

# 微量偏極標的の偏極度測定用 NMRシステムの開発

名古屋大学 理学研究科 素粒子宇宙物理学専攻  
P<sub>T</sub>研究室

近藤 薫

2001年 1月 31日

## 概要

名古屋大学 P<sub>T</sub> 研究室では、偏極標的を用いた様々な実験を行っている。その一つとして、現在、核融合反応断面積のスピン偏極依存性を調べる筑波大学との共同実験が進行中である。これは、 $\vec{D}(\vec{d},p)T$  (D:deuteron, T:tritium) において、20 MeV 以下の偏極重陽子ビームの偏極方向と偏極重陽子標的の偏極方向を、平行にした場合と反平行にした場合の反応断面積の違いを見るものであり、この実験の偏極重陽子標的の部分は、我々の研究室が受け持っている。

重陽子の偏極は動的核偏極法によって作り、そのための偏極標的システムは、標的を数百 mK まで冷やす冷却系、2.5 T の均一な磁場を発生させる電磁石系、動的核偏極に必要な核-電子同時スピン反転を起こさせるためのマイクロ波系、および偏極度測定のための NMR(Nuclear Magnetic Resonance, 核磁気共鳴) 系によって成り立っている。

また、偏極標的物質としては、現在のところ重陽子化ポリエチレン (CD<sub>2</sub>) 薄膜が考えられている。

標的への制限としては以下の点が考慮されねばならない。

- ビームの標的におけるエネルギー損失による発熱と生成粒子の運動量の広がりを抑えるために、標的の厚さは数十  $\mu\text{m}$  であること
- 2.5 T の磁場を作り出す電磁石が、偏極励起および NMR 測定に必要な均一度 (200 ppm) を満たしている領域は  $\phi$  5 mm の球中であり、この中に標的が収まること

この制限があるために、標的の質量は数 mg 程度の小さいものとなる。このため、偏極度測定のための NMR 信号の検出が大変困難になり、小さい質量の試料からの微小な NMR 信号を測定する方法を開発する必要がある。

そこで、高 Q 値共振回路を用いた Synchronous Resonance Tuning (SRT) を試みた。この方法は、Q メーター方式連続波 NMR において、掃引する周波数と同期して共振回路のコンデンサの容量を変え、回路が常に共振状態となるようにしたものである。SRT の最大の利点は、高 Q 値共振回路においても、周波数掃引幅全域で高感度測定ができる事である。

SRT を用いて NMR 信号測定をすると、測定回路のインピーダンスの周波数依存が従来の測定法よりも大きくなり、電圧測定のダイナミックレンジが信号に比較して大きくなるため十分な感度を得ることができないという問題が生じた。これを解決するために、インピーダンスの周波数依存を大きくする要因である伝送ケーブルを共振回路の構成要素から外すような改良をした。

改良システムのテストとして、常温で重水試料 2.85 g 中の重陽子の NMR 信号を検出した。重陽子の偏極度測定のための NMR コイルの標準的なインダクタンスの値は 500 nH 程度であったが、5  $\mu\text{H}$  のコイルを用いて S/N $\sim$ 13.46 に信号強度を上げることに成功した。これは 500 nH のコイルを用いた場合の S/N $\sim$ 5.62 の 2.4 倍である。

今回のテストに用いた試料は  $\vec{D}(\vec{d},p)T$  実験で要求される微量ではないが、S/N を上げるための有効な手段が分かり、微量偏極標的の NMR 信号を検出する見通しが付いた。

# 目次

第 1 章	はじめに	5
1.1	偏極重陽子ビーム偏極重陽子標的散乱実験における 偏極標的システム開発	5
1.2	偏極標的質量への要求と偏極度測定系の改良の必要性について	6
第 2 章	動的核偏極法と偏極標的システム	7
2.1	動的核偏極法	7
2.1.1	スピン偏極度の定義	7
2.1.2	熱平衡状態での偏極度	8
2.1.3	動的核偏極法 (DNP)	8
2.2	偏極標的システムの概要	10
2.2.1	冷却系	11
2.2.2	電磁石系	12
2.2.3	マイクロ波系	12
2.2.4	NMR 測定系	12
第 3 章	偏極度測定原理と NMR による偏極度測定システム	13
3.1	偏極度測定原理	13
3.1.1	NMR と偏極度	13
3.1.2	面積比較法	14
3.1.3	非対称度法	14
3.2	Q メーター方式による連続波 NMR 測定システム	15
3.2.1	Q メーター方式	15
3.2.2	システム構成	17
3.2.3	信号処理	19
第 4 章	LabVIEW を用いた NMR 信号収集システムの構築	20
4.1	使用するハードウェアとソフトウェア	20
4.2	データ収集プログラムの作成	22
4.3	ノイズレベルの確認	26
第 5 章	Q メーター方式 NMR システムの改良	27
5.1	Synchronous Resonance Tuning (SRT) の採用	27
5.1.1	SRT の方法	27
5.1.2	Liverpool Q-meter box の修正	28
5.1.3	可変容量ダイオードの選択について	28
5.1.4	信号収集プログラムの修正	30

5.1.5	バリキャップダイオード制御電圧の決め方 . . . . .	30
5.1.6	SRT を用いた測定時のベースライン . . . . .	31
5.1.7	バリキャップダイオードの追加により導入されるノイズ . . . . .	32
5.2	CD <sub>2</sub> 試料の熱平衡信号の測定 . . . . .	34
5.3	ケーブルの影響についての考察 . . . . .	36
5.4	ケーブルの影響を除去する方法 . . . . .	39
5.4.1	伝送ケーブルを含まない共振回路 . . . . .	39
5.5	ケーブルの影響のないシステムでの測定結果 . . . . .	41
5.5.1	ノイズレベル . . . . .	41
5.5.2	ベースライン . . . . .	42
5.5.3	D <sub>2</sub> O 信号の測定による評価 . . . . .	44
<b>第 6 章 まとめ</b>		<b>49</b>
<b>第 7 章 謝辞</b>		<b>50</b>
<b>付 録 A シミュレーションプログラム</b>		<b>53</b>

# 目 次

1.1	$\vec{D}(\vec{d},p)T$ 実験用 $^3\text{He}-^4\text{He}$ 希釈冷凍器	5
2.1	動的核偏極機構	9
2.2	偏極標的システム全体図	10
2.3	$^3\text{He}-^4\text{He}$ 希釈冷凍器模式図	11
3.1	Qメーター方式 NMR 回路図	15
3.2	Liverpool 型 Q-meter box	17
3.3	Yale card 回路図	18
3.4	NMR 信号処理	19
4.1	NMR 信号収集システムの全体図	21
4.2	データ収集プログラムフローチャート	22
4.3	データ収集プログラム階層図	23
4.4	LabVIEW フロントパネル	25
4.5	測定システムのノイズレベル確認	26
5.1	SRT 回路図	27
5.2	SRT 用 Q-meter box 修正部分	28
5.3	共鳴周波数と DAC 電圧の対応	29
5.4	バリキャップダイオードの応答時間	29
5.5	SRT ベースラインの形	31
5.6	バリキャップダイオードの追加により導入されるノイズ	33
5.7	$\text{CD}_2$ 試料の熱平衡信号	35
5.8	コイルのインダクタンスと検出される NMR 信号の大きさの関係 (計算値)	37
5.9	回路の静電容量を変化させたときの Q カーブの変化	38
5.10	伝送ケーブルを含まない共振回路を用いた Qメーター回路	39
5.11	Qメーター回路の等価回路	39
5.12	伝送ケーブルを含まない共振回路	40
5.13	Q-meter box の共振回路部分の変更	40
5.14	ケーブルの影響のない回路のノイズレベル	41
5.15	静電容量を変えた時の Q カーブの変化	43
5.16	コイルインダクタンスの違いによる $\text{D}_2\text{O}$ 信号の大きさの変化	45
5.17	高インダクタンスコイルを用いることによる信号の歪み (計算値)	46
5.18	$\text{D}_2\text{O}$ 信号の測定	47
5.19	5 $\mu\text{H}$ のコイルを用いた回路における共振点から外れた周波数での出力信号	48

# 表 目 次

1.1	1 g の $CD_2$ を従来のシステムで NMR 測定をした時の S/N	6
4.1	NMR 信号収集用 PC に導入したソフトウェア	20
4.2	Digital I/O (NATIONAL INSTRUMENTS 社製 PCI-DIO-96) 仕様	20
4.3	ADC & DAC (NATIONAL INSTRUMENTS 社製 PCI-MIO-16XE-50) 仕様	21
4.4	データ収集プログラムタイミング表	25
4.5	測定システムのノイズの標準偏差	26
5.1	ノイズレベル測定パラメーター一覧	32
5.2	バリキャップダイオードの追加により導入されるノイズ	32
5.3	$CD_2$ 熱平衡信号測定パラメーター一覧	34
5.4	シミュレーションに用いた回路パラメーター	36
5.5	ケーブルの影響のない回路で一定周波数を入力したときの出力電圧標準偏差	41
5.6	伝送ケーブルを含まない共振回路を用いたベースライン測定パラメーター一覧	42
5.7	$D_2O$ 常温熱平衡信号測定パラメーター一覧	44
5.8	バリキャップダイオード型番	44
5.9	2 種類のコイルで測定した $D_2O$ 信号の S/N の比較	45

# 第1章 はじめに

## 1.1 偏極重陽子ビーム偏極重陽子標的散乱実験における偏極標的システム開発

名古屋大学  $P_T$  研究室では、偏極標的を用いた様々な実験を行っている。その一つとして、現在、核融合反応断面積のスピンの偏極依存性を調べる筑波大学との共同実験が進行中である。

これは、スピンの向きを平行あるいは反平行に揃えることにより、核融合反応を促進あるいは抑制することが可能であるという、1982年の Princeton & BNL グループによる提唱 [1] を実験的に検証するものであり、 $\vec{D}(\vec{d},p)T$  において、20 MeV 以下の偏極重陽子ビームの偏極方向と偏極重陽子標的の偏極方向を平行にした場合、反平行にした場合の反応断面積の違いを見る。

この実験の偏極重陽子標的の部分は、我々の研究室が受け持っている。

重陽子の偏極は動的核偏極法によって作り、そのための偏極標的システムは、標的を数百 mK まで冷やす冷却系、2.5 T の均一な磁場を発生させる電磁石系、動的核偏極に必要な核-電子同時スピン反転を起こさせるためのマイクロ波系、および偏極度測定のための NMR 系によって成り立っている。

このシステムの冷却系として既に、新しい  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍器 (図 1.1) を建設しテストしている。また現在のところ、偏極標的物質としては、取り扱いが簡便かつ高偏極が得られると期待できる重陽子化ポリエチレン ( $\text{CD}_2$ ) 薄膜が考えられている [2, 3, 4]。

本論文では、この実験における条件 (次節参照) に適合する偏極度測定のための NMR 系の開発について述べる。

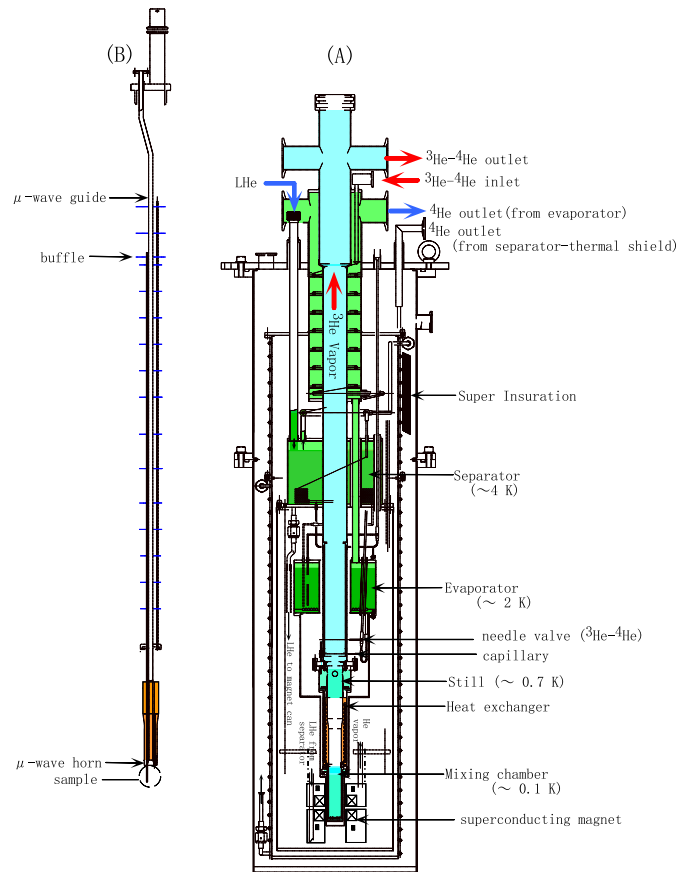


図 1.1:  $\vec{D}(\vec{d},p)T$  実験用  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍器。(B) を (A) に挿入する。

## 1.2 偏極標的質量への要求と偏極度測定系の改良の必要性について

$\vec{D}(\vec{d},p)T$  実験に用いる偏極重陽子ビームのエネルギーが 20 MeV 以下であることから、標的への制限としては以下の点が考慮されねばならない。

- ビームの標的におけるエネルギー損失による発熱と生成粒子の運動量の広がりを抑えるために、標的の厚さは数十  $\mu\text{m}$  であること
- 2.5 T の磁場を作り出す電磁石が、偏極励起および NMR 測定に必要な均一度 (200 ppm) を満たしている領域は  $\phi$  5 mm の球中であり、この中に標的が収まること

この制限があるために、標的の質量は数 mg 程度の小さいものとなる。

標的の偏極度は NMR 信号を測定することにより算出できるが、小さな試料の NMR 信号は検出が大変困難になり、微小な NMR 信号を測定する方法を開発する必要がある。

我々のグループがこれまでテストしてきた  $\text{CD}_2$  偏極標的試料は 1 g 程度であり、偏極を励起させた時の NMR 信号測定の  $S/N$ <sup>1</sup> はおよそ 500 である [4]。NMR 信号の大きさは試料中のその核種のスピンの個数に比例することを考えると、例えば 1 mg の  $\text{CD}_2$  試料を偏極励起させた時、NMR 信号測定の  $S/N$  はおよそ 0.5 となる。

$\text{CD}_2$  試料の場合、NMR 信号から偏極度を算出する方法は、(1) 面積比較法、(2) 非対称度法の二つの方法があるが、面積比較法では偏極励起した信号の百分の一くらいの大きさの熱平衡信号を測定しなければならず、微小な偏極標的試料ではこの方法は適さない。そこで非対称度法により偏極度が求められることを目標に  $S/N$  の向上を図った。

これまで我々の偏極標的システムの偏極度測定では、Liverpool 型 Q-meter box (ULTRA PHYSICS 製) を用いて NMR 信号を測定しており、この Q-meter box の改良によって NMR 測定の感度を上げる。今回は

1. Synchronous Resonance Tuning (SRT) を採用し、常に回路が共鳴状態であるようにした (共鳴点のトラッキング)。
2. 冷凍器中のサンプルコイルと冷凍器の外のコンデンサーが長い伝送ケーブルでつながれている複雑な共振回路を、コイルとコンデンサーの間のケーブルを短くすることにより簡略化し、ケーブルの影響のない共振回路にした。

以上 2 点の大きな改良を行った。

表 1.1: 1 g の  $\text{CD}_2$  を従来の NMR システムで測定をした時の  $S/N$ 。但し偏極度は 16.7 % である。熱平衡信号のノイズレベルは、測定回数を偏極励起信号測定時より多くし平均化をすることで減らしている。

	出力信号最大電圧 (mV)	ノイズレベル (mV)	S/N
1 g $\text{CD}_2$ 偏極励起信号 (P=16.7%)	500	1	500
1 g $\text{CD}_2$ 熱平衡信号	3	0.5	6

<sup>1</sup>信号対雑音比, Signal-to-Noise ratio : 一般に  $10 \log\{(\text{信号電力})/(\text{雑音電力})\}$  dB で表すが、本稿では単純に比の値を用いる。



## 第2章 動的核偏極法と偏極標的システム

我々の研究室では動的核偏極法 (Dynamic Nuclear Polarization, DNP) と呼ばれる方法を用いて陽子及び重陽子の偏極を励起させ、原子核実験、高エネルギー実験の偏極標的としている。動的核偏極法は、1950年代の終わりから1960年代にかけて Abragam 等により考え出され、現在、偏極標的を生成する方法としては世界で最もよく用いられている方法である。

この章では、2.1節で動的核偏極法の機構について述べ、2.2節で偏極標的を生成するシステムについて簡単に説明する。

### 2.1 動的核偏極法

#### 2.1.1 スピン偏極度の定義

スピン  $I$  を持つ同種粒子の集合を  $z$  軸方向の静磁場中に置くと、スピンの向きの分布に偏りが生じる。この偏りの程度を表す量がスピン偏極度であり、ベクトル偏極度  $P_V$  と、テンソル偏極度  $P_T$  が定義される。

$$P_V = \frac{\langle I_z \rangle}{I} \quad (2.1)$$

$$P_T = \frac{3\langle I_z \rangle^2 - I(I+1)}{I(2I-1)} \quad (2.2)$$

陽子の場合、 $I = \frac{1}{2}$  であり、第三成分が  $I_z = +\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}$  の二通りの値をとるので、それぞれの準位に属する粒子数を  $n_+$ 、 $n_-$  とするとベクトル偏極度は、

$$P_V^p = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-} \quad (2.3)$$

と表せる。重陽子の場合、 $I = 1$  で、 $I_z = +1, 0, -1$  であるので、それぞれの準位に属する粒子数を  $n_+$ 、 $n_0$ 、 $n_-$  とするとベクトル偏極度は、

$$P_V^d = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_0 + n_-} \quad (2.4)$$

