

概要

我々LEPS グループでは、大型放射光施設 SPring-8 で高エネルギーの逆コンプトン散乱による線を使用した光子-核子衝突実験、特に ϕ 中間子生成実験を行っている。近年の高エネルギー実験において、陽子にストレンジクォークが含まれているかもしれない結果が出されている。一方でそれらを否定する意見もみられ、その真偽はまだ分かっていない。我々は現在新たな実験事実を提示すべく、円偏光したビームとスピン偏極させた標的とを衝突させて ϕ 中間子を生成し、スピンの向きの組み合わせによって反応断面積の非対称度を測定する準備に取り組んでいる。また、偏極 HD 標的を LEPS 実験に導入することで、 Θ^+ 粒子のスピン-パリティの測定や、これまでの実験結果で明らかにできなかった現象を詳しく調査でき、LEPS 実験を大きくステップアップさせられる。標的には重水酸化水素 (HD) を用いる。固化した HD は偏極標的として非常に有益な特徴を持っており、実験中に偏極の方向を変えることも可能である。開発では、希釈冷凍機とそれを取り巻く超伝導電磁石とで温度 $\sim 10\text{mK}$ 、磁場 17T という環境を作り出し、そこで冷凍偏極を約 2 カ月間行う。その 2 カ月後の偏極度は HD の H で約 80 %、D で約 60 % を目標にしており、それを保持できる緩和時間は 2 カ月以上を理想とする。さらに、その偏極を保持したまま HD 標的を大阪大学核物理研究センターから SPring-8 に輸送して実験を行う。

高い偏極度と長い偏極時間を得るためには、HD ガス中の ortho- H_2 の割合を 0.01 % 程度にする必要がある。ortho- H_2 は 2 つの H のスピンの向きが平行なもので、para- H_2 はその逆である。ortho- H_2 は para- H_2 よりエネルギー的に高いので、系を低温にすることで、ortho- H_2 はスピンの向きを反転させて para- H_2 になろうとする。このとき生じる HD と H の間のスピン相互作用を利用して HD を偏極させることができる。しかし、ひとたび偏極した HD も、残留 ortho- H_2 により、すぐさま壊されてしまう。従って蒸留 HD ガス中の H_2 の割合を把握することが必要である。2 年前に初めて偏極 HD 標的を作成して偏極度を測定したところ、偏極度は約 40 % であった。その原因として、o- H_2 の不足が考えられ、o- H_2 濃度の測定は HD 標的の製作に非常に重要である。また近年の実験結果から HD ガス中の残留 D_2 も HD の偏極に大きな影響を与えることが分かった。これまで我々はガスを分析するのに四重極質量分析器のみを用いて実験していた。しかし HD に電子をぶつけた際に発生する D^+ は、 H_2^+ と $\text{mass/charge}(u/e)$ が同じなので正確に HD 中の H_2 の割合を把握することはできなかった。また D_2 の割合に関しても、 D_2^+ と質量が同じ H_2D^+ がバックグラウンドとなるので正確に測定できなかった。ここで我々はガスクロマトグラフィーと四重極質量分析器を組み合わせた新しいガス分析システムを開発した。その結果、分析ガスを時間と質量の両方で分離でき、o- H_2 と D_2 の濃度を 0.01 % より良い精度で測定することに成功した。これにより、今後効率的に HD を偏極させて実験を行うことが可能となる。

目次

第 1 章	はじめに	4
1.1	LEPS とは	4
1.1.1	レーザーエネルギー電子光	5
1.1.2	検出器	5
1.1.3	標的	6
1.2	偏極標的開発の目的	7
1.2.1	ϕ 中間子光生成	7
1.2.2	二重偏極非対称度と $s\bar{s}$ ノックアウト	8
1.2.3	反応断面積のバンブ構造	10
1.2.4	偏極 HD 標的を実験で使用するための条件	11
第 2 章	HD 標的概要—偏極機構その他	12
2.1	偏極 HD 標的の利点と特徴	12
2.2	HD 偏極度	12
2.2.1	偏極度	12
2.2.2	ortho-H ₂ 、para-H ₂	14
2.2.3	スピン緩和	15
2.2.4	H の偏極原理と方法	16
2.3	偏極 HD 標的の製作から実験まで	18
2.4	偏極 HD 標的のための個別装置	20
2.4.1	HD ガス蒸留器	20
2.4.2	希釈冷凍機	21
2.4.3	超電導ソレノイド	26
2.4.4	Transfer Cryostat (TC)	29
2.4.5	標的用冷凍装置 (In Beam Cryostat (IBC))	31
2.4.6	運搬用冷凍装置 (Storage Cryostat(SC))	33
第 3 章	ガスクロマトグラフィーを使ったガスの分析原理	35
3.1	実験目的	35
3.2	ガスクロマトグラフィー	37
3.2.1	ガスクロマトグラフィーとは	37
3.2.2	実験装置	37
3.2.3	分離度	38
3.2.4	理論段数	40
3.2.5	理論段高さ	40
3.2.6	カラムの選定	41

3.2.7	キャリアガス	42
第 4 章	実験と考察	43
4.1	キャリアガス選定の実験	43
4.1.1	実験結果と考察	45
4.2	最適温度 T[K]、最適流量 F[ml/min]	46
4.2.1	実験結果と考察	46
4.2.2	フィッティング関数と分離度の定義	47
4.2.3	フィッティング	49
4.2.4	温度 T、流量 F と分離度 R の関係	50
4.2.5	実験結果と考察	53
4.3	蒸留 HD ガスの分析	55
4.3.1	実験結果と考察	56
第 5 章	まとめと今後の展望	60

第1章 はじめに

まず、“LEPS”と呼ばれるハドロン核物理実験施設の紹介と偏極標的開発の目的について説明する。

1.1 LEPS とは

LEPS とは Leaser Electron Photon facility at SPring-8 の略である。兵庫県西播磨にある大型放射光施設 SPring-8 の中の大阪大学核物理研究センターが建設した数 GeV の光子ビームを用いるハドロン核物理実験施設である。

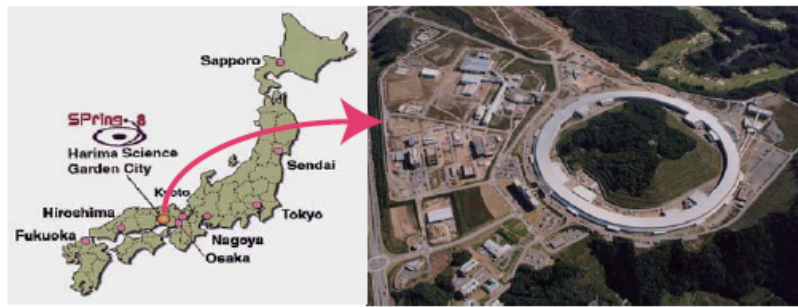


図 1.1: spring8

LEPS グループではこれまで以下のような実験を行ってきた。

(1) ϕ meson production

$\vec{\gamma}p \rightarrow \phi p$ [1], $\vec{\gamma}d \rightarrow \phi d$ [2], $\vec{\gamma}d \rightarrow \phi pn$ [3, 4], and $\gamma A \rightarrow \phi X$ [5] reactions.

(2) Strangeness production

$\vec{\gamma}p \rightarrow K^+\Lambda$ [6, 7, 8], $\vec{\gamma}p \rightarrow K^+\Sigma^0$ [6, 7, 9], $\vec{\gamma}n \rightarrow K^+\Sigma^-$ [13], $\gamma p \rightarrow K^+\Sigma^0(1385)$ [10],
 $\vec{\gamma}n \rightarrow K^+\Sigma^-(1385)$ [11], $\gamma p \rightarrow K^+\Lambda(1405)$ [10], and $\vec{\gamma}p \rightarrow K^+\Lambda(1520)$ [12, 13], reactions.

(3) Pseudo scalar meson production

$\vec{\gamma}p \rightarrow \pi^0 p$ [14], and $\gamma p \rightarrow \eta p$ [15], reactions.

