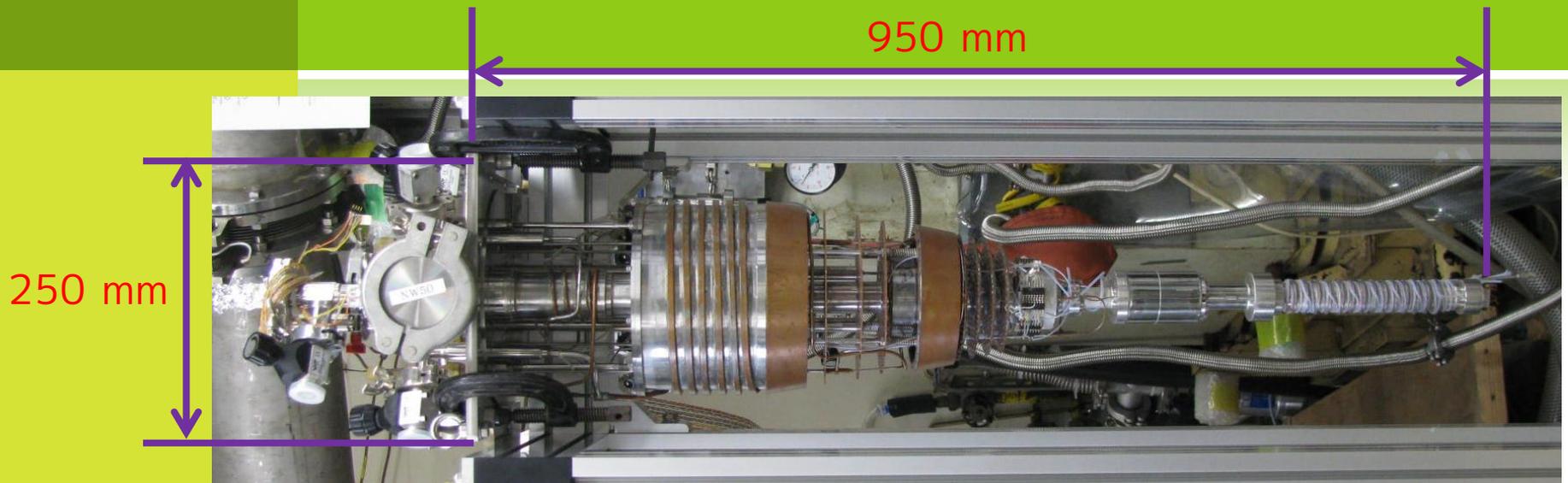
- ◎ He4で冷凍機全体・He3/4混合ガスを予冷
- ◎ Mixing ChamberでDilutionが起こる



## 典型的な温度分布

- ✓ Separator: 4.2k
- ✓ Evaporator: 2.7k
- ✓ Still : 0.6k
- ✓ M.C. : 100mK以下 (理想的には)

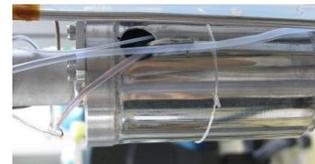
# HE3-HE4希釈冷凍機 - 実際



Separator  
Vol=185cc



Evaporator  
Vol=92cc



Still  
Vol=141cc



M.C.  
Vol=48cc

# He3-He4希釈冷凍機 – 比較



New Cryostat!  
2010年度～

名大PT研から  
(～2009年)

- SeparatorからHe4を先端に吹きかけられる
  - + 先端の冷却時間の短縮
  - He4がHe3系に混入する恐れ
- DNP用マイクロ波の断熱真空パイプを中心とした構造
  - + 強度の向上
- Cooling power: 見積中
- フロントパネル複雑化
  - + 拡張性が容易
  - 操作性低下
- Etc…

# これまでの冷却実験

# これまでの冷却実験

2010/04	:	納入
2010/05	:	“アフターサービス”
2010/06 ~	:	温度計の設置, ポンプ・配管の点検・整備
2010/12	:	冷却第1回目 (He4)
2011/01	:	第2, 3回目 (He4) → 修理 + upgrade
2011/02	:	第4回目 (He4)
2011/05	:	第5回目 (He4)
2011/06	:	第6回目 (He3/4)
2011/07	:	第7回目 (He3/4)
2011/08	:	第8回目 (He3/4)
2011/10	:	第9回目 (He3/4)