テンソル偏極度は、

$$P_T^d = \frac{n_+ - 2n_0 + n_-}{n_+ + n_0 + n_-} \quad (2.5)$$

と表せる。

本稿では重陽子のベクトル偏極を取り扱うので、偏極度と表現した場合にはベクトル偏極度を表すものとする。

### 2.1.2 熱平衡状態での偏極度

磁気モーメント  $\vec{\mu}$  を持つ粒子の外部静磁場  $\vec{H}_0$  との相互作用は、ハミルトニアン

$$\mathcal{H}_0 = -\vec{\mu} \cdot \vec{H}_0 \quad (2.6)$$

で表され、この粒子のスピンが  $I$  のとき、等間隔に広がる  $2I + 1$  個のエネルギー準位ができる (Zeeman 分裂)。

$m$  を磁気量子数として、それぞれのエネルギー準位は

$$E_m = -\frac{m}{I} \mu H_0 \quad (2.7)$$

であり、この準位に存在する相対的な粒子数  $n_m$  は、系が熱平衡状態になっている時はボルツマン統計に従うので、 $k_B$  をボルツマン定数、 $T$  を系の温度として、

$$n_m = \exp\left(-\frac{E_m}{k_B T}\right) \quad (2.8)$$

と表される。よって、陽子、重陽子のベクトル偏極度は、式 (2.3)、(2.4) から

$$P_V^p = \tanh\left(\frac{\mu_p H_0}{k_B T}\right) \sim \frac{\mu_p H_0}{k_B T} \quad (2.9)$$

$$P_V^d = \frac{4 \tanh\left(\frac{\mu_d H_0}{k_B T}\right)}{3 + \tanh^2\left(\frac{\mu_d H_0}{k_B T}\right)} \sim \frac{2}{3} \frac{\mu_d H_0}{k_B T} \quad (2.10)$$

となる。ここで、 $\mu_p$ 、 $\mu_d$  は、陽子、重陽子の磁気モーメントで、近似は  $\frac{\mu H_0}{k_B T} \ll 1$  の時に成り立つ。

同様に、磁気モーメント  $\mu_e$  を持つ電子 (スピン  $\frac{1}{2}$ ) についても、外部静磁場  $\vec{H}_0$  中で温度  $T$  の熱平衡状態におけるベクトル偏極度は、

$$P_V^e = \tanh\left(\frac{\mu_e H_0}{k_B T}\right) \quad (2.11)$$

と表せる。

実際に我々が典型的に用いる磁場 2.5 T、温度 0.5 K を代入すると、陽子、重陽子の偏極度はそれぞれ 0.5 %、0.1 % にしかならない。ところが、電子は磁気モーメントが大きいため、偏極度が 99.8 % となり、これは原子核に対する値に比べて非常に高い。したがって、このような通常利用できる磁場、温度で高い偏極度を得るためには、電子の高偏極度を原子核に移す動的核偏極法 (Dynamic Nuclear Polarization, DNP) という方法を用いて偏極を励起させる。

### 2.1.3 動的核偏極法 (DNP)

少数の自由電子を含み、かつその自由電子が拡散している固体中でのスピン  $I$  の原子核とスピン  $S$  の自由電子の系を考える。

外部静磁場  $\vec{H}_0$  中での主な相互作用を記述するハミルトニアンは、

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{HS} + \mathcal{H}_{HI} + \mathcal{H}_{SI} \quad (2.12)$$

と表せる。第1項、第2項は、外部磁場と電子スピン、外部磁場と核スピンの相互作用を表し、式(2.6)のように書ける。第3項は、電子スピンと核スピンの相互作用を表しており、その双極子-双極子相互作用は、

$$\mathcal{H}_{SI} = \frac{\hbar^2 \gamma_e \gamma_n}{r^3} [\vec{S} \cdot \vec{I} - \frac{3(\vec{S} \cdot \vec{r})(\vec{I} \cdot \vec{r})}{r^2}] \quad (2.13)$$

と表せる。 $\vec{r}$ は、電子と原子核を結ぶベクトル、 $\gamma_e$ 、 $\gamma_n$ は、電子、原子核の磁気回転比である。

重陽子スピンと自由電子スピンの系について、 $\mathcal{H}_{SI}$ の項を摂動項としてエネルギー固有状態を導くと、非摂動項 $\mathcal{H}_{HS}$ 、 $\mathcal{H}_{HI}$ のみによるエネルギー固有状態 $|e, d\rangle$  ( $e$ :電子スピン状態...+, -;  $d$ :重陽子スピン状態...+, 0, -)が混合して新しいエネルギー準位ができ、エネルギーの高い順に、

$$|1\rangle = |+, -\rangle - \epsilon^* |+, 0\rangle \quad (2.14)$$

$$|2\rangle = |+, 0\rangle + \epsilon |+, -\rangle - \epsilon^* |+, +\rangle \quad (2.15)$$

$$|3\rangle = |+, +\rangle + \epsilon |+, 0\rangle \quad (2.16)$$

$$|4\rangle = |-, -\rangle + \epsilon^* |-, 0\rangle \quad (2.17)$$

$$|5\rangle = |-, 0\rangle - \epsilon |-, -\rangle + \epsilon^* |-, +\rangle \quad (2.18)$$

$$|6\rangle = |-, +\rangle - \epsilon |-, 0\rangle \quad (2.19)$$

となる。 $\vec{r}$ を $(r, \theta, \phi)$ で極座標表記するとき、 $\epsilon = \frac{3\sqrt{2}\gamma_e \hbar}{4H_0 r^3} \sin(\theta) \cos(\theta) e^{i\phi}$ と表せ、これは電子スピンと原子核スピンの結合の強さを表す因子である。

電子と重陽子の同時スピン反転は、非摂動項のみの固有状態では禁止遷移であったが、摂動項 $\mathcal{H}_{SI}$ によって小さい確率(電子スピン反転の遷移確率の $4|\epsilon|^2$ 倍)で起こるようになる。

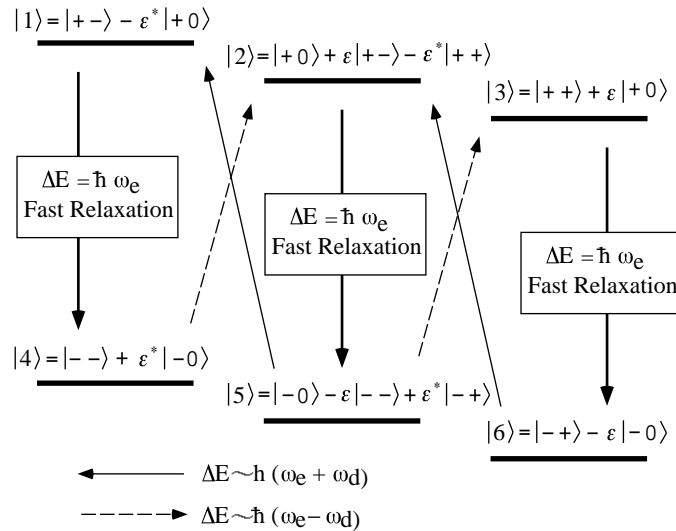


図 2.1: 動的核偏極機構

今、外部磁場 2.5 T、温度 0.5 K の条件下にある電子-重陽子スピン系を考える。電子スピンは 99.8 % 偏極しており、ほとんど全ての電子スピンが  $S_z = -\frac{1}{2}$  の状態にある。一方、重陽子の偏極度は 0.1 % 程度で、各エネルギー状態にほぼ均等に分布している。よって熱

平衡状態では、 $|1\rangle$ 、 $|2\rangle$ 、 $|3\rangle$  の占有数はほとんどなく、 $|4\rangle$ 、 $|5\rangle$ 、 $|6\rangle$  にほぼ均等に分布している。

ここで、 $\omega_e = \frac{\mu_e H_0}{\hbar}$ 、 $\omega_d = \frac{\mu_d H_0}{\hbar}$  として、角周波数  $\omega_e + \omega_d$  の電磁波をスピン系に照射すると、 $|5\rangle \rightarrow |1\rangle$ 、 $|6\rangle \rightarrow |2\rangle$  の遷移が起こる。すると、電子は  $\sim$ msec 程度の熱緩和時間でスピン反転し平衡状態に戻るので、すぐに  $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ 、 $|2\rangle \rightarrow |5\rangle$  の遷移が起こる。重陽子は電子に比べて磁気モーメントが小さく、 $\sim$ sec 程度の熱緩和時間を持つため、重陽子が熱平衡状態に戻る前に、電子は再び他の重陽子と結合して、 $|6\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |5\rangle$ 、 $|5\rangle \rightarrow |1\rangle \rightarrow |4\rangle$  の遷移が起こる。このプロセスが繰り返されることにより、状態  $|4\rangle$  の占有数が大きくなり、重陽子の負偏極が起こる。

同様に、角周波数  $\omega_e - \omega_d$  の電磁波をスピン系に照射すると、 $|4\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |5\rangle$ 、 $|5\rangle \rightarrow |3\rangle \rightarrow |6\rangle$  の遷移により、重陽子の正偏極が起こる。

この動的核偏極法では、照射する電磁波の周波数を選択することにより、スピン偏極の向きを反転させることができることが特徴である。

## 2.2 偏極標的システムの概要

動的核偏極法を行うためのシステムは、大きく

- 冷却系
- 電磁石系
- マイクロ波系
- NMR 測定系

に分けられる。

我々の研究室は  $\vec{D}(\vec{d}, p)T$  実験を行うために、横型冷凍器を中心とした旧システムとは別に、新しい縦型冷凍器と超電導磁石から成る偏極標的システムを開発中であるが、今回の NMR 測定テストでは、旧システムの冷却系と電磁石系を使用した。

この章では、新旧両方の偏極標的システムに共通するような概要のみを述べる。

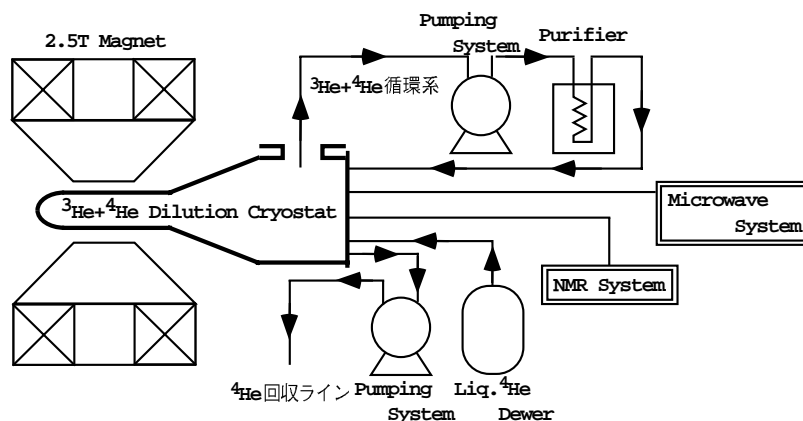


図 2.2: 偏極標的システム全体図

## 2.2.1 冷却系

動的核偏極法に必要な低温をつくるために、 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍法を用いる。これは、フェルミ粒子である  $^3\text{He}$  とボーズ粒子である  $^4\text{He}$  の性質の違いを使って低温を作り出す方法である。

$^3\text{He}$  と  $^4\text{He}$  の混合液体は、0.87K 以下で  $^3\text{He}$  濃厚相 (I-phase) と  $^3\text{He}$  希薄相 (II-phase) の二相に分離する。 $^3\text{He}$  濃厚相はほぼ純粋な液体  $^3\text{He}$  で、 $^3\text{He}$  希薄相は超流動状態の液体  $^4\text{He}$  の中に  $^3\text{He}$  原子が 0 K であっても 6.4 % 溶け込んで飽和する。沸点が  $^4\text{He}$  よりも低いことを利用して  $^3\text{He}$  を  $^3\text{He}$  希薄相から強制排気すると、平衡状態を保つために  $^3\text{He}$  が  $^3\text{He}$  濃厚相から  $^3\text{He}$  希薄相へ、あたかも真空中へ蒸発するかのように拡散し、これが吸熱反応であるために系の温度が低下する。

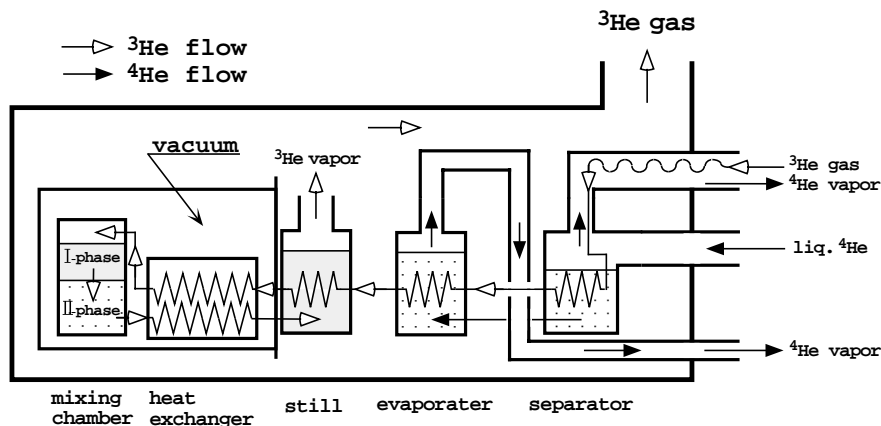


図 2.3:  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍器模式図

我々が用いる  $^3\text{He}$  循環型希釈冷凍器 (図 2.3) では、実際に希釈冷凍に用いる  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  混合ガスを循環させる  $^3\text{He}$  系と、この混合ガスを予備冷却して液化させる  $^4\text{He}$  系の二つの回路から成る。

$^4\text{He}$  系では、液体  $^4\text{He}$  がデュワーから separator に供給され溜められた後、evaporator に入って 2 K まで減圧冷却される。

$^3\text{He}$  系は、still、mixing chamber の二つの液溜めがあり、separator、evaporator の中を通して液化した  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  混合ガスは、およそ 0.7 K に保たれた still、heat exchanger を通り mixing chamber に入る。この mixing chamber で低温を発生させるためには、排気能力の大きなポンプで still から  $^3\text{He}$  の強制排気を行う。すると、 $^3\text{He}$  希薄相の飽和状態が破れ、mixing chamber 内で  $^3\text{He}$  濃厚相から  $^3\text{He}$  希薄相への  $^3\text{He}$  の拡散が起こるので、ここで連続的に冷却能力が得られる。偏極標的試料は、この mixing chamber に取り付ける。

また、冷凍器の各部には温度測定用抵抗を取り付けている。室温から液体窒素温度程度の温度測定には白金抵抗、液体 He 温度程度の温度測定には炭素抵抗を用いて 2 端子測定を行い、mixing chamber 内の温度の精度良い測定のためには、酸化ルテニウム抵抗を用いて 4 端子測定を行う。

## 2.2.2 電磁石系

動的核偏極及び NMR 信号測定には均一度の高い大きな磁場が必要である。

我々は磁場の設定を 2.5T としており、この磁場をつくるために旧システムは常伝導 dipole 電磁石 (JEOL 製)、新システムは超伝導 Helmholtz 型電磁石 (Oxford Instruments 製) を用いる。均一度は、旧システムでは、 $\phi$  50 mm  $\times$  25 mm 円柱の領域で 200 ppm、新システムでは、 $\phi$  5 mm 球の領域で 100 ppm が保証されている。

## 2.2.3 マイクロ波系

マイクロ波系は動的核偏極に必要な高周波電磁場を供給する。磁場強度 2.5T に対するマイクロ波周波数は約 70 GHz である。

偏極標的試料のある mixing chamber は銅でできており、マイクロ波キャビティーとしての役割がある。冷凍器外部にあるインパットダイオード発振器等の発振器から導波管を通してこの mixing chamber までマイクロ波を導く。

## 2.2.4 NMR 測定系

偏極度の測定には NMR を用いる。

偏極標的試料全体あるいは一部の外側に外部静磁場と直交する向きに磁場が発生するようコイルを巻き、標的核の Lamor 周波数 (重陽子の場合はおよそ 16 MHz) の交流電圧をかける。するとコイル中に振動磁場が発生して核磁気共鳴が起こり、核スピン反転に伴うエネルギーが、核スピンの偏極度に応じて吸収あるいは放出され、コイルのインダクタンスを変化させる。この変化を検出することにより偏極度を測定することができる。詳しくは次章で述べる。

# 第3章 偏極度測定原理とNMRによる偏極度測定システム

この章では、連続波 NMR によって標的核の偏極度を測定する原理と、Q メーター方式と呼ばれる NMR 測定の方法について述べる。

## 3.1 偏極度測定原理

### 3.1.1 NMR と偏極度

外部静磁場  $H_0$  中でのスピン  $I$  を持つ  $n$  個の原子核の系を考える。  
磁化  $M$  は、核スピンのベクトル偏極度  $P_V$  と

$$M = \mu(n_+ - n_-) = \mu n P_V \quad (3.1)$$

のように関係付けられる。 $n_+$ 、 $n_-$  はそれぞれ Zeeman 分裂したエネルギー準位のうち、磁気量子数  $m$  が  $m = I$ 、 $m = -I$  である準位に属する粒子数である。

また磁化  $M$  は、

$$M = \chi_0 H_0 \quad (3.2)$$

と表せ、 $\chi_0$  は静磁化率と呼ばれる。

さらに、外部静磁場  $H_0$  に対して直交する ( $x$  軸方向とする) 角周波数  $\omega$  の振動磁場  $2H_1 \cos(\omega t)$  を加えると、その振動磁場方向の磁化は、

$$M_x(t) = 2H_1 \{ \chi'(\omega) \cos(\omega t) + \chi''(\omega) \sin(\omega t) \} \quad (3.3)$$