(4) Search for exotic baryon resonance states

$\gamma n \rightarrow K^- X$ reaction [16, 17],

中でも特に大きな業績は Θ^+ と呼ばれるペンタクォーク粒子の発見である [16] これまでクォークで構成されるハドロン粒子は理論的に制限されたものでないにもかかわらず 2 個のクォークまたは

3個のクォークから構成される粒子の発見に留まっていた。しかし、LEPSグループでは2.4GeVの高エネルギー逆コンプトン散乱での γ 線を用いたハイペロン生成実験において、5つのクォークにより構成されるペンタクォーク粒子 Θ^+ を世界で初めて発見した。しかし、その後の世界各地で追認実験が行われてきたが Θ^+ の有無に対して否定的な結果や意見も多く、今だに Θ^+ の確立までは至っていない。そこで、その存在を確立するためや、他のハドロン反応の詳細について調べるために実験環境のグレードアップを現在図りながら実験を続けている。

1.1.1 レーザーエネルギー電子光

偏光した紫外線レーザーをSPring-8蓄積リング内で8GeVに加速された電子にぶつけ、逆コンプトン散乱されて生じた高エネルギー γ 線をレーザーエネルギー電子光といい、入射ビームとして使用している。逆コンプトン散乱と入射ビームの進み方は図1.2のとおりである。

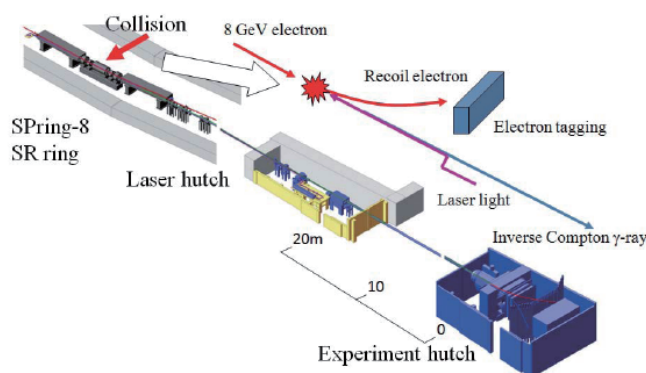


図 1.2: LEPS ビームライン

1.1.2 検出器

検出器系は上流から UP Veto カウンター、スタートカウンター、エアロジェルチェレンコフカウンター、シリコンバテックス検出器、MWDC 1、双極電磁石、MWDC2、MWDC3、TOFホドスコープの順に並んでいる。また蓄積リング内に γ 線のエネルギーを測定するためのタギング検出器が置かれている。

それぞれの役割は以下の通りである。

- UP Veto カウンター
入射ビーム以外の物質により発生した電子陽電子対生成イベントを除去する。
(* ちなみに UP とは標的より上流ということである。)
- スタートカウンター
標的で荷電粒子が生成されたことを認識する。

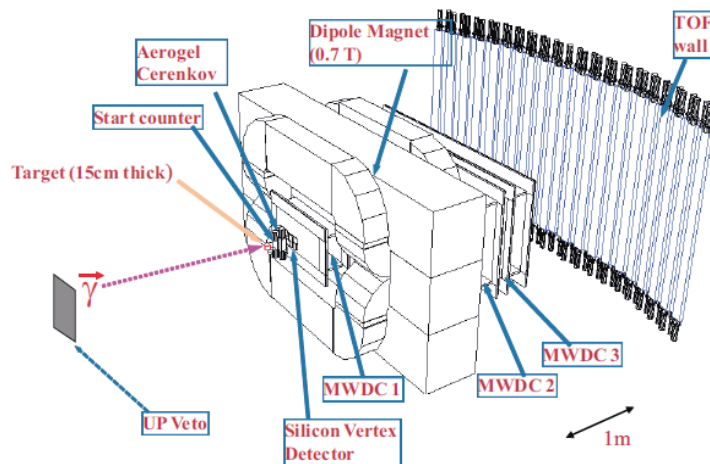


図 1.3: 検出器

- エアロジェルチェレンコフカウンター
バックグラウンドとなる標的及びスタートカウンターで起こった電子陽電子対生成イベントを除去する。
- シリコンバーテックス検出器
120 μm ピッチの 16 枚の SSD (Silicon Strip Detector) から構成され、MWDC と組み合わせることで粒子の飛跡を求め反応の起きた位置を確定する。
- MWDC (マルチワイヤードリフトチェンバー)
荷電粒子の飛跡を検出し、双極電磁石と組み合わせることで運動量の測定をする。
- 双極電磁石
荷電粒子の運動量を分析する。
- TOF ホドスコープ
40 本のプラスチックシンチレーターから構成され、荷電粒子の飛行時間と x、y 方向の場所を粗く特定する。
- タギング検出器
反跳電子のエネルギーを測定し、線のエネルギーをイベントごとに決定する。

1.1.3 標的

LEPS では、これまで標的に液体水素や液体重水素を用いてきたが、我々の実験では、標的に固体の重水素化水素 (Hydrogen-Deuteride) を選び、さらにこれを偏極させて実験に用いようとしている。

1.2 偏極標的開発の目的

一般的に陽子と中性子のクォークモデルは低エネルギー領域においてアップクォークを u 、ダウンクォークを d として陽子は uud 、中性子は udd とされている。しかし近年の高エネルギー実験や理論計算において陽子中にストレンジクォーク s と反ストレンジクォーク \bar{s} が存在することを示唆する結果が出てきた。例えば、偏極ミュオン、偏極陽子標的を用いた深部非弾性散乱実験では $s\bar{s}$ クォーク対のスピンの量は u や d のそれに匹敵するものであった [19] 一方で $s\bar{s}$ が存在しないという結果もでてきている。JLab の電子と核子の弾性散乱によるパリティの破れの非対称度測定から、核子内部のストレンジクォークの寄与はほとんどないという結果がでた [20] また HERMES による実験では、核子スピンに対するストレンジクォークの寄与はほとんどゼロに近かったという結果も出された [21] これらの問題については現在も議論が活発に行われている。物質の真の姿を知るために、新しい実験事実を提示すべく、我々は偏極光子と偏極陽子による 中間子生成からの $s\bar{s}$ ノックアウトの寄与を調べる実験を計画している。

1.2.1 ϕ 中間子光生成

光生成過程とは光子を標的に照射して粒子を生み出すことをいう。核子標的の ϕ 中間子光生成は $\gamma p \rightarrow \phi p$ や $\gamma n \rightarrow \phi n$ という反応式で記述される。この過程には3つのプロセスが存在する。1つ目はポメロン交換反応過程、2つ目は π 、 η 交換反応過程、3つ目は $s\bar{s}$ ノックアウト反応過程である。 ϕ 中間子はピュアな $s\bar{s}$ 波動関数を持っているので、核子中の $s\bar{s}$ の存在有無を研究するにあたり、直接的に実験データを得られる ϕ 中間子光生成反応は非常に強力である。以下にポメロン交換反応過程、 π 、 η 交換反応過程、 $s\bar{s}$ ノックアウト反応過程について説明する。

- ポメロン交換反応過程

光子と核子がポメロンの交換を行って ϕ に変わる反応である。この反応は広いエネルギー領域で起こり、 ϕ 中間子光生成の大部分を占めるものとなっている。

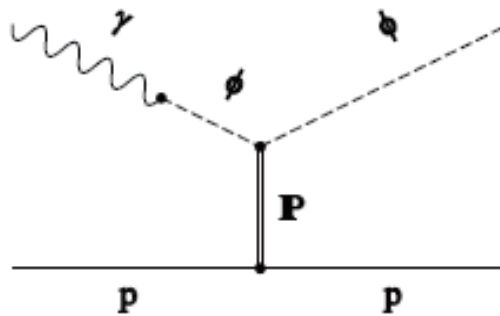


図 1.4: ポメロン交換反応

- π 、 η 交換反応過程

光子と核子が擬スカラーメソンである π や η を交換して ϕ に変わる反応である。

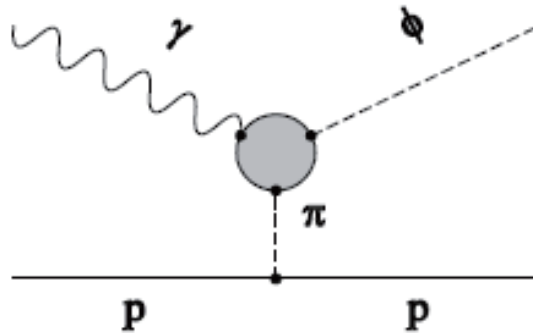


図 1.5: π 、 η 交換反応

- $s\bar{s}$ ノックアウト反応過程

核子の中に存在していると思われる $s\bar{s}$ のペアに光子をぶつけて、 ϕ としてはじき出す過程である。これは他の2つの反応とは違い生成過程ではなく取り出し過程である。この過程を詳細に調べることができれば、核子中のストレンジクォーク検索に大きく近づけることになる。しかし、この $s\bar{s}$ ノックアウト反応過程はポメロン交換反応過程に比べて反応断面積が非常に小さいので検出するのが難しい。