# これまでの冷却実験 - 1

2010/12 冷却初め

## ○目的

He4でどこまで冷えるのか  
設置した温度計のチェック  
ポンプ・配管のチェック

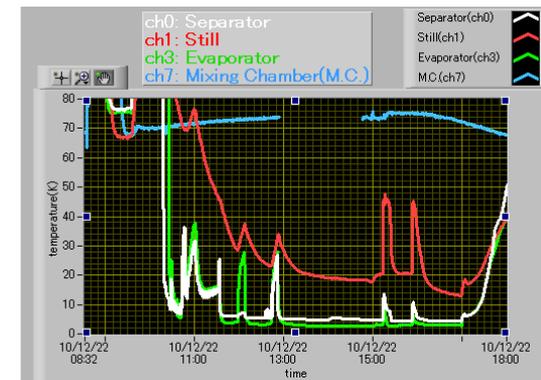


## ○結果

Separator: 4.2k, Evaporator: 2.7k

Still: 13k, M.C.: 62.5k

→ ~~He3系にHe4ガスを流すのが遅かった~~

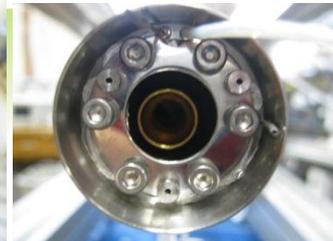


# これまでの冷却実験 - 2,3

2010/01 2, 3回目

## ○目的

ガスを流すタイミングを早める  
直接吹きかけラインのチェック



破れたMylar Window  
設計：100 $\mu$ m  
実際：15 $\mu$ m

## ○結果

タイミングを早めたとしても、前回と変わらず  
→次回：Separatorから直接He4を吹きかけて冷却する  
3回目実験中、マイクロ波断熱真空が破れる  
→実験中止，Cryostat修理へ

# これまでの冷却実験 - 4

2010/02 4回目

## ○目的

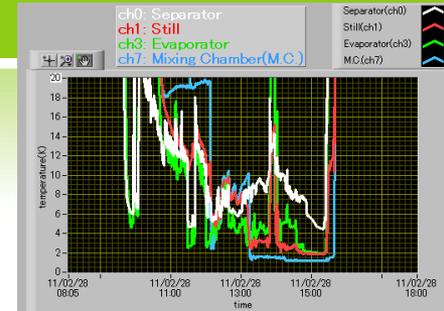
修理箇所のチェック  
直接吹きかけラインのチェック  
ダミーターゲット(ポリエチレン)でのNMR測定

## ○結果

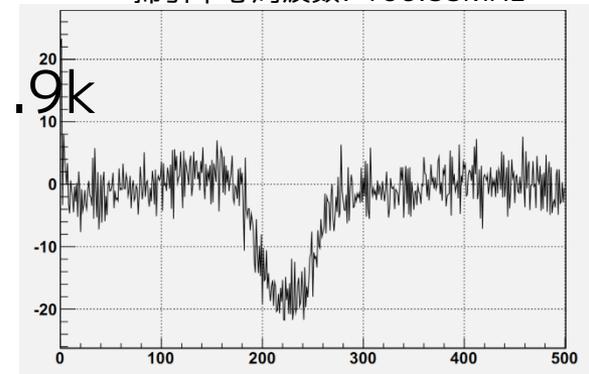
吹きかけラインの効果は大きい  
Separator: 4.2k, Evaporator: 1.9k  
Still: 1.8k, M.C.: 1.2k  
NMRも見えた



Dummy target  
・  $\Phi 10 \times L 32\text{mm}$   
・ 2.53g( $2.0 \times 10^{23}$  protons)