となり、磁化率は  $\omega$  に依存した複素数

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) - i\chi''(\omega) \quad (3.4)$$

として定義できる。 $\chi'(\omega)$  は偶関数で分散関数と呼ばれ、 $\chi''(\omega)$  は奇関数で吸収関数と呼ばれる。

核スピンの Larmor 周波数を  $\omega_0$  とすると、 $\omega = \omega_0$  のとき核磁気共鳴 (Nuclear Magnetic Resonance, NMR) が起こり、この付近でのみ  $\chi'(\omega)$ 、 $\chi''(\omega)$  はゼロでない値を持つ。

静磁化率  $\chi_0$  と複素磁化率との関係は、Kramers-Kronig 関係式

$$\begin{aligned} \chi'(\omega) - \chi_\infty &= \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\omega') d\omega'}{\omega' - \omega} \\ \chi''(\omega) &= -\frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi'(\omega') - \chi_\infty}{\omega' - \omega} d\omega' \end{aligned} \quad (3.5)$$

$$\left( \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{g(\omega') d\omega'}{\omega' - \omega} \xrightarrow{\text{means}} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\omega - \epsilon} + \int_{\omega + \epsilon}^{\infty} \right)$$

の第一式に  $\omega = 0$  を代入することによって得られ、

$$\chi_0 = \chi'(0) = \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\omega') d\omega'}{\omega'} \simeq \frac{2}{\pi \omega_0} \int_{\omega_0 - \delta}^{\omega_0 + \delta} \chi''(\omega') d\omega' \quad (3.6)$$

となる。近似は  $\chi''(\omega)$  が奇関数で、 $\omega = \omega_0$  近傍 ( $\omega_0 - \delta \leq \omega \leq \omega_0 + \delta$  の範囲内) でのみゼロでないことを考慮している。

よって、 $\hbar\omega_0 = \mu H_0/I$ 、 $\mu = \gamma \hbar I$  ( $\gamma$ :磁気回転比) を用いると、偏極度は、

$$P_V = \frac{\chi_0 H_0}{\mu n} = \frac{2}{\pi \gamma^2 \hbar n I} \int_{\omega_0 - \delta}^{\omega_0 + \delta} \chi''(\omega') d\omega' \quad (3.7)$$

と表される。

### 3.1.2 面積比較法

式 (3.7) において、 $\int_{\omega_0 - \delta}^{\omega_0 + \delta} \chi''(\omega') d\omega'$  は吸収関数  $\chi''(\omega)$  がゼロでない領域でこれを測定し、積分したものの、すなわち吸収関数の面積であるが、これは偏極度に比例している。したがって測定した吸収関数の面積を、予め偏極度が分かっている場合の吸収関数の面積と比較することにより、偏極度の絶対値を得ることができる。

系が熱平衡状態 (Thermal Equilibrium, TE) のときは、式 (2.10) を計算することにより偏極度  $P_{TE}$  を求めることができるので、このときの吸収関数  $\chi''_{TE}(\omega)$  を測定すれば、偏極度は

$$P_V = \left( \frac{P_{TE}}{\int \chi''_{TE}(\omega) d\omega} \right) \int \chi''(\omega) d\omega \quad (3.8)$$

のように求めることができる。これを面積比較法という。

### 3.1.3 非対称度法

例えば、重陽子化ポリエチレン ( $CD_2$ ) での重陽子の核磁気共鳴による吸収関数は、二つのピークを持っている。これは、原子核の位置に電場勾配が存在すると、原子核の電気四重極モーメントと電場勾配との相互作用により各エネルギー準位が変化して、それらの間隔が等間隔ではなくなるため、スピン状態  $+1 \leftrightarrow 0$  の遷移と  $0 \leftrightarrow -1$  の遷移に相当する周波数が異なった値になり、共鳴曲線が分離する (電気四重極分離) からである。

このように、スピン 1 の原子核が 2 つの共鳴点をもっている場合に、分離した二つのピークの高さの比から偏極度を求める方法が非対称度法である。非対称度法は、系の全種のスピンは同じスピン温度  $T_S$  を持っているという Equal Spin Temperature (EST) 理論の上に成り立っている。この理論によると、偏極励起後も各エネルギー準位の占有数は Boltzmann 分布に従っており、

$$n_m = N e^{\frac{-E_m}{k_B T_S}} \quad (3.9)$$

である。 $m$  は磁気量子数、 $N$  は規格化定数である。

重陽子のそれぞれの状態の占有数は、四重極結合が十分弱い時、近似的に

$$\begin{aligned} n_+ &= N e^{\frac{\hbar\omega_0}{k_B T_S}} \\ n_0 &= N \\ n_- &= N e^{-\frac{\hbar\omega_0}{k_B T_S}} \end{aligned} \quad (3.10)$$



となり、非対称度パラメーター  $r$  を

$$r = e^{\frac{\hbar\omega_0}{k_B T_s}} \quad (3.11)$$

とすると、

$$\frac{n_+}{n_-} = r^2, \frac{n_+}{n_0} = \frac{n_0}{n_-} = r \quad (3.12)$$

である。

重陽子における 2 種類の遷移の強度比は、

$$\frac{n_+ - n_0}{n_0 - n_-} = r \quad (3.13)$$

と表せることから、非対称パラメーター  $r$  は、重陽子の NMR 信号の二つのピークの比をとることによって分かり、この  $r$  を用いて、偏極度は

$$P_V = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_0 + n_-} = \frac{r^2 - 1}{r^2 + r + 1} \quad (3.14)$$

と算出できる。

## 3.2 Qメーター方式による連続波 NMR 測定システム

### 3.2.1 Qメーター方式

Qメーター方式と呼ばれる方法を用いた NMR 偏極度測定システムを図 3.1 に示す。

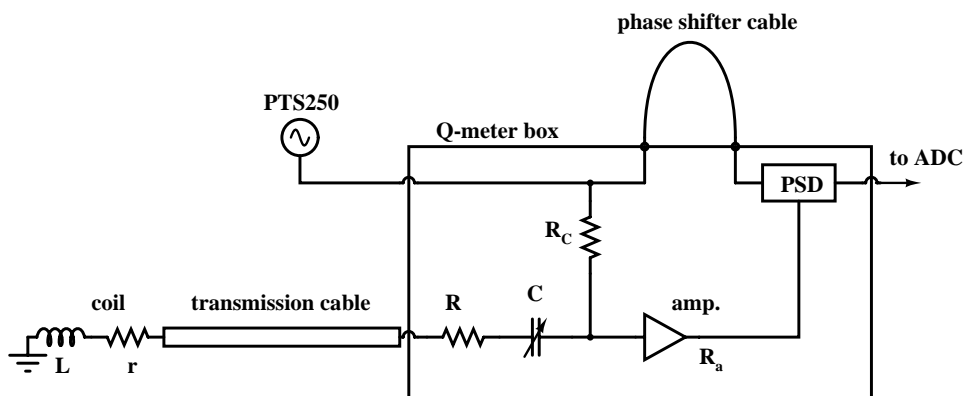


図 3.1: Qメーター方式 NMR 回路図

Qメーター方式とは、中に試料の入ったコイルと、抵抗、コンデンサーで直列共振回路をつくり、この回路のインピーダンスを測定することによってコイル中の試料の磁化率  $\chi(\omega)$  を測定する方法であり、共振回路の各素子には次の役割がある。

- サンプルコイル (インダクタンス  $L$ 、直列抵抗成分  $r$ ) : コイル中に偏極標的試料を入れる。このコイルは試料に高周波 (周波数は偏極させる原子核の Larmor 周波数) を直接照射するインプットの役目と、その揺動磁場を検出し NMR 信号を観測するアウトプットの役目とが共に備わっている。

- コンデンサー ( $C$ ): 静電容量を調整して Larmor 周波数 ( $f_0$ ) で同調する回路をつくる。

$$f_0 = \frac{\omega_0}{2\pi} = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}$$

- 減衰抵抗 ( $R$ ): システムが動作する RF レベルのベースを設定する。Q 値 (システムの感度を表す)  $= f_0/\Delta f = 2\pi f_0 L/R$  を調整する。
- 定電流抵抗 ( $R_C$ ): 回路流れる電流を一定にして、回路のインピーダンス変化を電圧変化として見られるようにする。

真空中でのインダクタンスが  $L_0$  であるコイルに、磁化率  $\chi(\omega)$  の物質を入れた時の回路の出力電圧を計算する。 $\eta$  をコイル中の物質の充填率 (filling factor) とすると、コイルのインダクタンスは、

$$L(\omega) = L_0(1 + 4\pi\eta\chi(\omega)) \quad (3.15)$$

である。

コイルの直列抵抗を  $r$  とすると、コイルのインピーダンスは、

$$Z_{coil}(\omega) = r + i\omega L(\omega) \quad (3.16)$$

となり、図 3.1 のようにコイルとコンデンサーを伝送ケーブル (特性インピーダンス  $Z_{cable}$ 、伝播係数  $\gamma$ 、長さ  $l$ ) で結ぶと、コイルとケーブルを合わせたインピーダンスは、

$$Z_t(\omega) = Z_{cable} \frac{Z_{cable} \tanh(\gamma l) + Z_{coil}(\omega)}{Z_{cable} + Z_{coil}(\omega) \tanh(\gamma l)} \quad (3.17)$$

と表される。

よって、静電容量  $C$  のコンデンサーと抵抗値  $R$  の減衰抵抗も含めたインピーダンスは、

$$Z(\omega) = R - \frac{i}{\omega C} + Z_t(\omega) \quad (3.18)$$

であるから、入力抵抗  $R_a$ 、増幅率  $A$  を持った高周波増幅器の出力電圧は、

$$V(\omega) = \frac{AV_0}{R_C} \frac{Z(\omega)}{XZ(\omega) + 1} \quad (3.19)$$

で表される。ここで、 $V_0$  は回路への入力電圧、 $R_C$  は定電流抵抗値で、 $X = \frac{1}{R_a} + \frac{1}{R_C}$  である。

式 (3.17) において、伝送ケーブルは回路のインピーダンスに複雑な影響を与えるが、 $n$  を整数、 $\gamma = \alpha + i\beta$  として、 $\beta l = n\pi$  の時  $\tanh(\gamma l)$  は実数部分のみになり、ケーブルの影響を最小限にできる。 $\beta$  は誘電率  $\epsilon_c$  と

$$\beta = \frac{\omega\sqrt{\epsilon_c}}{c}$$

という関係がある。 $c$  は光速である。そこでケーブル長は、 $\lambda$  をケーブル中での波長として

$$l = \frac{n\pi}{\beta} = \frac{n\pi c}{\omega_0\sqrt{\epsilon_c}} = \frac{n\lambda}{2} \quad (3.20)$$

を満たせばよい。

位相検波 (Phase Sensitive Detection, PSD) の際、Phase shifter cable で出力信号と参照信号の位相差を調節することにより、出力電圧の実数部分のみを検出することができる。 $x = \frac{\omega - \omega_0}{\omega_0}$  として、この実数部分を展開すると

$$\begin{aligned} \operatorname{Re}\{V(\omega)\} &= A_0(x) \\ &+ A_1(x)\eta\omega L_0\chi''(x) + A'_1(x)\eta\omega L_0\chi'(x) \\ &+ A_2(x)(\eta\omega L_0)^2[-\chi'''(x) + \chi'^2(x)] + A'_2(x)(\eta\omega L_0)^2\chi''(x)\chi'(x) \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (3.21)$$

と表される [6]。  $A_0(x)$  は Q カーブと呼ばれ、  $\chi(\omega) = 0$  のときの出力電圧 (ベースライン) である。回路のパラメーターを適切に選ぶことにより、  $A_1(x)$  を大きく  $x$  に関して一定な関数に、またその他の  $A_n(x)$  を小さくでき、ベースラインの差し引き

$$\operatorname{Re}\{V(\omega, \chi(\omega))\} - \operatorname{Re}\{V(\omega, \chi(\omega) = 0)\} \sim A_1(x)\eta\omega L_0\chi''(x) \quad (3.22)$$

をすることにより吸収関数を選択的に検出できる。

### 3.2.2 システム構成

Q メーター方式による NMR 測定システムの実際の構成について述べる。

- Q-meter box:

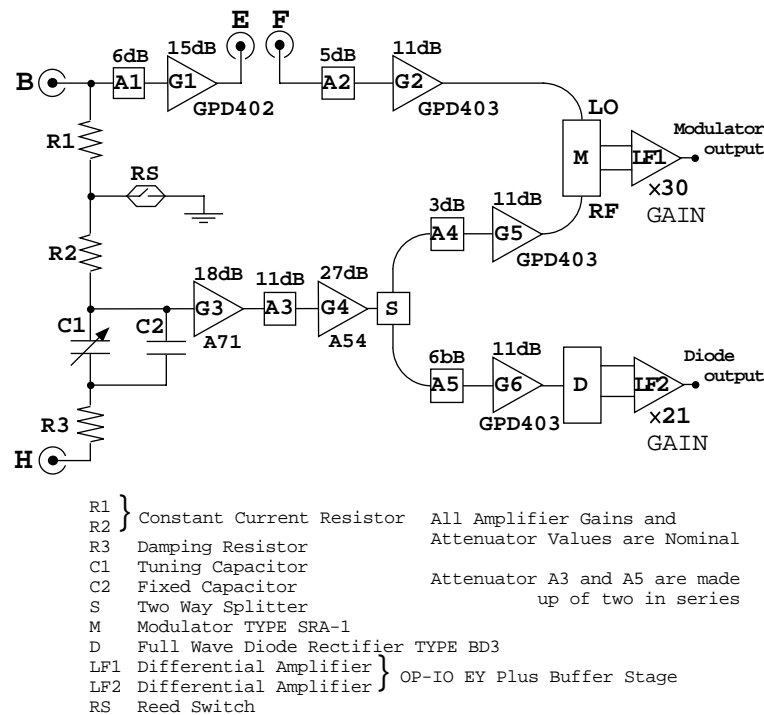


図 3.2: Liverpool 型 Q-meter box

Liverpool 型 Q-meter box (ULTRA PHYSICS 製) は、コンデンサー、減衰抵抗、定電流抵抗、RF 増幅器、ダイオード検波器、及び位相検波器で構成される高周波回路

であり、温度安定性、電磁波によるノイズからの遮断性を持たせるために、銅の塊をくりぬき金メッキを施したケースに組み込まれている。図 3.2 で、E、F で示されるコネクタに Semi-Rigid 同軸ケーブルをつないで、位相検波の参照信号の位相を調節する。

- コイル:  
試料の入ったサンプルコイルは、冷凍器の mixer 中に取り付けられる。コイルはエナメル銅線を巻いて製作し、インダクタンスの測定はネットワークアナライザ (Hewlett Packard 製) によって行った。
- 伝送ケーブル:  
コイルから Q-meter box までを接続するケーブル。旧システム冷凍器では、冷凍器内は 1.98 m の Cu-Ni 同軸ケーブル、冷凍器の外側は Semi-Rigid 同軸ケーブル (UT-85) を用いている。ケーブル全体の長さは式 (3.20) で与えられる長さにする。
- 高周波発振器:  
Larmor 周波数の高周波電圧は PTS250(Program Test,inc. 製) 発振器より生成され、Q-meter box に入り同調回路に加えられる。PTS250 は 10 桁 BCD(2 進化 10 進法) コードにより周波数をデジタル的に制御でき、1 MHz から 250 MHz の領域において 0.1 Hz の精度での発振が可能である。
- Offsetlevel Adjust Card (Yale Card):  
Q-meter box で高周波での増幅、位相検波された信号をここに入力し、低周波での増幅、DC 成分の除去を行う。増幅器の利得は 1、213、334 の 3 通りからスイッチにより選択する。

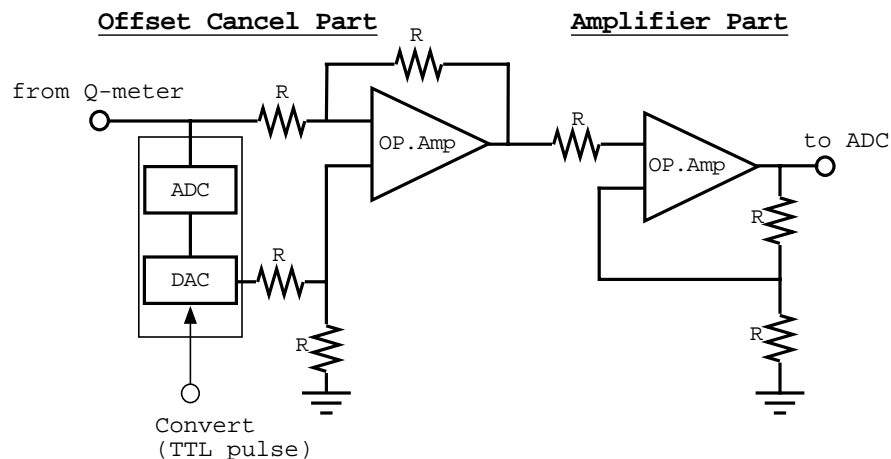


図 3.3: Yale card 回路図

- PC による信号収集システム:  
Yale Card からの出力を Analog-to-Digital Converter(ADC) に入力し、データの記録、保存、統計処理をする。また、TTL level Digital Output モジュールにより PTS250 の制御をする。  
今回、LabVIEW による新しい信号収集システムを作成した (次章)。

### 3.2.3 信号処理

NMR 吸収関数を求めるには、式 (3.22) のようにベースラインの差し引きを行わなくてはならない。また 1 回掃引で得られる信号は S/N が悪いため、通常数千回の掃引を行って信号を平均化する。実際の操作を以下に示す。