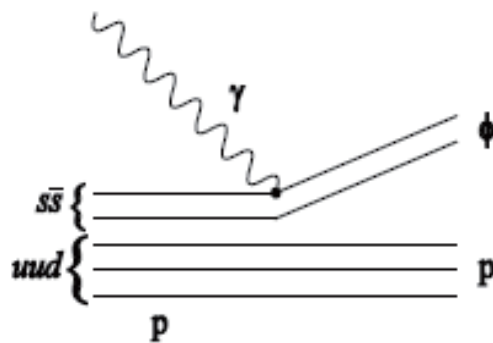


図 1.6: $s\bar{s}$ ノックアウト反応

1.2.2 二重偏極非対称度と $s\bar{s}$ ノックアウト

$s\bar{s}$ ノックアウト反応はポメロン交換反応に比べて反応断面積が約 1 桁小さいので通常は観測するのは難しい。しかし γ 線ビームを円偏光させ、標的も高スピン偏極させ、向きの組み合わせを変え非対称度を測定することで $s\bar{s}$ ノックアウトの寄与を精度よく検出できると考えられている。理論計算ではこの二重偏極非対称度 C_{BT} 測定を $E_\gamma \geq 2GeV$ で行えば $s\bar{s}$ ノックアウトの効果を観測

できるとしている [22] C_{BT} については後述する。また $E_\gamma \geq 2\text{GeV}$ という値は LEPS 実験にまさに適したエネルギー領域である。

ここで C_{BT} についての説明をする。標的を核子にしたとき、偏極したビームと標的の非対称度を表す量 C_{BT} を以下のように定義する。

$$C_{BT} = \frac{\sigma_A - \sigma_P}{\sigma_A + \sigma_P} \quad (1.1)$$

σ_P 、 σ_A はそれぞれビームと標的核子のスピンの向きを平行、反平行にしたときの反応断面積とする。

$$\sigma_P \quad \text{スピン: } \begin{pmatrix} \gamma \\ p \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rightarrow \\ \rightarrow \end{pmatrix} \quad \text{平行} \quad (1.2)$$

$$\sigma_A \quad \text{スピン: } \begin{pmatrix} \gamma \\ p \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rightarrow \\ \leftarrow \end{pmatrix} \quad \text{反平行} \quad (1.3)$$

図 1.7 は $E_\gamma=2.2\text{GeV}$ における $\gamma p \rightarrow \phi p$ の反応微分断面積である。この図から反応のほとんどをポメロン交換が占めていることが分かる。図 1.8 はビームエネルギーが $E_\gamma=2.2\text{GeV}$ の時の散乱角に対する C_{BT} の理論分布を示す。

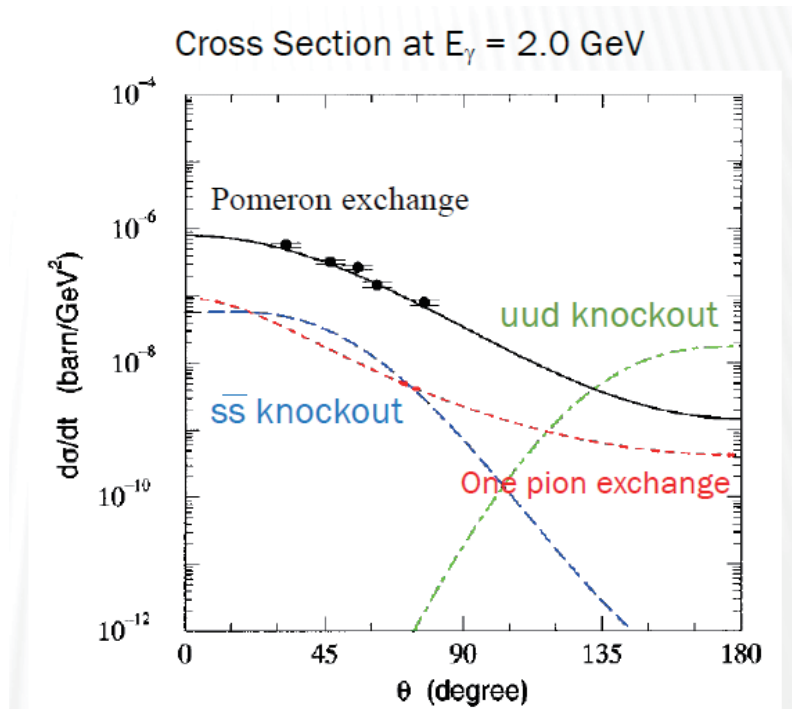


図 1.7: 横軸は運動量移行であり、ほとんどをポメロン交換が占めている。

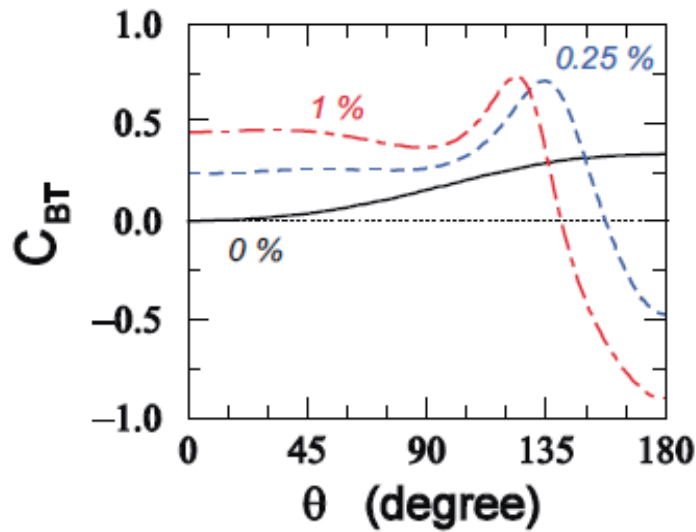


図 1.8: 散乱角に対する C_{BT} の理論分布を示したもので、核子内の $s\bar{s}$ 含有率が 0 %、0.25 %、1 % のときで、それぞれ分布が異なる。

1.2.3 反応断面積のバンプ構造

ϕ 中間子の光生成では OZI 則により中間子交換過程が強く抑制されるため、ポメロン交換やグルーボール交換のような多重グルーオン交換過程を研究するのに適している。特に、直線偏光ビームを用いると反応の中間状態で交換される粒子のパリティを知る事ができるので有利である。

ϕ 光生成ではポメロン交換が支配的であり高エネルギー領域ではよりそれが顕著になること、また数々の実験結果を踏まえ、断面積は実線のようにになると考えられていた。しかし LEPS の結果は違ったものになっていた [23]

LEPS での陽子を標的とする 中間子光生成実験の結果、 η や η' など、負パリティの中間子交換が優勢になると思われていた閾値近くのエネルギー領域でも正パリティ粒子の交換が優勢であった。さらにその断面積も従来のポメロン交換過程では説明できない極大をもつことから、新たな生成過程の存在を示唆する結果を得た [23] まさにこれがアイソスピン 0 の交換過程、グルーボールの存在を意味するものではないかと期待されている。偏光 線ビームと偏極標的を用いた二重偏極非対称度のエネルギー依存性を精密に測定することで、何がバンプを作り出しているのかを調べられると考えられている。

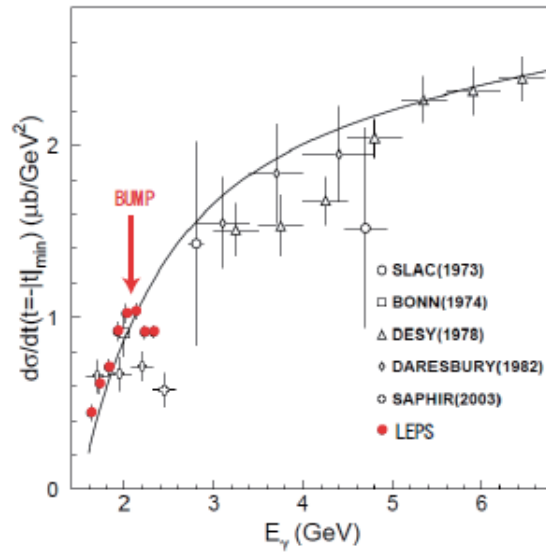


図 1.9: ϕ の断面積のバンプ構造

1.2.4 偏極 HD 標的を実験で使用するための条件

以下の 3 つを主な条件とする。

- 小さな反応断面積を測定したいので、バックグラウンドの原因となる不純物を極力含まないこと。
- 高偏極かつその偏極を長時間保持できること。
- 十分な厚さ (5cm 以上) で空間的にほぼ均一になっていること。