磁場: 2.5T  
掃引中心周波数: 106.35MHz



# これまでの冷却実験 - 5

2010/05 5回目

## ○目的

He3/He4の希釈冷凍を試みる

## ○結果

Dilutionは起こさなかったものの十分に冷えた

Separator: 3.6k, Evaporator: 1.5k

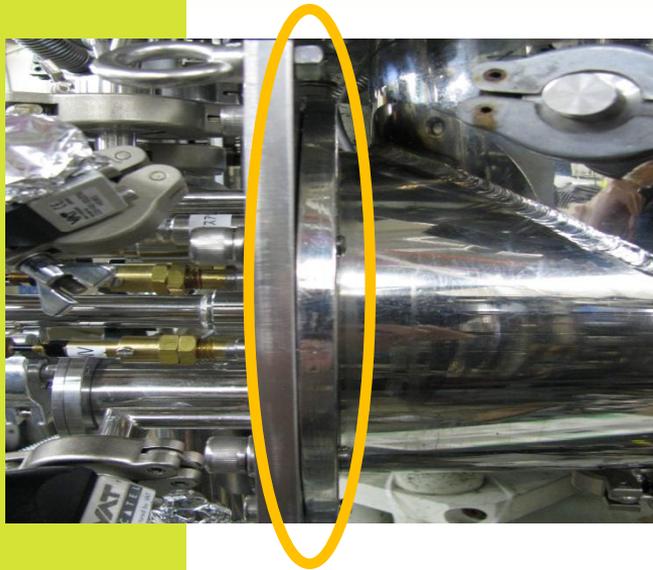
Still: 0.9k, M.C.: 0.7k

Cryostat取り付けに失敗。He3系に空気混入の可能性大

↑回収後のタンク圧力が  
回収前より増えていた

# これまでの冷却実験 - 5

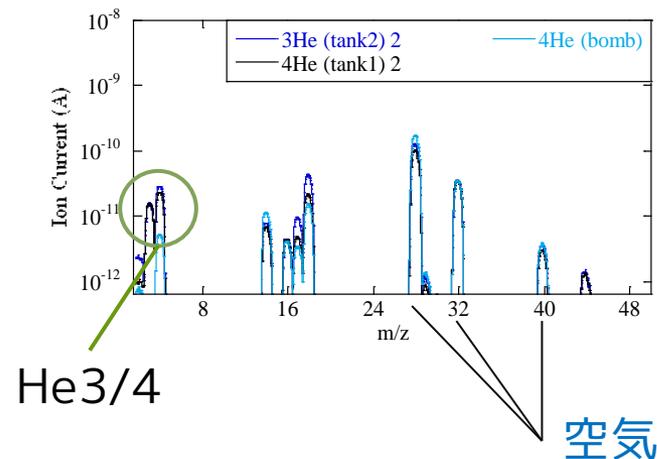
Cryostat取り付けに失敗. He3系に空気混入の可能性大



若干の隙間

冷却中は基本的に減圧状態なので締め付けが少々甘くても問題ないが…

ガス質量スペクトル



# これまでの冷却実験 - 6

2010/06 6回目

## ○目的

He3ガスの掃除(purify)

## ○結果

掃除をしても、トラップに液体が溜まることはなかった

しかし、混合ガス中に空気成分はなかった。

- ・元から混入していなかった(分析のミス)
- ・存在していたが、量が少なかったため見逃した

# これまでの冷却実験 - 6

## 精製後のガス組成比

	Tank1	Tank2
He3	44.6	44.3
He4	53.9	52.6
それ以外	1.5	3.15

# これまでの冷却実験 - 7

2010/07 7回目

## ○目的

He3/He4の希釈冷凍  
ダミーターゲットによるNMR測定

## ○結果

dilutionは起こらなかった。  
Still: 0.5 k , M.C.: 0.8k  
→ StillがM.C.に比べ低い→温度計の問題か？  
NMR測定回路不調によりNMR測定ならず



Dummy target  
・  $\Phi 10 \times L 32\text{mm}$   
・ 2.53g( $2.0 \times 10^{23}$  protons)