- ベースラインのみの掃引 (図 3.4(a))  
共振回路のパラメーター、入力電圧周波数は NMR 信号を取るときと同じにするが、核磁気共鳴が起こらないようにするため、磁場をわずかにずらして掃引を行う。
- NMR 信号を含む掃引 (図 3.4(b))  
NMR が起こるような磁場で掃引を行う。
- ベースラインの差し引き (図 3.4(c))  
(b) から (a) を差し引く。温度変化等による回路素子の特性値変化のために信号は歪んでいる。
- fitting (図 3.4(d))  
本来吸収関数がゼロであるべき周波数領域 (図 3.4(c) におけるスペクトルの両端部分) のデータを吸収関数部分に外挿することで信号の歪みを取り除く。

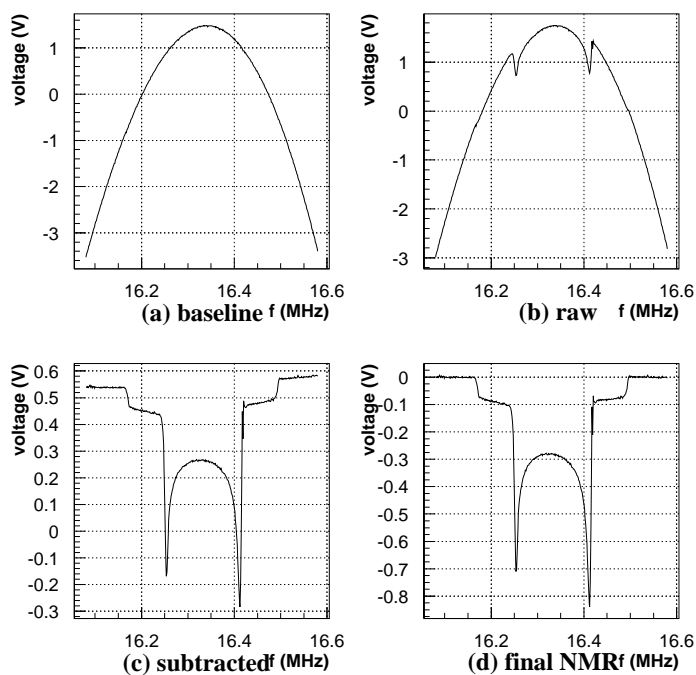


図 3.4: NMR 信号処理

## 第4章 LabVIEWを用いたNMR信号収集システムの構築

LabVIEWはNATIONAL INSTRUMENTS社の製品で、プログラム開発アプリケーションである。最大の特徴は、コードを作成するためにテキストを使用するのではなく、Gというグラフィカルプログラミング言語を使用して、ブロックダイアグラム形式でプログラムを作成する点である。また、広範な関数ライブラリを備えており、これを用いて、データ集録、GPIB計測器制御、データ解析、データ表示、データ記録が容易に出来る。

LabVIEWのプログラムは、ユーザーインターフェースが実物の計測器と似ているため「仮想計測器(VI)」と呼ばれる。階層的なモジュラー形式となっており、Cなどの従来の言語プログラムの関数の様に、サブタスクを実行する部分(サブVI)を組み合わせることで複雑で大きなタスクを実行することができる。

またマルチタスクが可能であるため、最終的には、一台のコンピュータでNMR信号の収集のみならず、温度計、マイクロ波周波数のモニターをし、制御の集中化、データの一元管理を目指す。今回は、NMR信号収集部分を作成した。

### 4.1 使用するハードウェアとソフトウェア

X86系CPU(クロック434MHz)を搭載したAT互換機のPCI拡張スロットに、デジタル入出力ボード(NATIONAL INSTRUMENTS製PCI-DIO-96)、アナログ入出力(ADC/DAC)を備えたボード(NATIONAL INSTRUMENTS製PCI-MIO-16XE-50)をインストールし、これらのデバイスのドライバとしてNI-DAQ 6.6を使用した。データ収集プログラムはLabVIEW 4.0.1Jを用いて作成した。

以下の表は用いるソフトウェアの一覧及びハードウェアの仕様である。

表 4.1: DAQ用PCに導入したソフトウェア

OS	Microsoft WindowsNT 4.0
Application software	NATIONAL INSTRUMENTS LabVIEW 4.0.1J
DAQ board driver	NATIONAL INSTRUMENTS NI-DAQ 6.6
GPIB driver	NATIONAL INSTRUMENTS NI-488.2

表 4.2: Digital I/O (NATIONAL INSTRUMENTS社製PCI-DIO-96)仕様

Compatibility	5V/TTL
Number of channels	96
Transfer rate	50 kbytes/s

表 4.3: ADC & DAC (NATIONAL INSTRUMENTS 社製 PCI-MIO-16XE-50) 仕様

Analog Input	Number of channels	16(single end) 8 (differential)
	Resolution	16 bits
	Sampling rate	20 kS/s
	Input range	±10 V ±5 V ±1 V ±0.1 V 0 to 10 V 0 to 5 V 0 to 1 V 0 to 0.1 V
Analog Output	Number of channels	2
	Resolution	12 bits
	Output rate	20 kS/s
	Output range	±10 V

図 4.1 は NMR 信号収集システムの全体図である。DIO モジュールは、PTS250 の発振周波数を制御するために用い、MIO モジュールの Analog Input チャンネルにおいて、Yale Card にて増幅された Q メーターの出力を測定した。

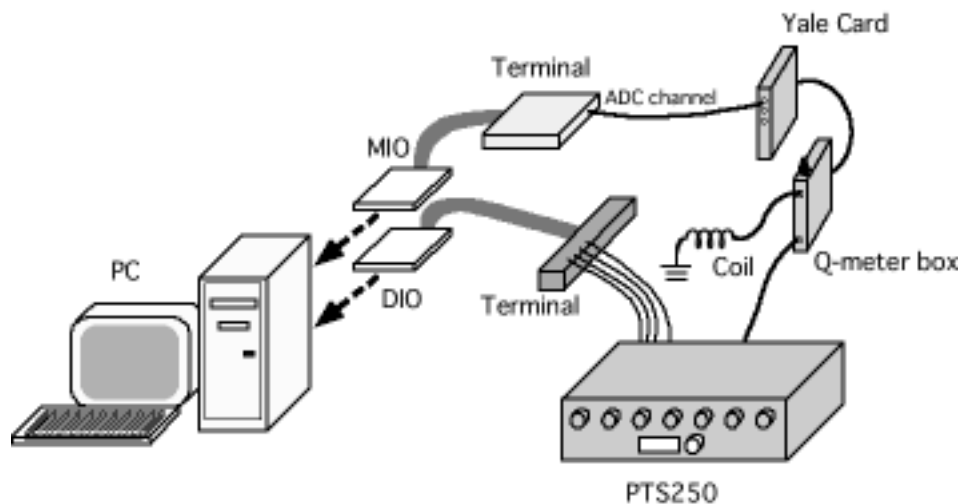


図 4.1: NMR 信号収集システムの全体図





よってこのプログラムでは、次のパラメーターの設定が必要である。

- freq. center: 掃引する周波数の中心周波数
- freq. width: 掃引する周波数の幅
- loops: 周波数掃引回数
- sweep points: 1 回の掃引で出力電圧の測定を行う点の数
- wait time: DIO モジュールに PTS250 周波数制御コードを書き込んでから、MIO モジュールによる読み込みまでの時間

パラメーター”loops”で指定した回数の掃引が終わると、測定周波数ごとに読み取った電圧を”loops”回平均し、Q カーブの差し引きを行ったあと、fitting をして歪みを取り除き、NMR スペクトルを得る。

プログラムのフローチャートを図 4.2 に示す。

このプログラムは、図 4.3 の様にサブ VI にモジュール化され階層的になっている。

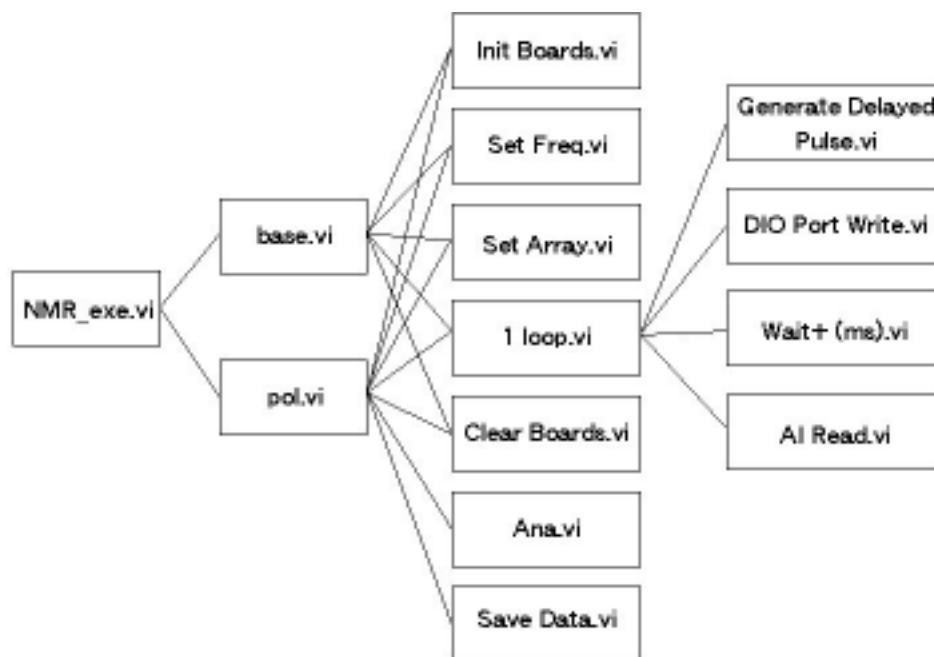


図 4.3: データ収集プログラム階層図

まず、ベースラインのデータ収集を行う base.vi と、NMR 信号を含む掃引時のデータ収集を行う pol.vi があり、これらの VI を構成するさらに下層の VI がある。その各 VI の処理内容は次の通りである。

- Init Boards.vi  
DIO のポート設定、MIO のチャンネル、レンジ、測定データを溜めるバッファ等の設定をし、PTS250 をリモート制御にするためのコードを DIO のポートに書き込む。

- Set Freq.vi  
”freq. center”、”freq. width”、”sweep points”パラメータから、測定する点の周波数を決定する。
- Set Array.vi  
Set Freq.vi で求めた周波数を BCD コードにする。
- lloop.vi  
1 回の掃引で行うプロセスをまとめたサブルーチンで、以下のサブ VI から成る。
  - Generate Delayed Pulse.vi  
各掃引の開始時に、MIO モジュールのカウンター出力チャンネルより TTL レベルのパルスを出し、オシロスコープのトリガーとする。オシロスコープは、Yale Card の出力電圧を確認するために用いる。
  - DIO Port Write.vi  
DIO のポートに周波数制御コードを書き込み、PTS250 の発振周波数を制御する。
  - Wait+ (ms).vi  
回路の出力電圧が安定するまで待つ。
  - AI Read.vi  
回路の出力電圧をバッファから 1 点読み込む。データは 1 回掃引中の何番目の測定点かを示すチャンネル番号と測定電圧の 2 次元配列として取り扱う
- ana.vi  
平均操作、ベースラインの差し引き、fitting を行う。
- Save Data.vi  
各測定点で、PTS250 発振周波数、平均化した出力電圧データ、ベースライン差し引き処理後のデータ、fitting 後のデータ (NMR 吸収関数の信号) の 4 個の要素を持つ 2 次元配列としてデータの保存を行う。
- Clear Boards.vi  
PTS250 のリモート制御を解除するためのコードを DIO のポートに書き込み、MIO のバッファ解放等、設定のクリアをする。

プログラム実行時、それぞれの VI にかかる時間の分析を表 4.4 に示す。

多数回掃引による平均化が必要なため、1 回の掃引時間はできる限り短いことが重要である。

現段階では、バッファに測定データを溜める際内部クロックを用いてタイミングをとっているため、あるサンプリングレートで波形測定をしておいて、AI Read.vi 実行時の最新のデータを必要データとして 1 点ずつ転送している。しかし、外部トリガーを導入すればバッファに溜めるデータの測定タイミングを周波数を変えた時に合わせて取ることができ、1 回掃引分の測定データをまとめて転送できるようになるので、プログラム実行時間を短縮させることが可能である。

表 4.4: データ収集プログラムタイミング表 (1 回掃引 401 点測定の場合)

VI 名	実行時間 合計 (sec)	実行回数 (回)	平均実行 時間 (sec)
pol.vi (signal サブルーチン)	0.3906	1	0.3906
Init Boards.vi	0.01	1	0.01
Set Freq.vi	0	1	0
Set Array.vi	0	1	0
lloop.vi (1 回掃引するサブルーチン)	0.2103	1	0.2103
Generate Delayed Pulse.vi	0.01	1	0.01
DIO Port Write.vi	0.0601	405	0.0002
Wait+ (ms).vi	0	402	0
AI Read.vi	0.1302	401	0.0003
ana.vi	0.01	1	0.01
Save Data.vi	0.01	1	0.01
Clear Boards.vi	0	1	0

図 4.4 にユーザーインターフェースである LabVIEW フロントパネルを示す。パラメータの入力と制御ボタンのクリックのみでプログラムを実行でき、NMR 信号収集操作は非常に簡単である。



図 4.4: LabVIEW フロントパネル

### 4.3 ノイズレベルの確認

この測定系のノイズレベルを調べた。

PTS250 発振器より一定の周波数 16.325 MHz を発振させ回路の出力電圧を測定すると (図 4.5 上段)、120 Hz のノイズが見える (Sampling 間隔は約 500  $\mu\text{sec}$ )。このノイズは振幅が 0.12 V もあるが、多数回の掃引を行い平均化することによって排除している (平均化によるノイズレベル減少は図 5.6 で示される)。

また、1.5 V 乾電池を MIO モジュールの Analog Input 端子につないで電圧を測定し、MIO モジュールの ADC 性能を確認した (図 4.5 下段)。Analog Input チャンネルの設定レンジは  $\pm 10$  V であり、16 bit の精度があるので、1 digit が 0.3 mV になる。

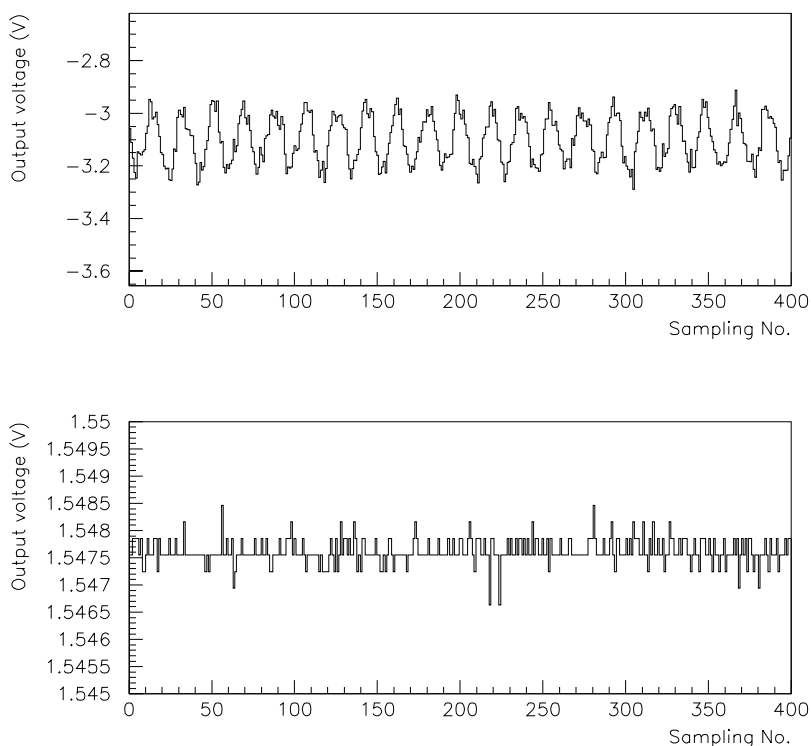


図 4.5: 測定システムのノイズレベル。上段は一定周波数を回路に入力したときの出力電圧で、下段は乾電池を MIO モジュールの Analog Input 端子につないで電圧測定したもの。

表 4.5: 測定システムのノイズの標準偏差

一定周波数を入力したときの回路出力電圧標準偏差 (mV)	88.05
乾電池を Analog Input 端子に繋いだ時の電圧標準偏差 (mV)	0.23

# 第5章 Qメーター方式NMRシステムの改良

## 5.1 Synchronous Resonance Tuning (SRT) の採用

微小 NMR 信号を検出するための方法としては、Synchronous Resonance Tuning (以下 SRT)、Synchronous Phase Tuning 等が提案されている [7]。実際に PSI (Paul Scherrer Institute, Switzerland) で SRT を用いて 20 mg の偏極度  $P = 15.4\%$  における薄膜状  $CD_2$  の偏極励起信号の検出に成功している [8] ことから、SRT による S/N 向上を試みる事にした。

### 5.1.1 SRT の方法

SRT は、可変容量ダイオード (バリキャップダイオード) を用いて共振回路の静電容量 ( $C$ ) を掃引する周波数に同期して変えることにより、回路が常に共鳴状態となるようにしたものである。そのため、掃引する周波数域の全ての検出点において高い感度で検出できる。

バリキャップダイオードの静電容量は、ダイオードの PN 接合にかけられる逆バイアス電圧の関数であり、MIO モジュールの DAC (Analog Output チャンネル) を用いて逆バイアス電圧を制御することで回路の共鳴状態が得られるような静電容量にする。この DAC によるチューニングを周波数掃引中の各測定点で行うことにより、共鳴点のトラッキングができる。