第2章 HD 標的概要－偏極機構その他

LEPS 実験に用いられる偏極水素・重水素 (HD) 標的は、極低温、強磁場においてブルートフォースを用いた Staticmethod により偏極冷凍させ、SPring-8 での実験に用いようと考えている。HD を偏極標的として用いるという案は、1960 年代後半に A.Honig らによって考えだされ [25]、現在ではアメリカの BNL 研究所がこの偏極 HD 標的の開発に取り組み、Jefferson Lab での実験に用いられようとしている。過去にはフランスの ORSAY 原子核物理研究所も行っていった。実験の標的として利用したいという研究グループが世界に多々あり、今後注目される偏極標的となる。

2.1 偏極 HD 標的の利点と特徴

1. HD 分子は炭素、窒素などの重い原子を含んでいない。
2. 1 よりバックグラウンドが少なくなり、反応断面積の小さい光ハドロン反応には最適となる。
3. F 値 (偏極した核子の数と非偏極核子の数の比) の大きな偏極実験が可能となり、バックグラウンドの差し引きを少なくできる。
4. HD 偏極機構からスピン緩和時間 (T_1) が非常に長くなり、長期実験が可能となる。 T_1 は 300mK に冷却し、1Tesla の磁場を用いて 2~3 か月と期待できる。
5. H と D の核子スピンはそれぞれ $\frac{1}{2}$ と 1 であるため NMR 共鳴周波数が異なる。このことから、H と D を個別に偏極させることも可能であるし、H のスピン偏極を D のスピン偏極に移すことも可能である。
6. 高磁場 17tesla、10mK の低温下では H の偏極は 90 % 以上、D の偏極は 60 % 以上となる。

図 2.1 は HD 標的セルである。セルは水素を含まない Kel-F 樹脂でできている。偏極した HD からの NMR 信号測定を可能とするためである。サイズは直径 2.5cm、高さ 80mm (標的は約 50mm 長) である。固体 HD は熱伝導度が悪いので、少しでも熱伝導度を良くして HD を効果的に冷却するために極低温の熱伝導度の良い純アルミニウムの細いワイヤーを質量にして標的全体の 20 % 程度入れている。これは差し引きの必要なバックグラウンドになる。HD 結晶を冷却すれば、熱伝導度が 1 万倍良くなるというアイデアもあり、この面の技術開発も行っている。

2.2 HD 偏極度

2.2.1 偏極度

磁気モーメント μ を持つ原子核が外部静磁場 B におかれた時、Zeeman Split により等間隔に広がる $2I + 1$ 個のエネルギー準位ができる。 m を磁気量子数として、それぞれの準位のエネルギー間隔は

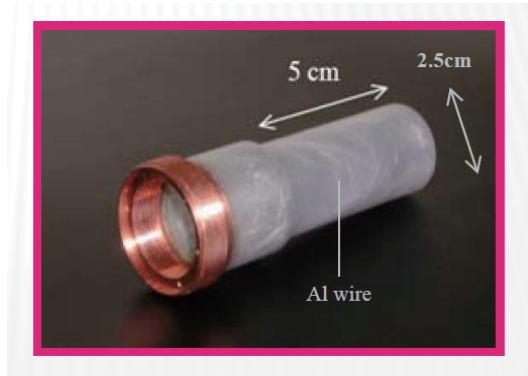


図 2.1: 標的用セル

$$E_m = -\frac{m}{I} \mu B \quad (2.1)$$

となる。

この準位に相当する原子核の総数 N_m は系が熱平衡の時はボルツマン統計に従うので、 k をボルツマン定数、 T を系の温度として

$$N_m \propto \exp\left(-\frac{E_m}{kT}\right) \quad (2.2)$$

と書ける。

さて、水素原子核 (陽子) のスピンは $\frac{1}{2}$ であり、sub-state は $I_z = \pm\frac{1}{2}$ の 2 つの値をとる。この場合、スピン上向き、下向きに対応する数をそれぞれ N_+ 、 N_- ($N_+ + N_- = N$) とすると、H の偏極度 P_H は

$$P_H = \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-} \quad (2.3)$$

となる。一方重水素原子核のスピンは 1 であり、sub-state は $I_z = \pm 1, 0$ の 3 つの値をとるので、それぞれの sub-state 準位に存在する数を N_+ 、 N_0 、 N_- とすれば、D の偏極度 P_D は

$$P_D = \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_0 + N_-} \quad (2.4)$$

となる。ここで、水素、重水素の磁気モーメントの大きさをそれぞれ μ_H 、 μ_D とすると、式 (2.1) ~ (2.4) より

$$P_H = \tanh\left(\frac{\mu_H B}{kT}\right) \quad (2.5)$$

$$P_D = \frac{4 \tanh\left(\frac{\mu_D B}{2kT}\right)}{3 + \tanh^2\left(\frac{\mu_D B}{2kT}\right)} \quad (2.6)$$

と表すことができる。偏極度は系の温度に非常に強く依存しており、特に極低温部ではその振る舞いがより顕著である。後述する核物理研究センターの $3\text{He}+4\text{He}$ 希釈冷凍装置は 10mK の極低温まで資料を冷却でき、17Tesla が発生できる超電導ソレノイドが備えられている。例えば 17Tesla、14mK の条件下では水素の偏極は 85 %、重陽子は 25 % となる。

温度 T	磁場 B	偏極度 P_H
10mK	17T	93.99 %
14mK	17T	84.56 %
300mK	1T	0.34 %
4.2K	1T	0.026 %

表 2.1: H の磁場 1T と 17T での偏極度

2.2.2 ortho-H₂、para-H₂

H₂ 分子は原子核を構成する 2 個の陽子核スピンの向きによって 2 種類の状態が存在する。核スピンの向きが同方向のものを ortho-H₂(以下 o-H₂)、反対方向のものを para-H₂(以下 p-H₂) という。陽子はフェルミ統計に従うため、パウリの排他原理によって、H₂ 分子の波動関数は陽子を交換すると、符号が逆になり、回転量子数 j が o-H₂ では奇数 ($j=1, 3, 5, \dots$)、p-H₂ では偶数 ($j=0, 2, 4, \dots$) となる。図 2.2 は o-H₂ と p-H₂ の回転エネルギー順位を示したものである。また、常温またはそれ以上の温度では核スピンによる状態の統計学的充率に比例して、o-H₂ と p-H₂ の比率は 3 : 1 となる。表 2.2 は各温度における o-H₂ と p-H₂ の比率を表したものである。

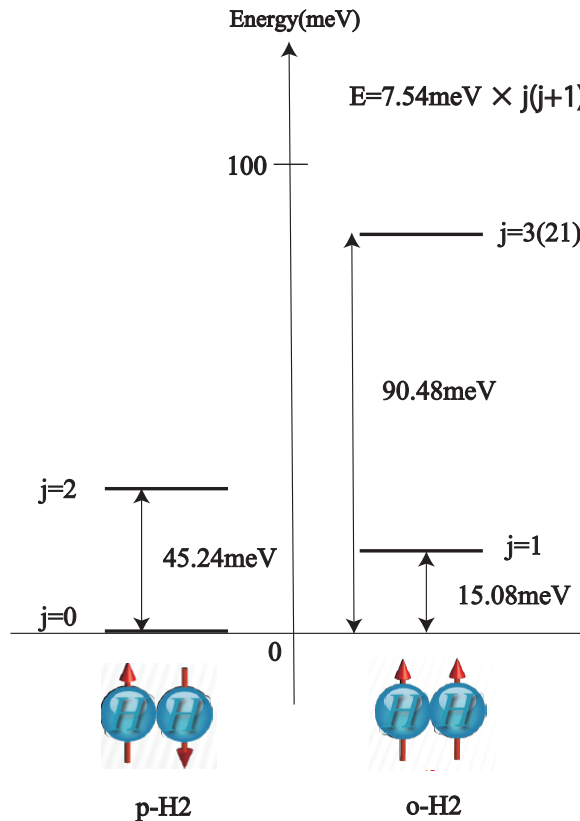


図 2.2: o-H₂ と p-H₂ の回転エネルギー順位

Temp[K]	p-H ₂ [%]	o-H ₂ [%]
273	25.13	74.87
100	38.51	61.49
77	51.3	47.9
20	99.82	0.18
10	100.00	0.00(< 10 ⁻⁶)
4.2	100.00	0.00(< 10 ⁻⁶)