# これまでの冷却実験 - 8

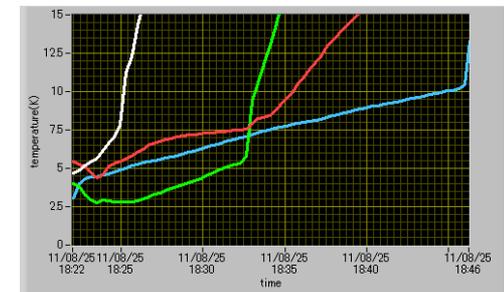
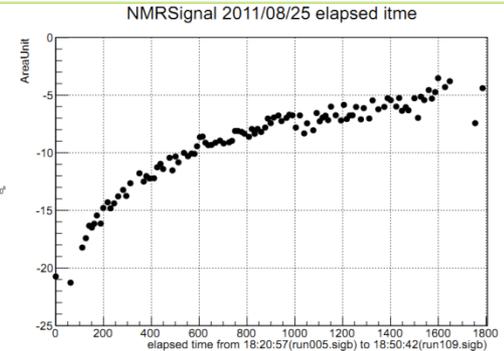
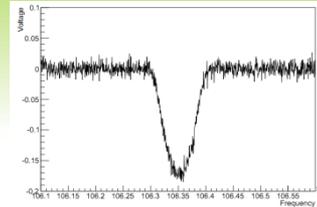
2010/08 8回目

## ○目的

RuO温度計の校正  
He3/He4 希釈冷凍  
ダミーターゲットによるNMR測定

## ○結果

He3系の目詰まり  
→ ニードルバルブから空気が混入  
→ He4冷却  
NMRの信号面積と温度の関係が見えた



# これまでの冷却実験 - 9

2010/10 9回目

## ○目的

RuO温度計の校正

He3/He4 希釈冷凍

TEMPO混入ポリエチレン標的のNMR測定, DNP

## ○結果

温度計解析中

希釈冷凍ならず

マイクロ波照射するも偏極度変化せず

→ DNPが起こらなかつた

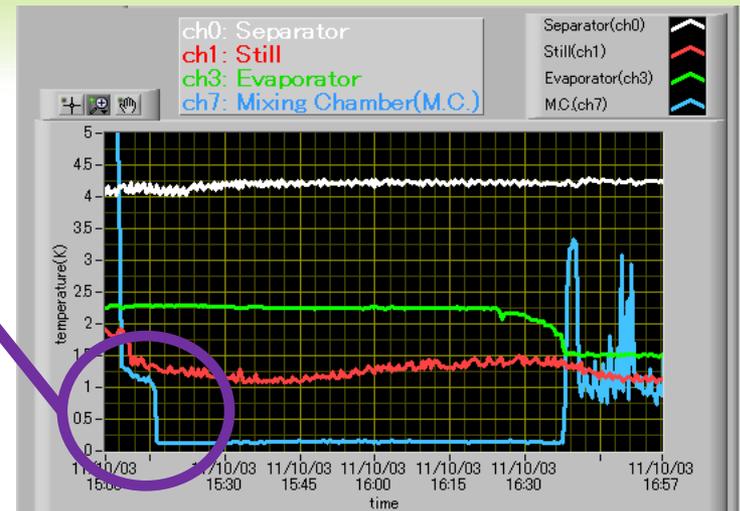
温度監視用プログラムミス

→ 1k以下での温度が正しく表示されない

# これまでの冷却実験 - 9

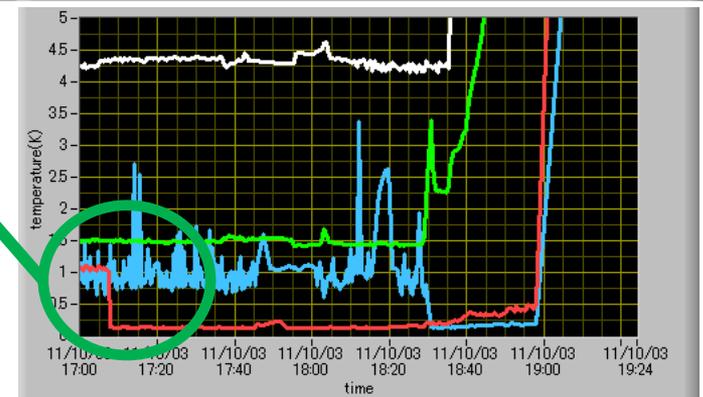
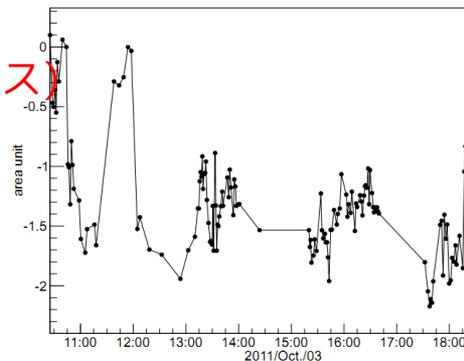
## 温度計

- ・ He3循環開始後, 0.1kに!  
→NMRの成長なし...
- ・ Stillも0.1k以下に...