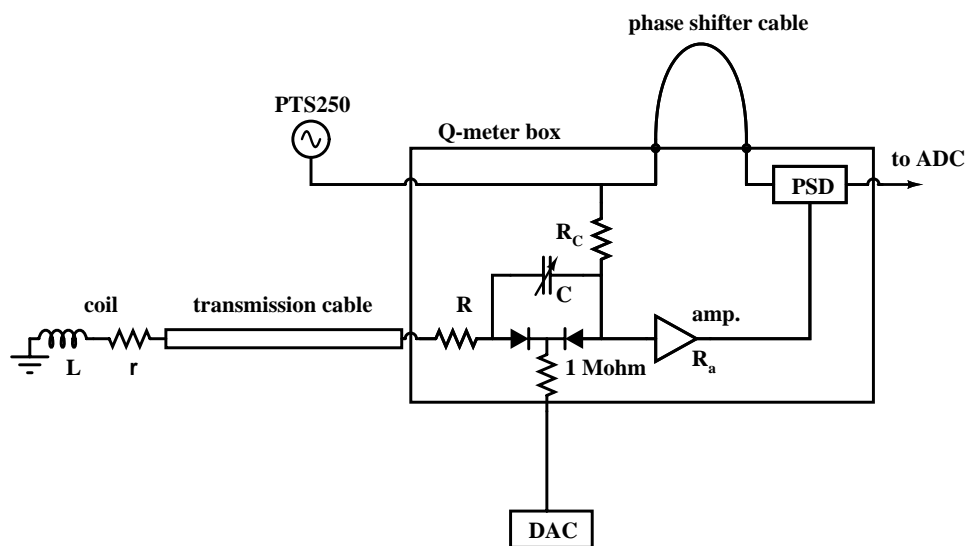


図 5.1: SRT 回路図

### 5.1.2 Liverpool Q-meter box の修正

これまでの Q-meter box の可変コンデンサ調節つまみ部分はずし、代わりに BNC コネクタを取り付けて、可変容量ダイオードへ印加する電圧ラインを Q-meter box へ導入した。

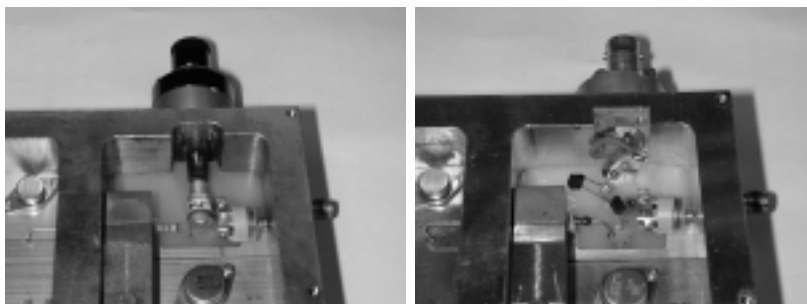


図 5.2: Q-meter box 修正部分。左が修正前で手動の可変コンデンサがついており、右が修正後でバリキャップダイオードをつけたもの。

### 5.1.3 可変容量ダイオードの選択について

可変容量ダイオードは、内部直列抵抗が共振回路の減衰抵抗より十分小さく、印加する電圧の変化に対する静電容量の変化量が次の点で適正であるように注意して選択した。

- DAC の制御電圧が 0~10 V の範囲内で、共鳴点の周波数を掃引幅の端から端まで動かせること。バリキャップダイオードの容量変化比が小さすぎると、制御電圧を大きく変化させても共鳴点が十分にシフトせず、トラッキングができなくなる。
- DAC の精度が 12bit で Output range が  $\pm 10$  V であることから電圧制御は 4.9 mV ステップになる。よって数 mV の電圧変化で共鳴点が大きく変化するようなダイオードを用いると、静電容量の微調整ができずトラッキングができなくなる。また、DAC 出力には 5 mV 程度のノイズがのるため共鳴点にずれが生じ、出力電圧のノイズレベルを増加させる。DAC からのノイズを導入しないためにも、ある程度容量変化比が小さいバリキャップダイオードを用いることが重要である。

適するバリキャップダイオードは用いるコイルのインダクタンス値によっても違ってくる。例えば、共振回路のコイルのインダクタンスを大きくした時、取るべき静電容量は、共鳴条件  $f_0 = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}$  (実際には伝送ケーブルの影響でこの通りではない) に従って小さくなる。バリキャップダイオードと並列な容量固定のコンデンサの静電容量を小さくすると、バリキャップダイオードの容量変化の共振回路への影響が大きくなるために、DAC 電圧の変化に対して共鳴点がより大きく変化することになるので、バリキャップダイオードの容量変化比を小さくしなければならない。

2.5T 磁場中の重陽子 NMR 信号を取る為に、インダクタンス 500 nH のコイル及び、東芝製 1SV101 可変容量ダイオードと、それに並列な 100 pF コンデンサを用いた場合、図 5.3 に示すような、DAC 電圧と共鳴周波数の対応が得られた。

また、バリキャップダイオードの制御電圧を変えてから出力電圧が安定するまでの時間は、約 50  $\mu\text{sec}$  程度である (図 5.4)。これは、PTS250 発振器の周波数制御から出力電圧安定までにかかる時間と同程度であり、出力電圧測定を行うタイミングを変える必要はない。

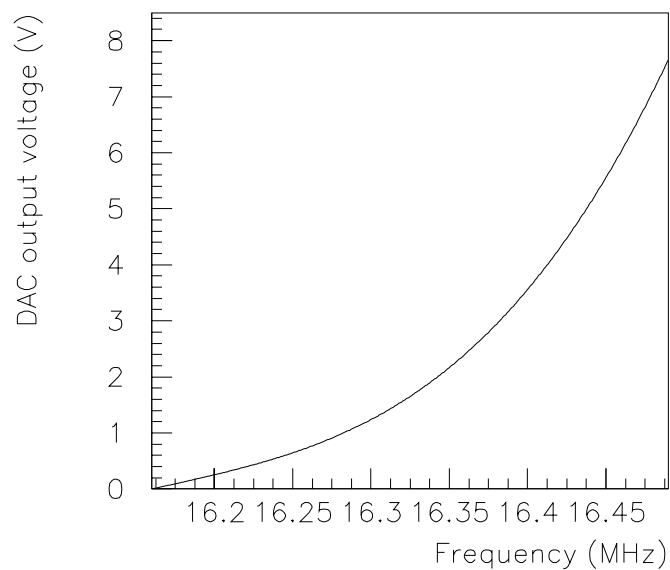


図 5.3: 共鳴周波数と DAC 電圧の対応

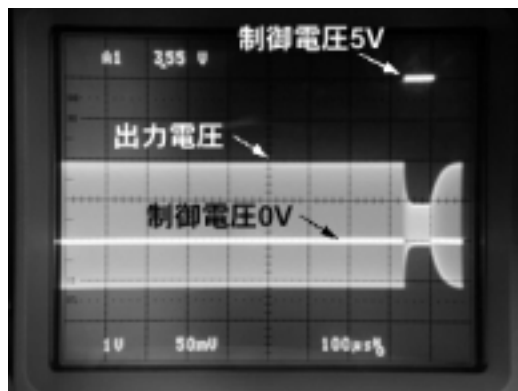


図 5.4: バリキャップダイオードの応答時間。2 つ組みにしたバリキャップダイオードに PTS250 から 100 MHz の高周波電圧を入力し、その出力をオシロスコープで見た。制御電圧を 0 V から 5 V にステップ関数的に変化させると、白い帯状に見えている高周波出力電圧最大値は約 20  $\mu\text{sec}$  の間に徐々に変化した後一定値になる。また制御電圧を 5 V から 0 V に戻すと約 50  $\mu\text{sec}$  で出力電圧最大値は一定になる。

### 5.1.4 信号収集プログラムの修正

NMR 信号収集プログラムの中でバリキャップダイオードの制御電圧を出力するために、Init Boards.vi での処理に MIO の Analog Output(AO) チャンネルの設定を追加し、1 回掃引の各測定点で実行されるプロセスを次の様に変更した。

1. Generate Delayed Pulse.vi
2. DIO Port Write.vi
3. AO Single Update.vi:  
新しく追加したサブ VI。MIO の Analog Output チャンネルからバリキャップダイオード制御電圧を出力し、測定点で回路を共鳴させる。
4. Wait+ (ms).vi
5. AI Read.vi

AO Single Update.vi の実行にかかる平均時間は  $0.1 \mu\text{s}$  程度であり、1 回掃引を実行する時間はプログラム変更前とほとんど変わらない。

### 5.1.5 バリキャップダイオード制御電圧の決め方

図 5.3 のような周波数とバリキャップダイオード制御電圧との対応付けは、LabVIEW でプログラムを作成することにより簡便にした。このプログラムでは、制御電圧  $V_C$  を数十 mV ステップで変えながら、各  $V_C$  毎に次の処理を行い、対応する共鳴周波数を求める。

1. バリキャップダイオード制御電圧  $V_C$  を MIO モジュール Analog Output チャンネルより出力する。
2. ベースラインサブ VI を実行し、Q カーブ測定を行う。(共鳴点のトラッキングを行わない従来の測定を行う)
3. fitting により Q カーブの頂点 (共鳴点) を見つけ、その時の周波数を保存する。

こうして得た制御電圧  $V_C$  と共鳴周波数の相関は、4 次までの多項式を用いて fitting を行い、回路への入力周波数における制御電圧の決定を行う。



### 5.1.6 SRT を用いた測定時のベースライン

バリキャップダイオード制御電圧を大きくすると回路の静電容量が小さくなり、回路の共振点、すなわち Q カーブの頂点は、周波数が大きくなる方向にシフトする。回路が常に共振状態である SRT を用いた測定は、掃引周波数域の全ての測定点において Q カーブの頂点で出力電圧測定を行うことに等しいので、ベースラインの形はシフトする Q カーブの頂点を結んでできる曲線になる (図 5.5)。

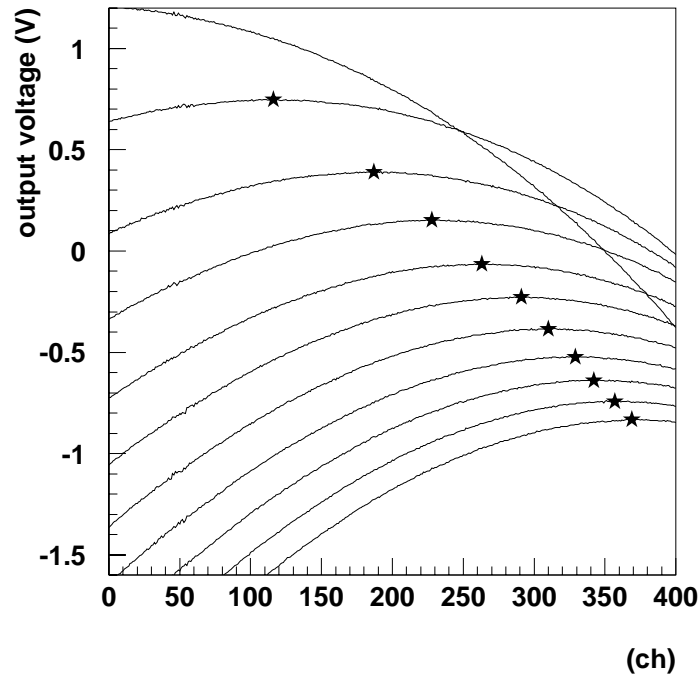


図 5.5: SRT ベースラインの形。バリキャップダイオード制御電圧を変えることによって移動していく Q カーブの頂点 (星印) 結ぶ曲線が SRT を用いた測定のベースラインになる。

### 5.1.7 バリキャップダイオードの追加により導入されるノイズ

バリキャップダイオードを共振回路に加えたことにより、ノイズが増加したかどうかを確認した。

図 5.6 は、ベースラインを 2 回とり、一方から他方を差し引いたものである。掃引回数は 100 回、1000 回、10000 回とし、平均化を行った。

このように、バリキャップダイオードを注意深く選択することによって、DAC およびバリキャップダイオードからのノイズを、従来の方法と比較して同程度に抑えることができる。

表 5.1: ノイズレベル測定パラメーター一覧

回路パラメーター	
Larmor 周波数	16.325 MHz
周波数掃引幅	0.4 MHz
発振器出力	0.4 V
高周波減衰器 (Q-meter 入力時)	30 dB
コイルのインダクタンス	~500 nH
伝送ケーブルの長さ	6.4 m
Yale Card での増幅率	334
減衰抵抗 (以後固定)	10 $\Omega$
定電流抵抗 (以後固定)	540 $\Omega$
増幅器入力インピーダンス (以後固定)	50 $\Omega$
LabVIEW パラメーター	
freq. center	16.325 MHz
freq. width	0.4 MHz
sweep points	401
loops	100, 1000, 10000
wait time	0.03 msec

表 5.2: バリキャップダイオードの追加により導入されるノイズ

掃引回数	出力電圧標準偏差 (mV)	出力電圧標準偏差 (mV)
	without SRT	with SRT
100 回	1.38	1.45
1000 回	0.50	0.71
10000 回	0.19	0.19

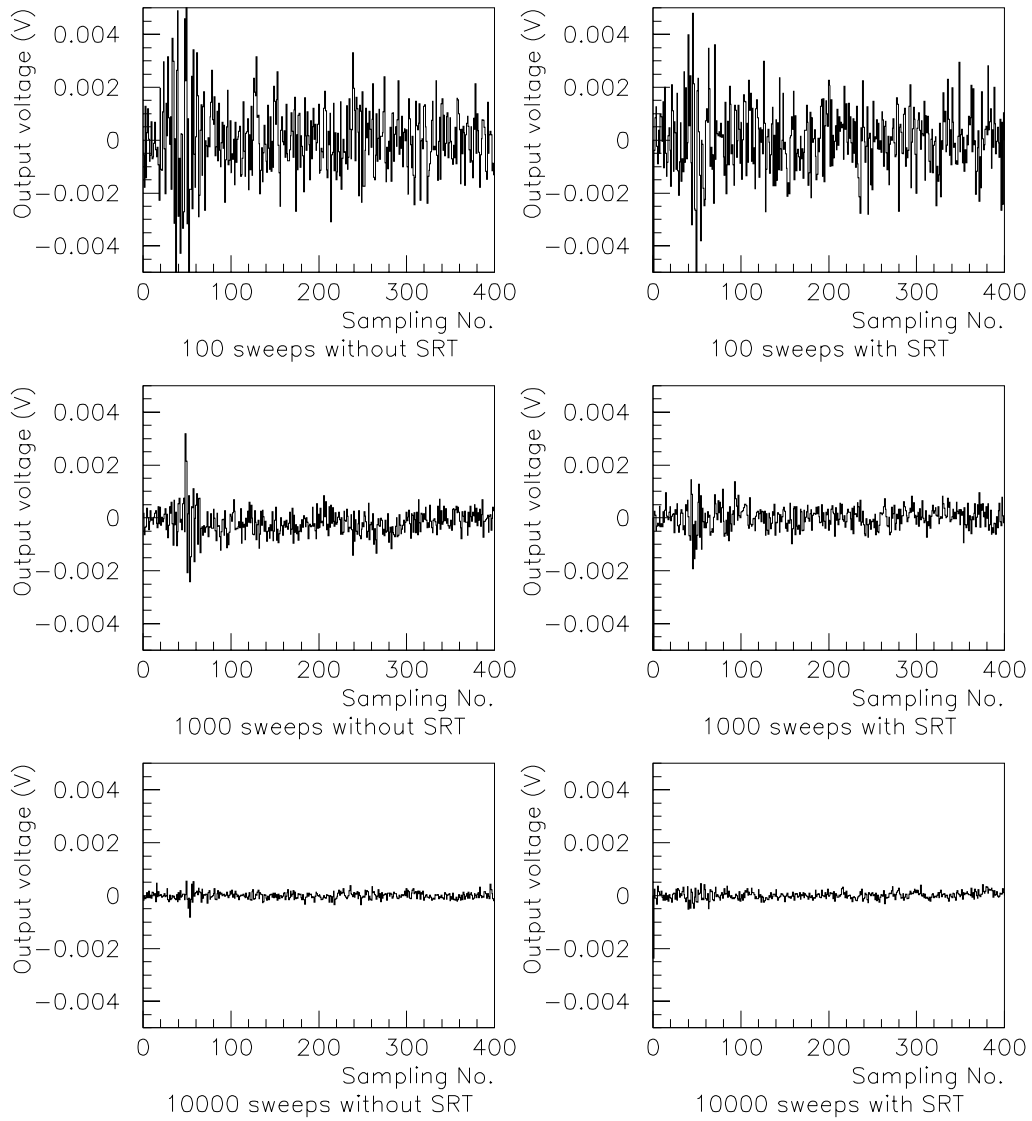


図 5.6: バリキャップダイオードの追加により導入されるノイズ。左側は従来のシステム、右側は SRT を用いたシステムで、上段より、100 回掃引、1000 回掃引、10000 回掃引したもの。

## 5.2 CD<sub>2</sub> 試料の熱平衡信号の測定

SRT を用いた NMR 測定で薄膜状 CD<sub>2</sub> の熱平衡信号を取り、従来の NMR 信号と比較した。CD<sub>2</sub> 試料は  $\phi$  50 mm、20~60  $\mu$ m 厚の円形薄膜を 20 枚程度重ね円筒状に巻いて製作したもので 1.5 g である。今回のテストでは、従来の方法との比較を行うため従来と同程度の大きさの試料を用いた。