表 2.2: 各温度における o-H₂ と p-H₂ の比率

2.2.3 スピン緩和

緩和現象は、熱的非平衡状態にあった系がある時間依存性を持ってボルツマン分布に従う熱平衡状態に近づいてゆく現象を指す。スピン偏極度についても同様のことが言える。時間の経過と共にエネルギー的に高い位置にある sub-state 状態がより低い状態にスピン方向を変える。この時、sub-state を変えさせる微細相互作用が緩和時間に重要な役割を担う。ただし、瞬時に偏極度を変えるわけではなく、その時の環境に見合った偏極度に落ち着く。その時間依存性は以下に示すような緩和時間 T_1 という指標で表される。偏極度 P が単位時間に変化する量 $\frac{dp(t)}{dt}$ は、そのとき残存している偏極 $P(t)$ に比例する。比例定数を α とすると次式が成り立つ。

$$\frac{dp(t)}{dt} = -\alpha(P(t) - P_{TE}) \quad (2.7)$$

ここで P_{TE} とは熱平衡状態 (Thermal Equilibrium TE) における偏極度のことである。偏極度の初期値を $P(0)=P'(0)+P_{TE}$ としてこれを解くと

$$P(t) = P'(0) \exp(-\alpha t) + P_{TE} \quad (2.8)$$

となる。この定数 α の逆数を緩和時間 T_1 と定義する。

$$\frac{1}{\alpha} = T_1 \quad (2.9)$$

より (2.8) 式は

$$P(t) = P'(0) \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right) + P_{TE} \quad (2.10)$$

となる。このことから、緩和時間は“偏極の壊れやすさ”あるいは“偏極のしやすさ”として理解できる。 T_1 が短ければ偏極しやすく壊れやすい、長ければ偏極しにくく壊れにくい。 T_1 の長短は原子核の種類・温度、結晶格子の対称性、磁場の大きさ・不純物の量などにより決定される。

一般にスピンを反転させる相互作用が小さければ緩和時間は長くなると理解してよい。HD 標的の場合、スピン 1 の o-H₂ が低温 HD 結晶中をトンネル現象で結晶のポテンシャルを飛び越えて動きまわり、HD 結晶中の水素と衝突し、そのスピンを反転させる。多数回の衝突を繰り返した o-H₂ は最後にエネルギー的により低いスピン 0 の p-H₂ になる。このスピン反転機構を逆利用すれば、スピン偏極した HD 標的は例え温度が上昇しても、スピン緩和要因となる o-H₂ が無くなっているため、緩和時間が極めて長くなる。実際に、 T_1 は 4K でも 100 日以上となることが示されている。偏極標的では、この緩和時間 T_1 は偏極度そのものと並んで実験を遂行する上での重要因子である。

2.2.4 Hの偏極原理と方法

HDはフェルミ統計とボーズ統計に従う異なる質量、核子スピンを持つ2原子分子であるため、HD中のHもDも単体として取り扱うことができる。Hの緩和時間 T_1 は純HD状態では非常に長い(約1年)と言われている。高エネルギー実験を長期間続けられるという点では長いことは利点である。同時にそれは標的の作製すなわち偏極にもそれと同じだけの期間を要するという点である。そこで“スイッチ”と呼ばれる緩和メカニズムを導入する。これはHD中に少量の H_2 、とくに $o\text{-}H_2$ を混ぜるシステムであり、この $o\text{-}H_2$ が偏極の補助的役割を果たす[26]

回転の量子数を j とすると系を低温にすることで j は最小に近づこうとする。 $o\text{-}H_2$ は $j=1$ までしか許されないためスピンの向きを変えて $j=0$ が可能な $p\text{-}H_2$ になり、その比は20K以下でほぼ $p\text{-}H_2$ が100%になる。これをortho-para交換と言う。この現象も一種の緩和現象と呼べ、その緩和時間は約6.5日と言われている。この時間はHの緩和に比べると圧倒的に早く、 $o\text{-}H_2$ が $p\text{-}H_2$ になる際にHDのHとに生じるスピン-スピン相互作用を利用してHDのHを短時間で強制偏極させる。これで不要な重たい原子核を使うことなくHDの偏極期間を大幅に削減できる。図2.3はこの過程を模式的に示している。

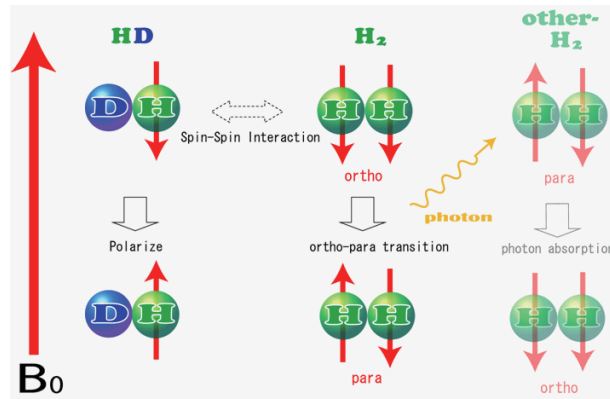


図 2.3: HD の H の偏極過程

Honigによれば、たとえ少量であろうともHDの緩和はほとんど不純物としての $o\text{-}H_2$ が支配的だとしている。その値は液体He温度で $o\text{-}H_2$ を1%含んだ時に約10秒程度である。そのためせっかくの偏極も一方では $o\text{-}H_2$ の為にすぐさま崩れてしまうことになるので、我々は偏極期間終了時にはしっかりと $o\text{-}H_2$ を限りなく $p\text{-}H_2$ にしておかなければならない。言い換えれば、偏極期間を短縮するために初期段階で $o\text{-}H_2$ の量を必要最小限に止めておく必要がある。 $o\text{-}H_2$ 含有率が1%の時と0.01%の時とで比較すると、 $o\text{-}H_2$ 含有率がortho-para交換で1%から0.01%になるまでの時間を t として、

$$\exp\left(-\frac{t}{6.5}\right) = 0.01 \quad (2.11)$$

$$t \simeq 30 \text{ day}$$

と見積もれる。これはHDのHの偏極量とは関係なく $o\text{-}H_2$ 潰しのために偏極期間が0.01%からスタートした時に比べて1か月余計にかかってしまうということである。 $o\text{-}H_2$ があまりに少なすぎるとHDのHの偏極補助効果が薄くなり、多すぎるとortho-para交換に時間を要したりHDの緩和時間を短くしたりすることになるので、 $o\text{-}H_2$ 量を最適点に近付けることは重要である。しか

残念ながら現在は未だその最適点を知るには至っていない。なぜなら、現在の蒸留技術ではHDとH₂の分留にはH₂量0.01%までしか到達できないからである。0.01%より低い場所に最適点があるかもしれないし、ないかもしれない。しかし現状においては0.01%が最適点とORSAYグループやBNLグループからの報告を受けている。現在一応は0.01%を目標にしており、これにより1~2か月の偏極で実験可能な数か月のHD緩和時間を得ることができると目論んでいる。偏極時はo-H₂を活用し短時間で強制緩和させ、減衰時は自然緩和をすることから偏極の行きと帰りで違う緩和過程を採ることになる。これがスイッチと呼ばれる所以である。下図はORSAYグループが報告したHDのHの緩和時間T₁の測定結果である。