原因:

プログラムミス(制御ミス)



# NMR – 核磁気共鳴

# NMR – 簡単な説明

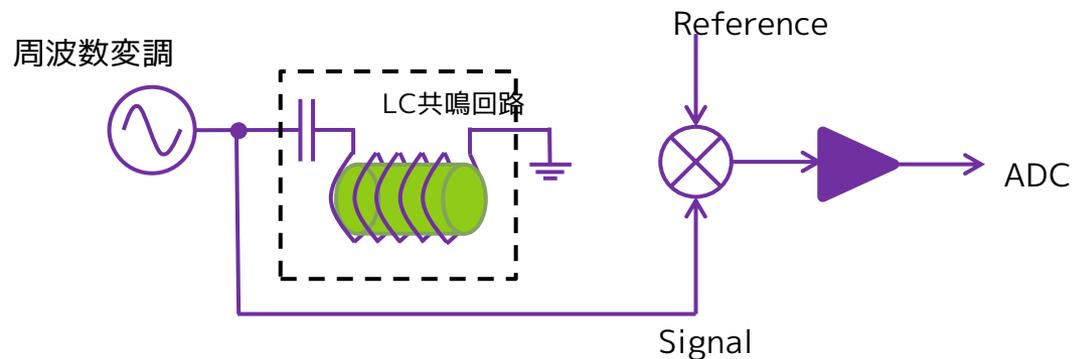
Nuclear Magnetic Resonance

核子が共鳴する

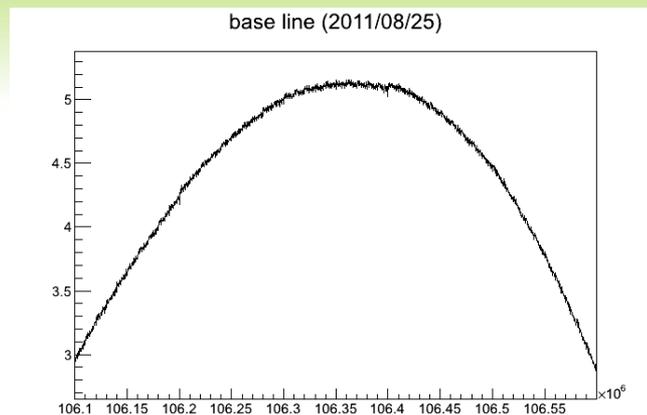
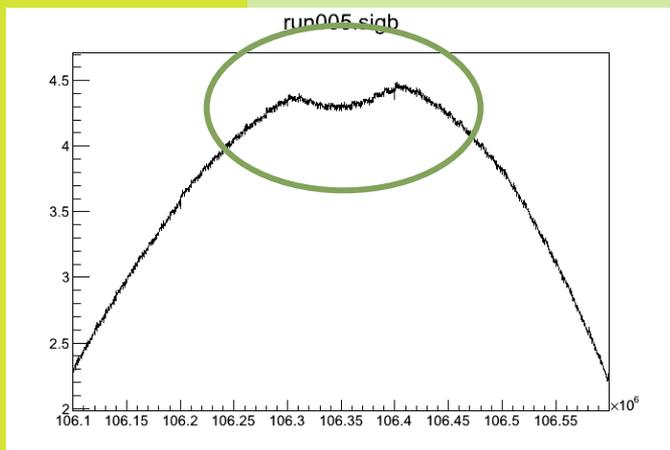
c.f. ESR, MRI

実際の方法

1. 一定の磁場を加え，電磁波の周波数を変化させる
2. 反射される電磁波を測定



# NMR – 実際の信号(熱平衡)

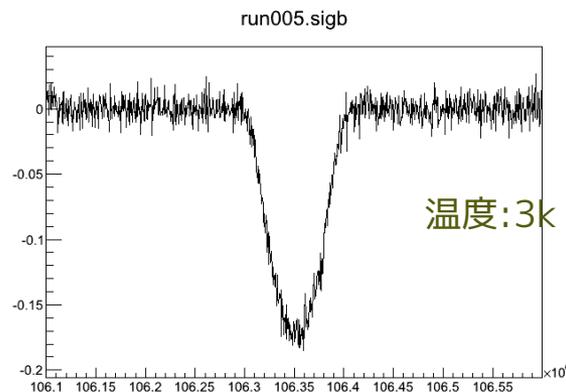


$B = 2.5T$

中心周波数: 106.35MHz  
磁場: 2.5T

$B \approx 2.5T$

信号部分を積分  
面積  $\propto$  偏極度



温度: 3k ( $\Rightarrow$  偏極度: 0.085%)