図 5.7 において、左側が従来のシステム、右側が SRT を用いたシステムで、上段より、ベースライン、5000 回掃引によって得られる NMR 信号、10000 回掃引によって得られる NMR 信号である。ベースラインについて SRT を用いた測定と従来の測定を比較すると、SRT を用いた測定の方が従来の測定よりもベースラインの電圧変動域が大きくなっており、Yale Card 出力で飽和を起こさないように回路へ入力する高周波電圧の大きさや出力信号の増幅を抑えなければならないので、信号が小さくなる。この制限のために、SRT による S/N の改善は見られなかった。しかし検出した NMR 信号は、fitting による修正が不可能なほど歪むという事はなく、従来の測定と同じような形になった。

ベースラインが傾くのは、長い伝送ケーブルを用いる事による大きな位相変化のためであると考えられる。次節で、ベースラインおよび信号へのケーブルの影響についての計算を行った結果を示す。

ケーブルの長さの条件は  $l = n\lambda/2 = 0$  m または 6.4 m であり、3.2 m の時が最も測定に不利である。PSI の SRT システムでは、伝送ケーブルの長さを  $l \approx 1.2m \ll \lambda/4$  にして微小信号の検出に成功しているが、 $\vec{D}(\vec{d}, p)T$  実験用クライオスタット (図 1.1) では、mixer からクライオスタットの外側までを結ぶケーブルだけでも約 1.5 m になり、Q-meter box までの全体のケーブル長を 2 m 以下にすることは難しい。ケーブルの長さが  $l = n\lambda/2$  より大きくはずれないためには、どうしても 5 m 以下にはできないことになる。そこで、ケーブルによる位相差の影響をなくす回路をつくらなければ、我々のシステムでは SRT の利点を生かすことができない。

表 5.3: CD<sub>2</sub> 熱平衡信号測定パラメーター一覧

回路パラメーター	
Larmor 周波数	16.325 MHz
周波数掃引幅	0.33 MHz
発振器出力	0.45 V
高周波減衰器 (Q-meter 入力時)	23 dB
コイルのインダクタンス	~500 nH
伝送ケーブルの長さ	6.4 m
Yale Card での増幅率	334
LabVIEW パラメーター	
freq. center	16.325 MHz
freq. width	0.33 MHz
sweep points	401
loops	1000, 5000, 10000
wait time	0.03 msec

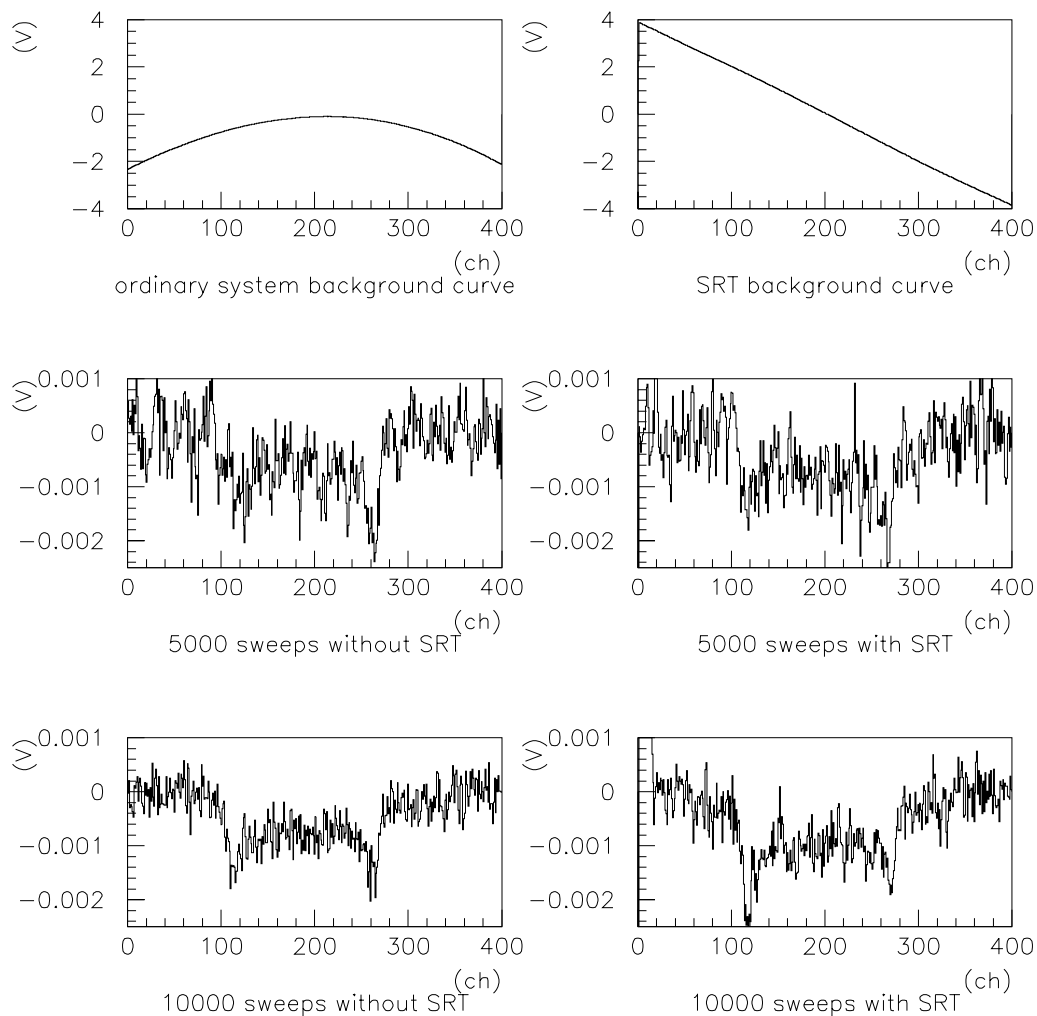


図 5.7:  $\text{CD}_2$  試料の熱平衡信号。左側が従来のシステム、右側が SRT を用いたシステムで、上段より、ベースライン、5000 回掃引によって得られる NMR 信号、10000 回掃引によって得られる NMR 信号。

### 5.3 ケーブルの影響についての考察

SRT を用いる上で伝送ケーブルが障害となるのは次の2点においてである。

- 式 (3.22) の近似においては、コイルのインダクタンス値  $L_0$  を大きくすれば信号は任意に大きくできるはずである。しかし高次の項まで考えた時、伝送ケーブルの影響によりシステムの感度が制限される。コイルのインダクタンスに最適値があり、それより大きなインダクタンスのコイルを用いると信号が小さくなる。つまり、コイルのインダクタンスを大きくすることにより、信号を大きくすることができない。
- 共振回路の静電容量  $C$  を変化させて共鳴点をトラッキングした時に、共鳴点での出力電圧の周波数依存が大きく、ベースラインの傾きが急になる。そのため前節で述べたように十分な増幅ができない等の問題が起こる。

これらのことを出力電圧のシミュレーションを行い確認した。

シミュレーションのプログラムは FORTRAN77 を用いて作成した (付録 A)。ここでは、我々が典型的に用いる回路パラメーター (表 5.4) を式 (3.19) に代入して得られるベースライン  $V(\omega, \chi = 0)$  と、さらにある一定大きさの  $\text{CD}_2$  の NMR 吸収関数 [9] を代入して得られる NMR 信号  $V(\omega, \chi) - V(\omega, \chi = 0)$  を計算した。

すると、伝送ケーブル長が  $n\lambda/2 = 6.42 \text{ m}$  の時は、あるインダクタンスにおいて信号の大きさが最大になるのに対し、ケーブル長  $0 \text{ m}$  の時はインダクタンスに比例して信号が大きくなる (図 5.8)。静電容量  $C$  はインダクタンスに反比例して小さくしなければならないが、実際に回路をつくる上では数十 pF 程度が現実的なので、インダクタンス  $5 \mu\text{H}$  で測定を行うとして、静電容量の変化に対する Q カーブの動きを計算した (図 5.9)。

これらの計算の結果、伝送ケーブルが含まれない共振回路を用いれば、インダクタンスの大きなコイルを用いて大きな信号出力が得られ、また、ベースラインが平らになることにより出力信号の増幅を大きくすることも可能であることがわかった。

表 5.4: シミュレーションに用いた回路パラメーター

$f_0$	Larmor 周波数	16.35 MHz
$\Delta f$	周波数掃引幅	0.5 MHz
$r$	コイルの直列抵抗成分	$0.3 \Omega$
$R$	減衰抵抗値	$10 \Omega$
$R_a$	高周波増幅器入力インピーダンス	$50 \Omega$
$R_C$	低電流抵抗値	$540 \Omega$
$Z_{cable}$	伝送ケーブル特性インピーダンス	$50 \Omega$
$l$	伝送ケーブルの長さ	6.42 m, 0 m
$A$	増幅率	30000
$V_0$	高周波入力電圧	0.1 V
$\alpha$	伝送ケーブル減衰定数	0.024 Np/m
$\epsilon_c$	伝送ケーブル誘電率	2.0

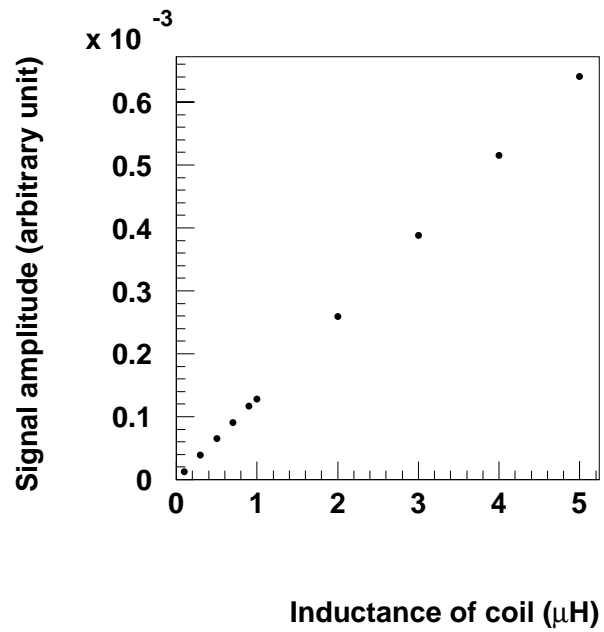
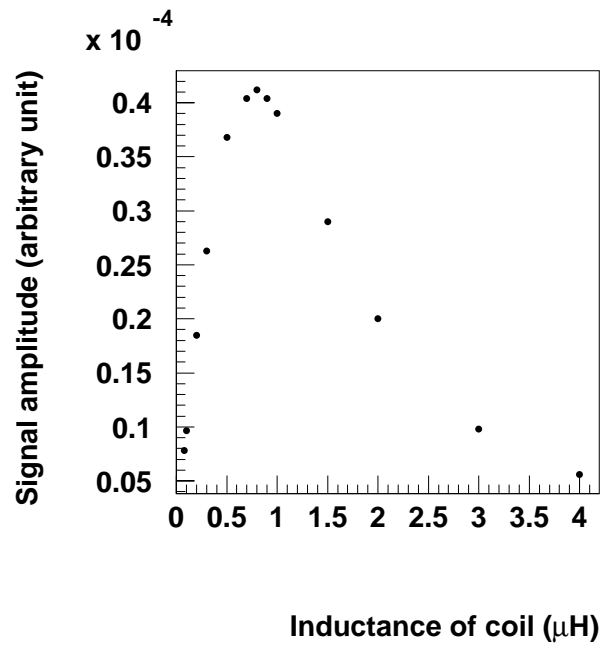


図 5.8: コイルのインダクタンスと検出される NMR 信号の大きさの関係。上図は伝送ケーブル長を 6.42 m とした時で、700 nH 付近がコイルのインダクタンス最適値となっている。下図は伝送ケーブル長 0 m の時で、コイルのインダクタンスに比例して大きな信号が検出される。

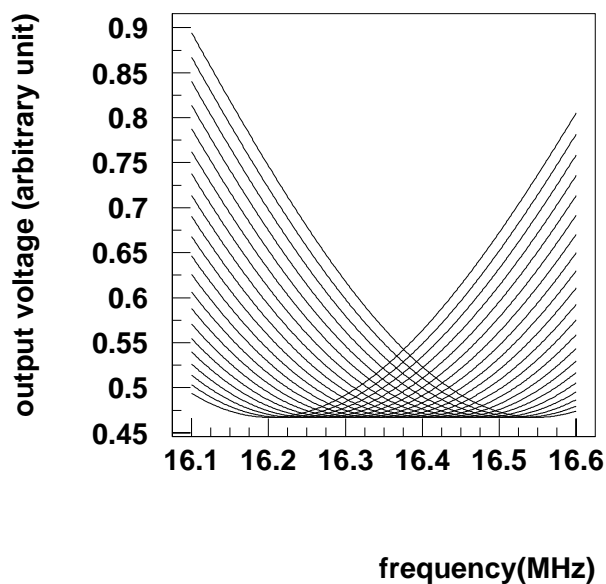
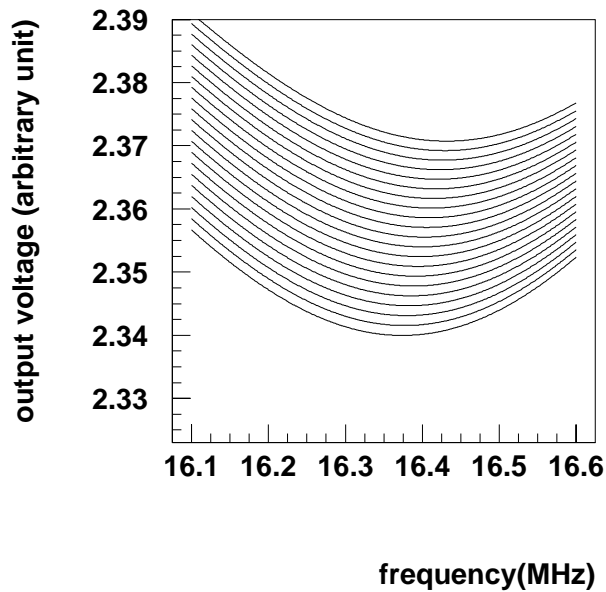


図 5.9: 回路の静電容量を変化させたときの Q カーブの変化。コイルのインダクタンスは、 $5 \mu\text{H}$ とした。上図は伝送ケーブル長 6.42 m の時で、共鳴点での出力電圧が大きく変化しているのに対し、下図の伝送ケーブル長 0 m の時は、共鳴点での出力電圧は等しく、Q カーブが水平に動く。(注：この計算では、実際の測定での反転アンプによる回路出力の反転を考慮していない。)



## 5.4 ケーブルの影響を除去する方法

共振回路の構成要素の中に伝送ケーブルが含まれていると、信号に対するベースラインの変動域の比率が大きくなってしまい、信号に対する効果的な増幅が困難になる。

また、伝送ケーブルを含まない共振回路においては、コイルのインダクタンスを大きくする程、高感度の測定ができるという計算結果を得た。

そこで、[10] で提案された伝送ケーブルが共振回路を構成しないような回路を試作した。

### 5.4.1 伝送ケーブルを含まない共振回路

従来の回路 (図 5.1) を改良して伝送ケーブルの影響を取り除く回路にするには、図 5.10 の様に共振回路部分を Q-meter box の外側に作り、これまで 1 本だった伝送ケーブルを、PTS250 発振器からの高周波電圧入力用のケーブルと、回路の出力として Q-meter box につないで位相検波を行うケーブルの 2 本に分けて用いる。PTS250 発振器からの高周波電圧は splitter (R&K 製高周波分配/合成器 PD3CA, 1~500 MHz 周波数域対応) で二つに分け、一方を共振回路に入力し、他方を位相検波の参照信号に用いる。

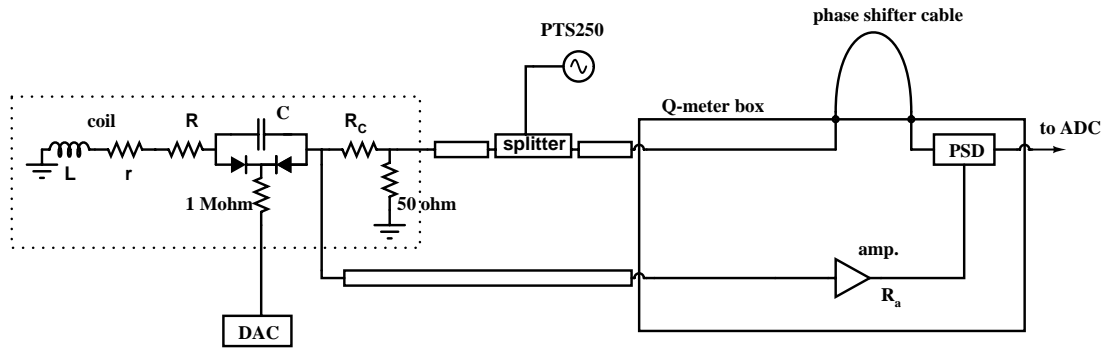


図 5.10: 伝送ケーブルを含まない共振回路を用いた Q メーター回路

この伝送ケーブルの影響を取り除いた共振回路を分かり易い等価回路で書くと図 5.11(b) のように表すことができる。(a) の回路は、これまでの長さ  $n\lambda/2$  m の伝送ケーブルを含む回路を示している。

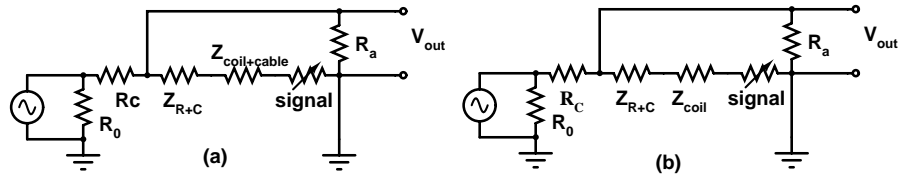


図 5.11: Q メーター回路の等価回路。(a) がこれまでの回路、(b) が伝送ケーブルの影響がない回路と等価な回路図。 $Z_{\text{coil+cable}}$  はコイルとケーブル、 $Z_{R+C}$  は減衰抵抗とコンデンサーの合成インピーダンスである。