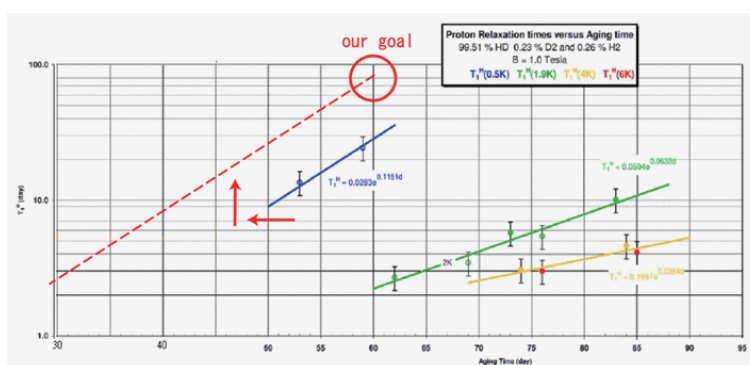


図 2.4: ORSAY グループにより測定された偏極期間 (Aging time) と緩和時間

この図ではHDの偏極後、磁場を1Tにして、温度を500mK、1.9K、4K、6Kにしてそれぞれの場合の緩和時間T₁の測定値を示している。LEPS実験では1T、300mKでの実験環境を予定しているのでT₁は500mKの青ラインに近くなると考えられる。実験環境の温度が低かったりHD純度が上がったりすれば緩和時間T₁は表上で左上方向にシフトするはずである。これによりLEPS実験でのT₁ラインは赤ラインと予想され、偏極期間が約2カ月程度と算出された。

2.3 偏極HD標的の製作から実験まで

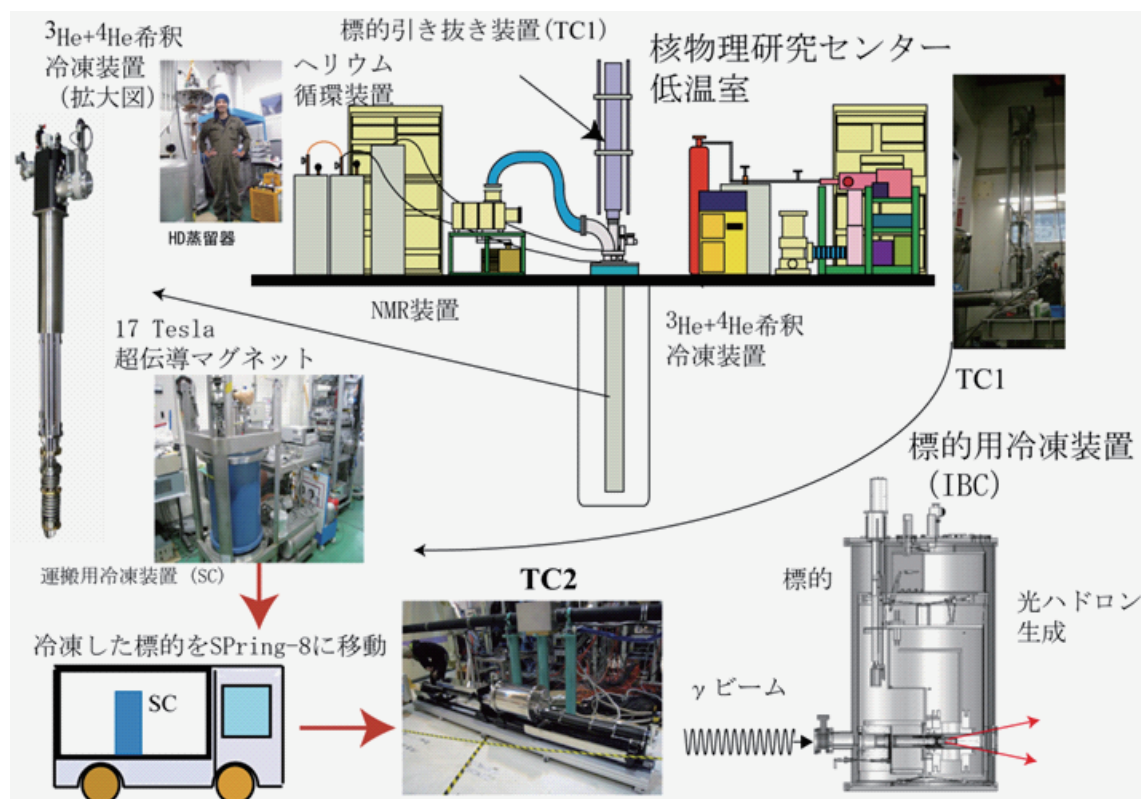


図 2.5: 標的開始から実験開始まで

順番は以下の通りである。

1. 蒸留器にてHDの蒸留を行う。HDガス中の H_2 、 D_2 の量は0.01%程度になると期待される。
2. 蒸留後にポンペに貯蔵されたHDガスは、貯蔵ポンペに接続されたパイプを用いてSC(後述)内の標的セルにHDガスを送る。セルはHDの融点である17 K以下の温度に冷却されているために、HDガスはセル内部で液化し、最終的に固化する。固化したHDの量を知るにはボイル・シャルルの法則 $PV=nRT$ を用いる。あらかじめわかっているHDガスポンペの容積と圧力からHDガスのモル数が算出できる。固化作業の後にも残りのHDガスの量が算出できる。固化の前後でのモル数から固化したHDのモル数が計算できる。HDセルの容積、パイプの容積はHD貯蔵ポンペの容積に比べて非常に小さく、固化したHDの量の算出は容易である。
3. 固化後、パイプを取り払い、冷却されたTC1(後述)によってセルの移動を行う。SCからセルを引き抜き、極低温になっている希釈冷凍機の冷却部(Cold Finger部)に移す。
4. 希釈冷凍機内へのHDセルのセット完了後、17 Tまで超電導ソレノイドの励磁を行い、永久電流モードにする。
5. 希釈冷凍機の運転を開始し、温度を10 mK程度まで下げる。

6. HD セル内の個体 HD は約 2ヶ月間、10～15 mK の温度で冷却する。HD 中の不純物である $o\text{-H}_2$ が HD 中の H に働き、H は核偏極する。
7. H_2 の ortho - para 変換が十分に進行した後、TC1 にて希釈冷凍機から標的セルを抜き出し、あらかじめ 1K、1Tesla に励磁もしておいた SC に移す。スピン方向を見失わないため、HD セルに印加する磁場を常に一定方向に保つことが重要である。このために TC1 の電磁石も励磁しておく必要があり、同時に時間にも配慮する。HD セルの最大の温度は 4K になると予想される。スピン緩和時間は 4K では 100 時間程度と予想される。したがって、このプロセスで長い時間を費やすことは高偏極をいくらか失うことにつながる。
8. SC の超伝導ソレノイドコイルは永久電流モードで運転し、偏極 HD 標的を SPring-8 まで移送する。
9. SPring-8 では冷却された TC2 でセルを SC からあらかじめ 300mK、1T にしておいた IBC に移し替える。この時もまた励磁と時間への配慮が必要である。なお IBC にはスピンの向きの関係上横向きにセルをセットしなければならないので容易ではない。TC2 は垂直方向、水平方向で HD セルを抜き差し出来る構造になっている。
10. IBC を元に戻し、実験ハッチ内のソレノイド電磁石の上流側にセットし γ 線ビームを照射し実験を開始する。

ここで偏極 HD を収納した IBC を実験室に配置した模様を図 3.2 に示す。

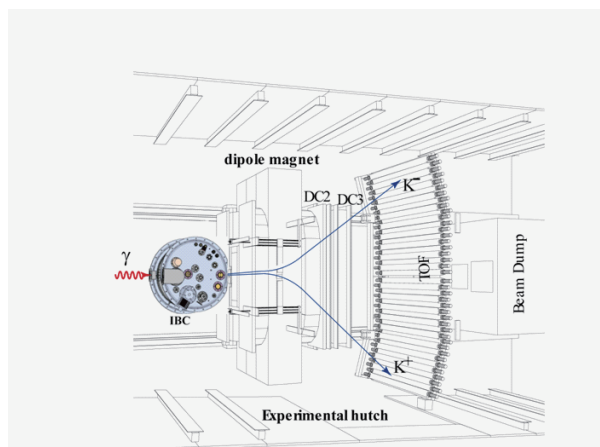


図 2.6: LEPS 実験室に置かれた標的冷凍装置 IBC (In Beam Cryostat)

8GeV 電子とレーザー正面衝突による最大エネルギー 2.4GeV の γ 線は図 3.2 の左方から IBC 内で 1Tesla の磁場を印加され、温度 300 mK 以下に保たれた HD 標的に入射される。入射ガンマ線は円偏光、直線偏光される。IBC 内で偏極 HD 標的は水平方向、垂直方向の超伝導ヘルムホルツ・コイルによって磁場方向が定められる。2 つのヘルムホルツ・コイルに流す電流をうまく調節することによって、核スピン方向を自由に回転することが可能となる。この核スピン回転機構を利用することによって、 γ 線の偏極方向、核スピンの偏極方向を自由に操り、光核反応（光ハドロン発生反応）を観測する。すなわち、光核反応での「偏極完全実験」が行える。図 2.7 はスピン方向の回転機構を示したものである。