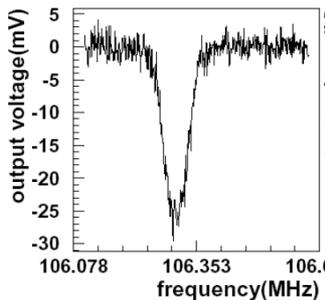
# NMR – DNP

新しい冷凍機でDNPを起こせていない…  
 実際どのような信号が現れるのか？

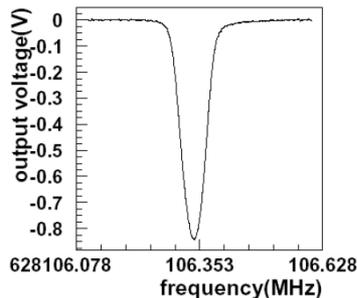
$$Polarization = \frac{S}{S_{TE}} P_{TE}$$

$$S_{TE} = 1 @ 1k \rightarrow S = 100$$

$$P_{TE} = 0.26\% \quad P = 26\%$$



T=1 K at 2.5T  
 Without microwave  
 P~0.5%



T=0.3 K at 2.5T  
 With microwave  
 P~50%

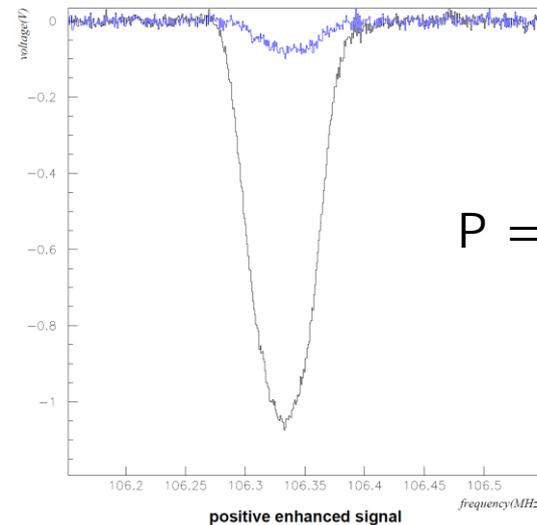


Fig. 5.17: 最大正偏極のNMR信号(青:TE信号、黒:励起信号)

# 偏極標的開発@山形大学

Year	Target	Free radical	Polarization
2005	Liq.He3	TEMPO in zeolite	Not observed
2006	Liq.He3	TEMPO in zeolite	0.3%, -0.2%
2007	Liq.He3	TEMPO in zeolite	0.9%, -0.12%
2007	EPM	TEMPO	0.84%, -0.12%
2008	ポリエチレン(シート)	TEMPO	8.64%, -2.9%
2009	ポリエチレン(シート/ファイバー)	電子/陽子ビーム照射	<b>NOT YET...</b>



TEMPO doped PE



Proton irradiated PE

# まとめ & 将来計画？

- ◆ 希釈冷凍機をアップグレードした(2010)
- ◆ 合計10回の冷却実験
- ◆ Dilutionを起こさなくとも, M.C.は容易に1kに到達
- ◆ NMRは見える & いつでも測定可能  
→ 偏極ターゲット開発に力を注げる
- ◆ 標的作成：再開/始動したばかり

# まとめ & 将来計画？

- 短期  
10/25冷却予定 (Dilution, DNP予定)  
"希釈冷凍"させる
- 中・長期  
冷凍機の安定運用  
ポリエチレン(陽子/電子線照射)標的作成  
(2009年照射した標的のESR・NMR測定)  
液体He3偏極  
etc…  
(些細な問題点を一つ一つ潰す  
e.g., ボルト穴拡大, ケーブル付け直し/配線し直し)

END