図 5.10 の点線で囲まれた部分を、図 5.12 の様に 41 mm × 72 mm の基板に素子を配置し、D<sub>2</sub>O の常温測定用回路とした。これはあくまで、このシステムのテスト用であり、偏極励起させた試料を測定する場合はこの部分を冷凍器中に取り付けるため、できる限り小さい基板上にチップ型の高周波用素子を用いなければならない。

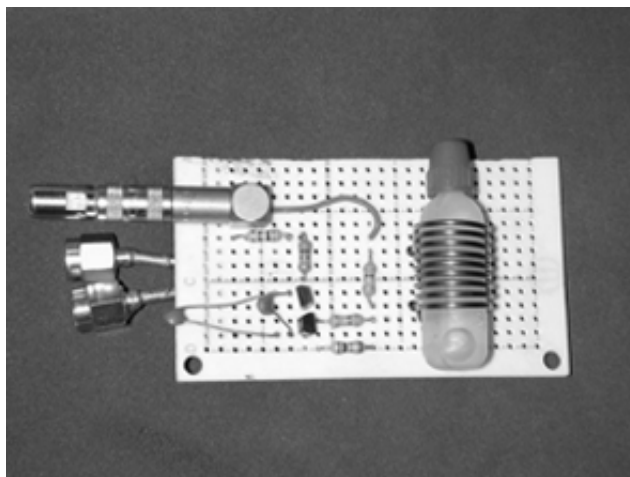


図 5.12: 伝送ケーブルを含まない共振回路。図 5.10 中の点線で囲まれた部分の回路を製作した。コイル中に D<sub>2</sub>O 試料がある。

Q-meter box も図の様に、高周波電圧を入力するコネクタからのラインが、共振回路部分を経由しないで増幅器に繋がるように変更した。

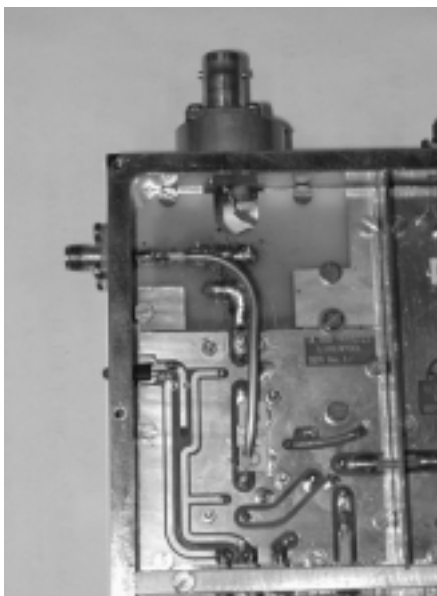


図 5.13: Q-meter box の共振回路部分の変更

## 5.5 ケーブルの影響のないシステムでの測定結果

### 5.5.1 ノイズレベル

伝送ケーブルが共振回路の一部であった場合のノイズレベルは、標準偏差で 88.05 mV もあり図 4.5 のように、120 Hz のノイズがのっていたが、伝送ケーブルを共振回路から排除したことでノイズを拾いにくくなり、ノイズ標準偏差が 8.77 mV に格段に減少した。

ケーブルを含まない回路を用いると、ノイズの軽減という面からも S/N を上げるのに有利であることが分かる。

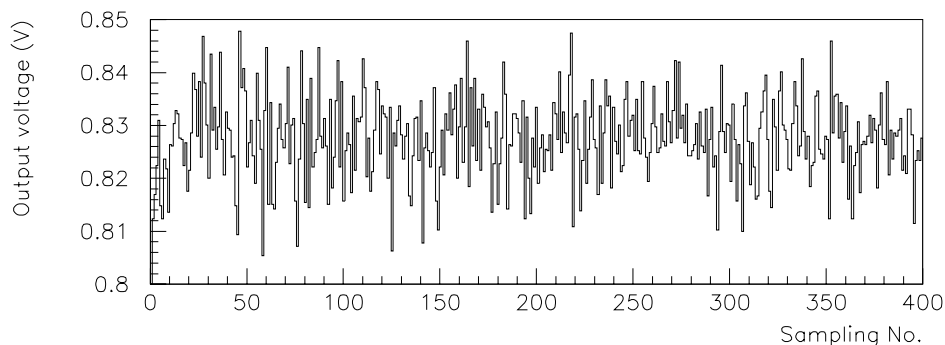


図 5.14: ケーブルの影響のない回路のノイズレベル。測定条件は図 4.5 と等しい。

表 5.5: ケーブルの影響のない回路で一定周波数を入力したときの出力電圧標準偏差

従来の伝送ケーブルを含む回路のノイズの標準偏差 (mV)	88.05
ケーブルを含まない回路のノイズの標準偏差 (mV)	8.77

## 5.5.2 ベースライン

静電容量を変えながら Q カーブの測定をし、Q カーブの頂点電圧が周波数によってどれ程変化するかを調べた。コイルのインダクタンスは  $5 \mu\text{H}$  としたので Q カーブは深くなり、回路への入力高周波の電圧を小さくすることで、増幅器の飽和を避けた (表 5.6 に測定パラメーターを示す)。コイルのインダクタンス  $5 \mu\text{H}$  に合わせて、バリキャップダイオードを 1SV186(東芝製) にし、それと並列に  $18 \text{ pF}$  の容量固定のコンデンサーを付けた。

Q カーブの頂点を結ぶ線が SRT を用いた測定を行う時のベースラインになるが、その出力電圧の変動域は、従来の測定でのベースラインである Q カーブの十分の一程度にまで減らされる (図 5.15)。この様に高インダクタンスコイルを用いても、ケーブルの影響がない回路ではベースラインの電圧幅を小さくできることを確認した。

表 5.6: 伝送ケーブルを含まない共振回路を用いたベースライン測定パラメーター一覧

回路パラメーター	
Larmor 周波数	16.325 MHz
周波数掃引幅	0.4 MHz
発振器出力	0.1 V
高周波減衰器 (Q-meter 入力時)	20 dB
コイルのインダクタンス	$\sim 5 \mu\text{H}$
Yale Card での増幅率	334

LabVIEW パラメーター	
freq. center	16.325 MHz
freq. width	0.4 MHz
sweep points	401
loops	1
wait time	0.03 msec

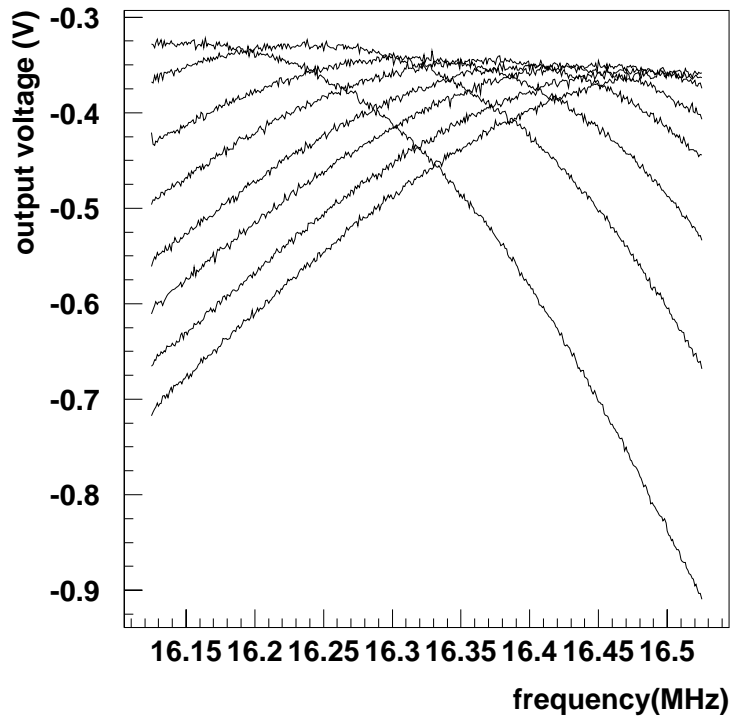


図 5.15: 静電容量を変えた時の Q カーブの変化。Q カーブの頂点を結んだ線が SRT 測定のベースラインになる。

### 5.5.3 D<sub>2</sub>O 信号の測定による評価

試作した回路を用いて 2.85 g の重水 (D<sub>2</sub>O) の常温での熱平衡信号を測定した。

ここでは幅の狭い信号を測定するので、SRT を用いずに、静電容量を固定したままの従来の Q カーブをベースラインとした。周波数掃引幅を狭く取ったため出力電圧の幅は十分な増幅が可能な程度の大きさに収まった。

コイルのインダクタンスは従来の典型値である 500 nH と、できる限り大きいインダクタンス値 5  $\mu$ H の両方で測定を行い比較した (図 5.16)。

表 5.9 に示す通り、5  $\mu$ H のコイルを用いて測定した信号の方が 500 nH のコイルを用いて測定した信号に比べて、信号の大きさの絶対値で 4.0 倍、S/N で 2.4 倍の向上が見られた。

インダクタンスを 10 倍にしても信号の大きさを 10 倍にできなかったのは、以下の理由で回路の Q 値が上がらなかったためと思われる。

- コイルに合わせてバリキャップダイオードとコンデンサーを取り替えたため、回路の Q 値はこれらの素子の性能に制限された。
- 5  $\mu$ H のコイルは、500 nH のコイルよりも細いエナメル線を巻いて作ったため、コイル自身の Q 値が低下した。

よって、素子の選定を慎重に行うことにより、より大きな信号が得られる可能性がある。

表 5.7: D<sub>2</sub>O 常温熱平衡信号測定パラメーター一覧

回路パラメーター	
Larmor 周波数	16.325 MHz
周波数掃引幅	0.05 MHz
発振器出力	0.5 V
高周波減衰器 (Q-meter 入力時)	20 dB
コイルのインダクタンス	~5 $\mu$ H
Yale Card での増幅率	334

LabVIEW パラメーター	
freq. center	16.325 MHz
freq. width	0.5 MHz
sweep points	401
loops	1000
wait time	0.03 msec

表 5.8: バリキャップダイオード型番

コイルインダクタンス値	バリキャップダイオード型番	並列コンデンサー
500 nH	1SV101(2 個)	110 pF
5 $\mu$ H	1SV186(2 個)	18 pF

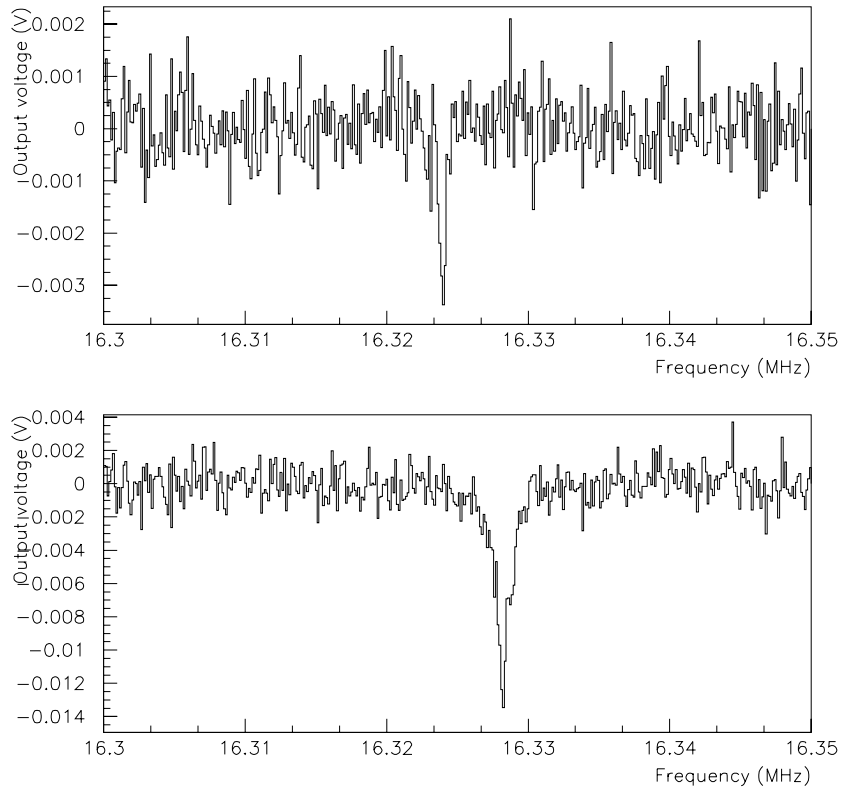


図 5.16: コイルインダクタンスの違いによる D<sub>2</sub>O 信号の大きさの変化

表 5.9: 2 種類のコイルで測定した D<sub>2</sub>O 信号の S/N の比較

コイルのインダクタンス	信号の最大電圧	ノイズの標準偏差	S/N
500 nH	-0.00337	0.0006	5.62
5 $\mu$ H	-0.01346	0.0010	13.46

CD<sub>2</sub>のような幅の広い信号を測定する場合、特に高インダクタンスのコイルを用いてQカーブを深くすると、通常信号が歪む(図 5.17)。

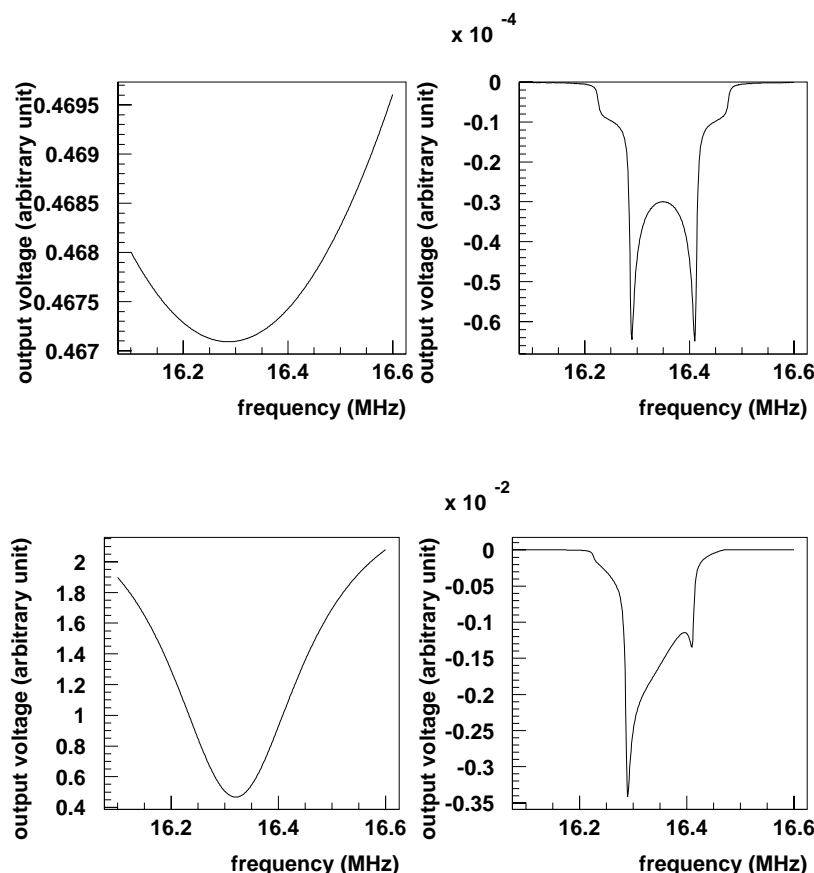


図 5.17: 高インダクタンスコイルを用いることによる信号の歪み (計算値)。上段の図はインダクタンスが 500 nH のコイルを用いた時の Q カーブと NMR 信号であり、下段の図は 30 μH のコイルを用いた時のものである。

これは回路の共振周波数での感度に比べて、共振周波数からずれた周波数での感度が著しく低下するためである。そこで、SRT を用いて掃引周波数幅全域で高感度測定を行えばこの問題を解決できると期待できる。

これを確認するため、同じ D<sub>2</sub>O 吸収関数の検出信号の大きさが検出される周波数の違いによってどれ程変わるかを調べた(図 5.18)。ここでは静磁場を変えることにより Larmor 周波数を変えた。

この時検出信号のピーク電圧のばらつきはノイズレベル程度であり検出信号の周波数依存性ははっきりとは認められない。ケーブルの影響がない回路でインダクタンス値の大きいコイルを使用する場合、SRT を併用することが大変効果的で、SRT を用いれば、D<sub>2</sub>O の NMR 信号測定を行う周波数掃引幅 0.4 MHz の領域での信号の激しい歪みはないと推測できる。

しかし、非対称度法を用いた偏極度算出を行う場合、僅かな信号の歪みが偏極度に大きく影響するため、より精密に検出信号の周波数依存性を調べ、吸収関数の較正を行わねばならない。これは今後の課題である。