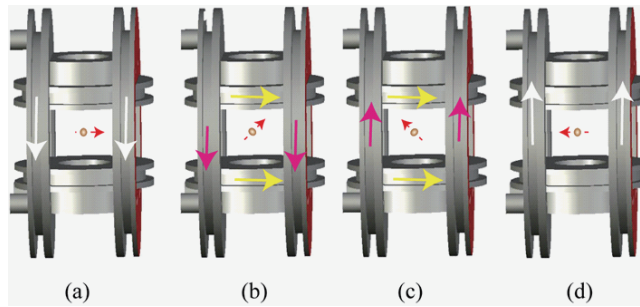


図 2.7: IBC 内でのヘルムホルツコイルを用いたスピン軸回転模式図

偏極 HD 標的が TC2 から IBC の希釈冷凍器の冷却部 (最低温度 100mK) に設置される。図 2.7 に示すように HD 標的には垂直方向、水平方向に 1Tesla の磁場が発生出来るヘルムホルツコイルが設置されている。偏極 HD 標的を挿入後は、水平方向の磁場で、スピン方向を保つ (図 2.7(a))。スピン方向を 180 度反転するために、水平方向のヘルムホルツコイルへの電流を徐々に弱め、垂直方向の磁場強度を徐々に強めていく。磁場ベクトルの方向は水平方向から徐々に上向きに変化する。核スピンはコマのように歳差運動をしているので、この磁場ベクトルの方向変化に沿ってスピン方向も上向く (図 2.7(b))。水平方向磁場発生用のヘルムホルツコイルに流している電流の極性を変えて電流を上昇させていくことにより、上を向いたスピン方向が変わる (図 2.7(c))。最後に垂直方向の磁場発生コイルの電流を零にすることでスピン方向は初期状態から完全に反転させることが出来る (図 2.7(d))。この過程での減変偏極は原理的には無い。もちろん、スピンを上向き保持することも可能であり、入射 γ 線のスピン方向、標的のスピン方向をいろいろ組み合わせての「偏極完全実験」が可能となっている。HD 標的セルは 2.5cm 直径、5cm 長の容器である。固体 HD の体積は 24.5cm^3 である。この標的が常温になり、ガスとなれば 700 倍の 17 になる。一方、IBC の容器全体の体積は概算で 430 リットル程度、このうち液体窒素槽は 30 リットル、液体ヘリウム槽は 60 リットル、さまざまな内臓物が 60 リットルと見積もっても、HD ガスが拡散する残りの体積は 180 リットルとなる。したがって、HD ガスが事故などで常温になったとしてもガスは IBC 容器内に閉じ込められ、IBC 外に漏れ出る可能性は少ない。

2.4 偏極 HD 標的のための個別装置

2.4.1 HD ガス蒸留器

市販されている HD ガスの純度は約 96 % である。残りは H_2 (2 %) と D_2 (2 %) が不純物として混入している。HD が熱的平衡状態から分解して時間の経過とともに徐々に H_2 と D_2 の不純物量が増加してくるので現実的には HD、 H_2 、 D_2 の比率は

$$\text{HD} : \text{H}_2 : \text{D}_2 = 94 : 3 : 3$$

程度になる。従って、*o*- H_2 は 2 % 程度、*p*- H_2 は 1 % 程度混入していると考えてよい。すでに述べたように極低温で HD 標的を偏極し、かつ 4 K 程度の温度になってもスピン偏極の緩和時間を長くするには、*o*- H_2 の混入量を 0.01 % 程度にする必要がある。

HD ガス蒸留器では H_2 、HD、 D_2 の沸点 (蒸気圧) の差を利用し、分離する深冷蒸留法を採用している。この蒸留法では、 H_2 、HD、 D_2 の 3 種類のガスの蒸気圧力の差を利用する。例えば、18K

では H_2 、HD、 D_2 の蒸気圧はそれぞれ 461[mbar]、235[mbar]、116[mbar] であり各々の蒸気圧は 2 倍程度の差がある。この方法では気液平衡状態での相対揮発度の差が大きいため比較的小型の蒸留塔で大きな分離係数を得ることができるという利点がある。しかしながら水素を液化するなど極低温のヘリウム冷凍機を必要とする。しかし現在では、比較的安価なパルスチューブ式の 4K 冷凍機が発明され、圧縮機やバルブユニットからの振動が冷却部に伝わらない冷却が可能となっている。核物理研究センターでは当初 ORSAY 原子核研究所で開発された棚段式の HD 蒸留器 (旧蒸留器) を移設し、HD 蒸留を行っていた。その後、充填式の蒸留器 (新蒸留器) を開発した。

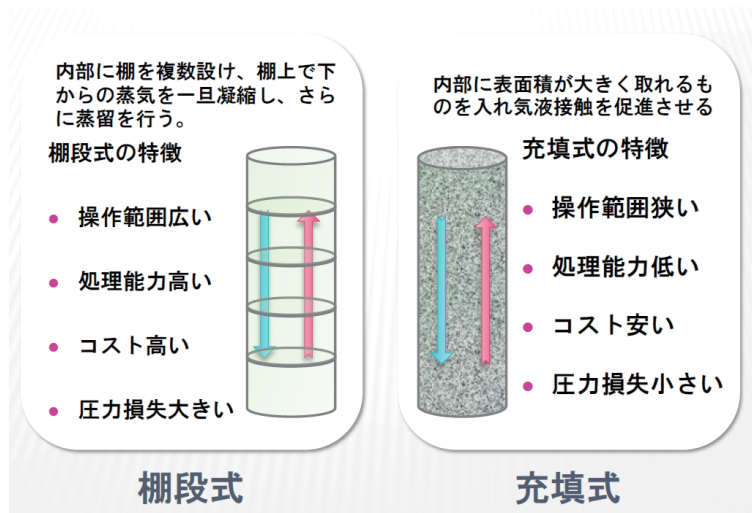


図 2.8: 核物理研究センターでの新方式充填式 HD 蒸留と従来の棚段式蒸留の比較

旧蒸留器は各棚に液化した液体 H_2 、HD、 D_2 を貯める液体ポット (Rectification Column) を用意し、その近くのパイプから純化されたガスを引き抜いて行くと言う方式であった。各棚段からのガスは異なる 10 個程度のポンペに蓄えられ、順次、蒸留したガスタンクを交換しながら、徐々に HD ガス純度を高めていくのが HD 蒸留のアイデアである。もちろん、ガスポンペ交換などの手順はコンピュータ制御で行われた。

新蒸留器では、蒸留器本体はパルスチューブ 4K 冷凍機に接続され、内部温度はコントロールされている。HD の蒸留を行うための細長い金属製円筒があり、内部にはガスとの熱接触を高め、熱伝導を高めるための充填物 (HELPAK) が設置されている。 H_2 、HD、 D_2 の蒸気圧の違いを利用し、円筒内で 3 種類のガスを 3 層に高速分離させ、高純度の HD が抽出できる。新しい RCNP 蒸留器は HD 純度を 99.99 % に高めるには 2 日で済む。ORSAY 蒸留器での蒸留は 2 週間必要だった事に比べて飛躍的な性能改善になった。HELPAK を用いてガスと金属の接触面積を大幅に改善したことがこの要因である。

2.4.2 希釈冷凍機

HD 標的を極低温で偏極させるために、 $3He+4He$ 希釈冷凍機を使用する。核物理研究センターに設置されている希釈冷凍機は、Leiden Cryogenics 社製 DRS-2500 である。この希釈冷凍機は全長約 3.5m である。6m の縦穴に液体窒素、液体ヘリウムで冷却するための液体ヘリウム・ジュワー (設計値: 容量 160 リットル、蒸発量 1.49 リットル/時) を設置している。その中に、偏極を保持し

ながら HD 標的を取りだすためにコイル形状を特別に設計した 17Tesla の超電導コイルを挿入し、その中心部に希釈冷凍機を配置している。図 2.9 は希釈冷凍機の外観を示している。