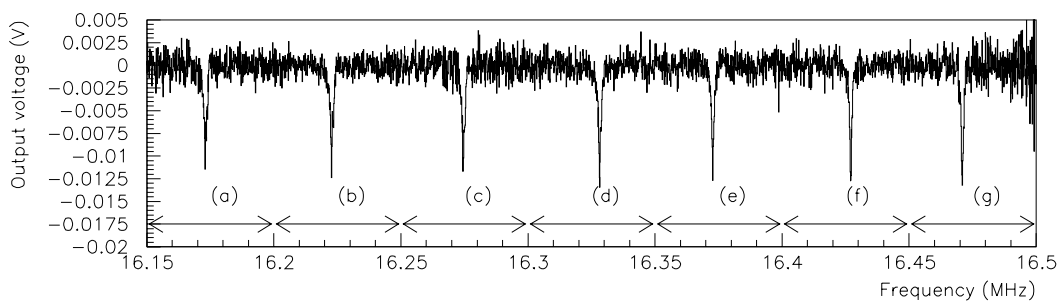


図 5.18:  $D_2O$  信号の測定。(a)(b)(c)(d)(e)(f)(g) はそれぞれ磁場を変えながら別々に測定した信号である。 $CD_2$  の信号の幅程度の周波数領域では、検出される  $D_2O$  信号の大きさに周波数依存は大きくみられない。グラフ全体の幅は  $CD_2$  信号の幅に相当する。

また、温度変化によるドリフトによって共鳴点をトラッキングできずに、共鳴点から少しずれた点で測定を行った場合、信号にどれだけ影響が出るかを調べるため、Qカーブの頂点(共鳴点)からずれた周波数で測定した信号の大きさと、Qカーブの頂点の周波数で測定した信号の大きさの比較を行った(図 5.19)。これにより、 $CD_2$  の NMR 信号を SRT を用いて測定する時も、共鳴点から 0.01 MHz 程度ずれたところを測定しても、出力電圧に大きな影響を与えない。

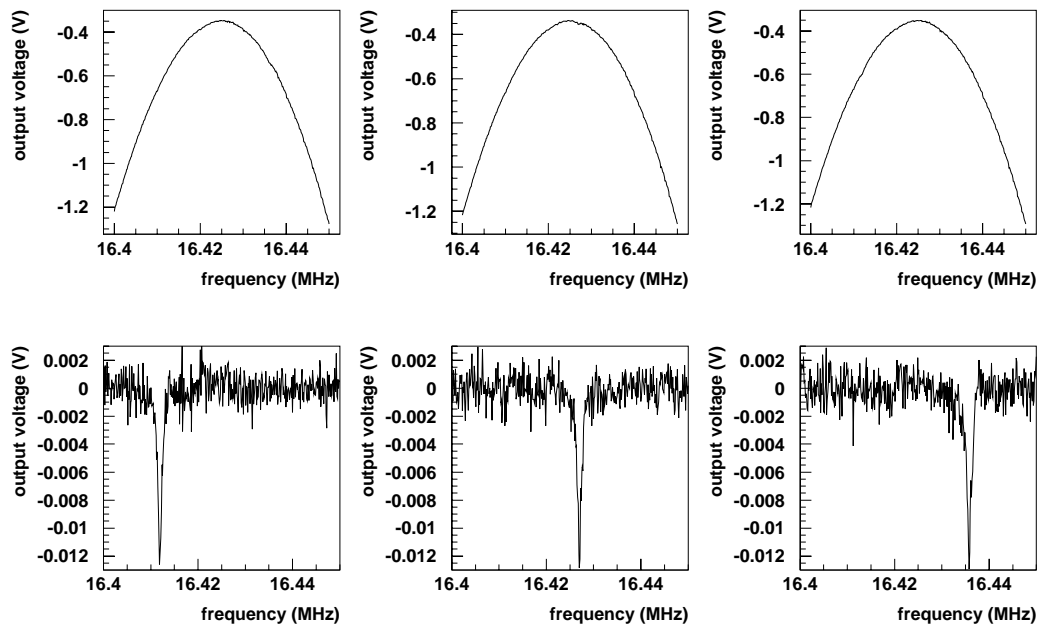


図 5.19:  $5 \mu\text{H}$  のコイルを用いた回路における、共振点から外れた周波数での出力信号。多少のずれは許容される。

## 第6章 まとめ

$\vec{D}(\vec{d},p)$ T 実験に用いる偏極標的の偏極度測定のために、

- LabVIEW を用いた NMR 信号収集システムを作成した。

この信号収集プログラムは1回の掃引が約0.2秒と遅く改善の余地があるが、必要最小限の機能を果たす。また、マルチタスクオペレーティングシステムの上で動作させるので、NMR 信号を測定しながら、冷凍器の温度計モニターやマイクロ波周波数モニターができ、データの一元管理、制御の集中化が可能である。

- 微小の偏極標的の偏極度測定を行うため、NMR 信号測定の S/N を向上させるように NMR 測定回路の改良を行った。

1. SRT によるテスト測定

6 m の長い伝送ケーブルを使わねばならない条件下では著しい成果はみられなかった。

2. 伝送・検出機能を共振回路から分離した。

ケーブルの影響がなくなり、高 Q 値回路による高感度測定ができるようになった。しかし、SRT を組み合わせなければ幅の広い信号は歪む。

高インダクタンスコイルを用い伝送ケーブルが含まれない共振回路で、SRT による共鳴点のトラッキングを行って NMR 信号を測定する場合の利点は次のようにまとめられる。

1. コイルのインダクタンスを大きくすることにより、大きな信号が検出できる。
2. 掃引周波数幅全域で高感度測定が可能であるので、高インダクタンスを用いた測定を行っても信号の形の激しい歪みがない。
3. Q カーブに比べてベースラインの電圧幅が小さくなり、出力電圧の増幅率を大きくできる。
4. 共振回路構成要素から長い伝送ケーブルを取り除くことにより、ノイズの軽減ができる。

また、冷凍器中のコイルから Q-meter box までの接続はいかなる長さのケーブルを用いてもよいので、できる限り短いケーブルを用いることにより信号の減衰が軽減されるはずである。

今回のテストで用いた試料は  $\vec{D}(\vec{d},p)$ T 実験で要求される微量ではないが、S/N を上げるための有効な手段が分かり、微量偏極標的の NMR 信号を検出する見通しが付いた。

今後の課題としては、冷凍器中で使用できるような小さい高周波用回路素子を手し、実際に共振回路を冷凍器にインストールして  $CD_2$  の NMR 信号を測定する事と、非対称度法によって偏極度を算出するために  $CD_2$  のような幅の広い信号の歪みを補正する事、更に  $CD_2$  試料を数 mg まで小さくして偏極度の測定を行いその妥当性を評価する事が挙げられる。

## 第7章 謝辞

本論文を執筆するにあたり直接ご指導を頂いた、理工科学総合研究センターの堀川直顕教授、大東出助手、理学研究科の岩田高広助手に感謝致します。そして理学研究科の森邦和教授の数々の助言、ご指導に感謝致します。福井崇時名誉教授には貴重な助言、励ましを頂きました。

理工科学研究センターの若井篤志博士、宮地義之博士、偏極標的システムについて先輩である長谷川勝一氏、高林直生氏、堂下典弘氏には有益な助言をたくさん頂きました。藤巻寿隆氏、東條剛士氏、長谷部拓氏には実際実験を行うにあたり、惜しみない協力を頂きました。

Qメーター NMR システムの改良に関して多くの助言、情報を頂いたバージニア大学の D. G. Crabb 博士、PSI の van den Brandt 博士、同じく PSI の Patrick Hautle 博士、ミシガン大学の景谷恒雄博士、リバプール大学の Geoff Court 博士には大変感謝致します。

理学部極低温実験室の黒川俊和氏にはヘリウムの供給、回収において多大なご協力を頂きました。

$\vec{D}(\vec{d},p)T$  実験を共同で行う筑波大学の田岸義宏助教授、片淵竜也助手をはじめとする田岸グループの皆様、そして  $CD_2$  試料を製作する際にお世話になった大阪府立大学先端科学研究所の谷口良一助手に感謝致します。

そして同じ研究室の中山博史氏、堀川壮介氏、戸枝武明氏、市原寛智氏、田野島慎一郎氏、鳥光悟氏、稲波紀明氏、寺田佳樹氏、稲垣貴也氏、竹内誠氏、小林知洋氏、南場進氏、王力氏、清水志緒里氏には様々な面でお世話になりました。御礼申し上げます。

最後に、家族、友人達の日頃のサポートに対して感謝致します。

皆様、ありがとうございました。

## 関連図書

- [1] R.M. Kulsrud et al., Phys. Rev. Lett. 49 (1982) 1248-1251, "Fusion Reactor Plasmas with Polarized Nuclei"
- [2] 前田信子, 修士論文, "高分子化合物試料を用いた偏極標的の開発", 名古屋大学 (1997)
- [3] 高林直生 他, 原子核研究 Vol.43 No.3 (1998) 1-43, "偏極重陽子化ポリエチレン標的の開発"
- [4] 堂下典弘, 修士論文, "20MeV 以下での  $D^{\uparrow}(d^{\uparrow},p)T$  実験における偏極重陽子標的の開発", 名古屋大学 (2000)
- [5] M. Wessler et al., Proc. of the 9th Int. Symp. on High Energy Spin-Physics, Bonn 1990, Workshop on Polarized Solid Targets, p. 277. "The PSI NMR-System for Polarized Targets"
- [6] T.O. Niinikoski, Nucl.Instr.and Meth. A356 (1995) 62-73, "Topics in NMR polarization measurement"
- [7] G.R. Court and M.A. Houlden, Proc. of the Workshop on NMR in Polarized Targets, Virginia 1998, "Possible Methods to Reduce the size of the background signal in continuous wave Q-meters."
- [8] P. Hautle, Proc. of the Workshop on NMR in Polarized Targets, Virginia 1998, "Detection of small NMR signals"
- [9] C. Dulya et al., Nucl.Instr.and Meth. A398 (1997) 109-125, "A line-shape analysis for spin-1 NMR signals"
- [10] D.G. Crabb et al., Proc. of SPIN2000, Osaka, "Improved NMR System with Non-Resonant Cable Arrangement for Target Polarization Measurements"
- [11] 山田徳尚 他, 原子核研究 Vol.41 No.2 (1994) 141-175 "陽子および重陽子偏極標的装置の開発とマイクロ波変調効果"
- [12] 宮地義之 他, 原子核研究 Vol.41 No.6 (1997) 185-202, "ポリエチレン偏極標的試料の開発"
- [13] 高林直生 他, 原子核研究 Vol.43 No.3 (1998) 45-68, "重陽子化ブタノール偏極度の磁場依存性"
- [14] 飯沼智彦, 修士論文, "偏極標的のための VME による偏極度測定システムの開発", 名古屋大学 (1998)

- [15] N. Horiakawa et al., Proc. of 13th Int. Symp. on High Energy Spin-Physics, Protvino 1998, p.424. "Polarization measurements in thin foils of deuterated polyethylene"
- [16] G.R. Court et al., Nucl.Instr.and Meth. A324 (1993) 433-440, "A high precision Q-meter for the measurement of proton polarization in polarised targets"
- [17] Yu.F. Kisselev et al., Nucl.Instr.and Meth. A354 (1995) 249-261, "Measurement of complex RF susceptibility using a series Q-meter"
- [18] A. Abragam, "Principles of Nuclear Magnetism", Oxford University Press, 1961
- [19] Carson D. Jeffries, "Dynamic Nuclear Orientation", Interscience Publishers, 1963

# 付録A シミュレーションプログラム

```
program test_signal

integer I
real omega,f
real pi,lv_c
real f0,fdelta,C,L,coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL
real rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K
real signal,q,chi
external chi_im,V
call read_p(pi,lv_c,f0,fdelta,C,L,
>         coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL,
>         rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K)
open(10,file='q_curve.out')
do I=0,400,1
  f = f0 - fdelta/2. + I*fdelta/400.
  omega = 2.*pi*f
  chi = K*chi_im(omega)
  signal = V(omega,chi) - V(omega,0.)
  q = V(omega,0.)
  write(10,*) f,q,signal
enddo
close(10)
stop
end

c -----出力電圧計算関数-----
real function V(omega,chi)
real pi,lv_c
real f0,fdelta,C,L,coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL
real rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K
real omega,chi,beta
complex chi_c,coil_Z,L_fill,i_L_f,ext_Z
complex gamma,gammal,tanh
complex capa_Z,totalZ,Vout,p
real V
call read_p(pi,lv_c,f0,fdelta,C,L,
>         coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL,
>         rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K)
```

```

beta = omega*sqrt(cab_e)/lv_c
gamma = cmplx(alpha,beta)
chi_c = cmplx(0.,chi)
L_fill = L*(1 + 4.*pi*eta*chi_c)
i_L_f = cmplx(-1.*aimag(L_fill),real(L_fill))
coil_Z = coil_r + omega*i_L_f
gammal = gamma*cableL
tanh = (cexp(gammal)-cexp(-1.*gammal))
>      /(cexp(gammal)+cexp(-1.*gammal))
ext_Z = cableZ*((coil_Z + cableZ*tanh)
>      /(cableZ + coil_Z*tanh))
  capa_Z = cmplx(0,-1./(omega*C))
totalZ = dump_r + capa_Z + ext_Z
p = 1./impt_r + 1./totalZ
Vout = rfgain*rfVin/(feed_r*p +1.)
V = real(Vout)
return
end
c -----吸収関数-----
real function chi_im(omega)
real pi,lv_c
real f0,fdelta,C,L,coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL
real rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K
real omega
real f_pos,f_neg,I_pos,I_neg,theta
real chi_im
external f_e
call read_p(pi,lv_c,f0,fdelta,C,L,
>      coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL,
>      rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K)
theta = omegaq/f0
f_pos = f_e(1.,omega)
f_neg = f_e(-1.,omega)
I_pos = (r**2. - r**(1. - 3.*theta*r))/r**(1. - theta*r)
I_neg = (r**(1. + 3.*theta*r) - 1.)/r**(1. + theta*r)
chi_im = 1./omegaq*(I_pos*f_pos + I_neg*f_neg)
return
end
c -----強度関数-----
real function f_e(epsln,omega)
real pi,lv_c
real f0,fdelta,C,L,coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL
real rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K
real epsln,omega

```



```

real Y,Q_sq,Q,largeR,cos_a,cos_ha,sin_ha
real f_e,f1,f2
call read_p(pi,lv_c,f0,fdelta,C,L,
>         coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL,
>         rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K)
largeR = (omega - 2.*pi*f0)/(3.*omegaq)
Y = sqrt(3.)
Q_sq = sqrt(A**2. + (1 - epsln*largeR)**2.)
Q = sqrt(Q_sq)
cos_a = (1 - epsln*largeR)/Q_sq
cos_ha = sqrt( (1. + cos_a)/2.)
sin_ha = sqrt( (1. - cos_a)/2.)
f1 = 2.*cos_ha*(atan((Y**2 - Q_sq)/(2.*Y*Q*sin_ha)) + pi/2.)
f2 = sin_ha * log((Y**2. + Q_sq + 2.*Y*Q*cos_ha)
>         /(Y**2. + Q_sq - 2.*Y*Q*cos_ha))
f_e = 1./(2.*pi*Q) * (f1 + f2)
return
end
c -----パラメーターを読む関数-----
subroutine read_p(pi,lv_c,f0,fdelta,C,L,
>         coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL,
>         rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K)
real pi,lv_c
real f0,fdelta,C,L,coil_r,dump_r,impt_r,feed_r,cableZ,cableL
real rfgain,rfVin,alpha,cab_e,r,eta,omegaq,A,K
open(4,file='para_file')
read(4,100) pi
read(4,200) lv_c
read(4,300) f0
read(4,400) fdelta
read(4,500) C
read(4,600) L
read(4,700) coil_r
read(4,800) dump_r
read(4,900) impt_r
read(4,1000) feed_r
read(4,1100) cableZ
read(4,1200) cableL
read(4,1300) rfgain
read(4,1400) rfVin
read(4,1500) alpha
read(4,1600) cab_e
read(4,1700) omegaq
read(4,1800) r

```

```

        read(4,1900) eta
        read(4,2000) A
        read(4,2100) K
        close(4)
100  format('pi      = ',E12.6)
200  format('lv_c    = ',E12.6)
300  format('f0      = ',E12.6)
400  format('fdelta  = ',E12.6)
500  format('C       = ',E12.6)
600  format('L       = ',E12.6)
700  format('coil_r   = ',E12.6)
800  format('dump_r   = ',E12.6)
900  format('impt_r   = ',E12.6)
1000 format('feed_r   = ',E12.6)
1100 format('cableZ   = ',E12.6)
1200 format('cableL   = ',E12.6)
1300 format('rfgain   = ',E12.6)
1400 format('rfVin    = ',E12.6)
1500 format('alpha    = ',E12.6)
1600 format('cab_e    = ',E12.6)
1700 format('omegaq   = ',E12.6)
1800 format('r        = ',E12.6)
1900 format('eta      = ',E12.6)
2000 format('A        = ',E12.6)
2100 format('K        = ',E12.6)
        return
        end

```

パラメーターの意味は以下のとおりである。

```

c  physics constant
   pi      = 3.1415926
   lv_c    = 2.99792458E8      !light velocity
c  curcuit constant
   f0      = 16.35E6          ! center of NMR frequency
   fdelta  = 0.50E6          ! NMR sweep width
   C       = 200E-12         ! tuning caopasitance
   L       = 500E-9          ! Inductance of coil
   coil_r  = 0.3             ! Resistance of coil
   dump_r  = 10.             ! dumping resister
   impt_r  = 50.             ! Amp. input inpedance
   feed_r  = 900.            ! constant current resistance
   cableZ  = 50.             ! the cable characteristic impedance
   cableL  = 6.42            ! cable length
   rfgain  = 50.             ! RF amp. gain

```

```
rfVin = 0.1           ! Voltage of RF synthesizer
c signal parameters
omegaq = 130E3
r      = 1.0008       ! asymmetry parameter
eta    = 1.           ! filling factor
A      = 0.05         ! width of lorentzian
alpha  = 0.024        ! cable attenuation constant
cab_e  = 2.           ! cable dielectric constant epsilon

theta  = omegaq/f0
```