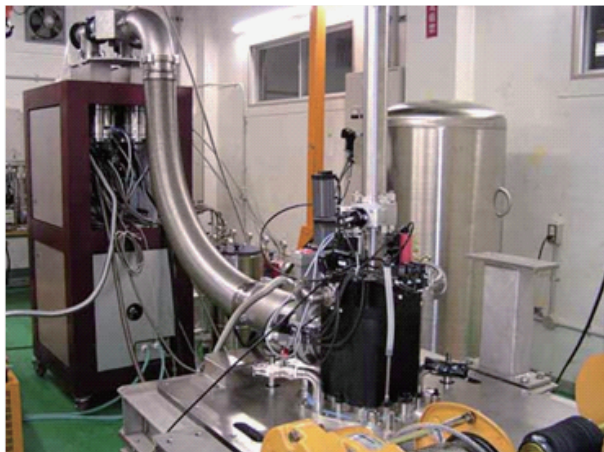


図 2.9: 希釈冷凍機の概観 1

この大型希釈冷凍機では、従来、希釈冷凍の基本機能である ^3He の循環に使用されていたメカニカル・ブースを使用せず、ターボ分子ポンプを使用した。このために、排気ポンプの運転による騒音問題が解決した。かつ、オイル・フリーのターボ分子ポンプを使用することで、従来、問題であったメカニカルブースターからの ^3He ガス中へのオイル混入のトラブルも防ぎ、長期安定運転が出来るようになった。この希釈冷凍機の最大冷却能力は 120mK で 2500mW である。到達最低温度は付加物を付けない状態で 6 mK となっている。



図 2.10: 希釈冷凍機の概観 2

写真の手前の金メッキされた先端部分が Mixing Chamber と呼ばれる部分であり、その上部に分溜器 (Still) がある。上部には液体ヘリウムを供給するためのパイプ、 ^3He ガスの排気パイプなどが配置されている。希釈冷凍機はフェルミ統計に従う ^3He と、ボーズ統計に従う ^4He の性質

の違いを用いて液体ヘリウムを使った冷却では冷やせない 1K 以下の極低温の冷却を行う。図 2.11 は希釈冷凍器内部の模式図を示している。

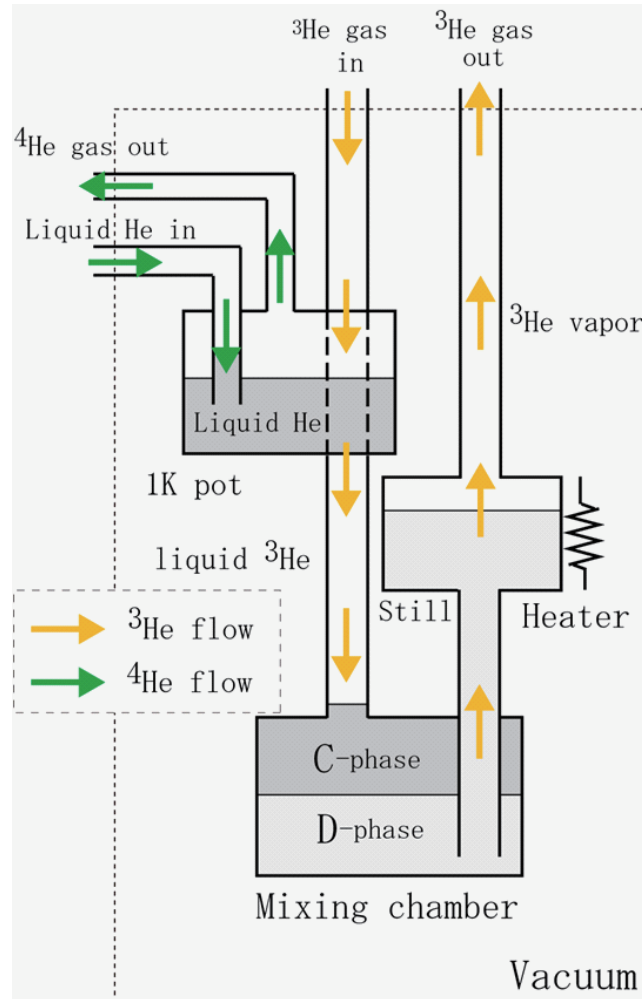


図 2.11: $^3\text{He}+^4\text{He}$ 希釈冷凍器ガス循環システムの模式図

この図を元に $^3\text{He}+^4\text{He}$ 希釈冷凍法の原理について説明する。ヘリウムには、 ^3He と ^4He が同位体として存在しており、自然界では ^4He が主体である。 ^3He はフェルミ粒子であり、 ^4He はボース粒子である。 ^4He は極低温で超流動を起こす。 ^3He と ^4He の混合液は 0.87K 以下で「多くの ^4He の中に少しの ^3He が混ざった希薄相 (D 相)」と「ほとんどが ^3He の濃厚相 (C 相)」の 2 相に分離する。希薄相では ^3He 濃度は約 6 %、残りは ^4He となっている。 $^3\text{He}+^4\text{He}$ 希釈冷凍機で最も低温になる部分は混合器 (Mixing Chamber) と呼ばれ、その中では図 2.11 のように 2 相が接している。D 相につながっているパイプの先は分溜器 (Still) とよばれる部分につながっており、そこはヒータによる温度コントロールで約 0.8K に保たれている。0.8K においては ^4He の蒸気圧はほぼ 0 である。しかし、0.8K では ^3He の蒸気圧は有限であるため、わずかな蒸気圧を持つ ^3He ガスを選択的に蒸発させることが出来る。この ^3He ガスを排気ポンプで強制的に排気することにより系の平衡状態を崩す。この時、系が平衡状態に戻ろうとすると D 相の ^3He ガス濃度が平衡状態より低くなり、 ^3He ガスは C 相から D 相へ蒸発する。このとき、エントロピーの大きな C 相と、エ

ントロピーがほぼ 0 の D 相の間のエントロピー差を吸熱反応として利用して混合液から熱を奪うことができる。また、排気された 3He ガスを 1K pot と呼ばれる凝縮器を用いて再液化し C 相に戻す。1K pot とはその名の通り、液体 4He を強制排気することで、その気化熱で 1K 程度の温度にして、 3He の温度を液化可能な温度まで下げる役割を果たす。このように 3He を循環させることで 1K pot の液体 He の供給のみで長期的・安定的に希釈冷凍機を運転できる。つまり温度を約 10mK に保つことができるのである。

前に述べたが、この希釈冷凍機は、HD 偏極標的開発で先行している、フランス・オルセー原子核研究所 (Jean Pierre Didelez ら) とアメリカ・ブルックヘブン研究所 (A.Sandorffi ら) のさまざまな経験の積み重ねを基にして、これまで $3\text{He} + 4\text{He}$ ガス排気部に使用していたメカニカル・ブースターの代わりに、ターボ分子ポンプというオイルフリーの排気ポンプをはじめて使用した。小型の希釈冷凍機ではターボ分子ポンプ付というのは主流となっているが、大型希釈冷凍装置の、冷凍能力を向上には、 $3\text{He} + 4\text{He}$ ガスの排気スピードを大きくする必要がある。このために、伝統的にターボ分子ポンプは使用せずに、メカニカル・ブースターを使用してきた経由があった。ライデン大学・フロッサッチ教授との相談の上で、安定運転、トラブルを避けるという意味でも、ターボポンプ使用の可能性を探った。結果的に採用したものは 500 リットル毎秒のドイツ・ファイファー製ターボ分子ポンプ 4 台を並列に使用することでこの難問を解決できた。ターボ分子ポンプを使用することで、 $3\text{He}+4\text{He}$ ガス排気に伴うオイルの混入によるノズルの目詰まり (これは長期運転の際に発生する問題) などの諸問題が発生することは大幅に少なくなった。下図 2.12 は希釈冷凍機心臓部のミキシング・チェンバーと呼ばれる個所である。



図 2.12: 希釈冷凍機内筒

ここでは、1K pot の液体 4He で冷却された 3He ガスが Mixing Chamber に送り込まれ、液体ヘリウムが C 相から D 相に移る時に希釈冷凍が行われる。7 mK 以下の低温を達成するためには極低温での熱伝達がスムーズに行くことが決定的であり、このために冷却されたヘリウムとの接触面積を限りなく稼ぐことが性能アップの本質である。ライデン・クライオスタットでは、Sn 金属の粉末を猖獗処理することにより、猖獗 Sn 粉末中を 3He ガスが通過するようになり、接触面積を稼ぎ、冷凍能力を増加させている。図 2.13 は核物理研究センターに納入された DR2500 希釈冷凍機の冷却能力を示したものである。7mK まで陽子を冷却でき、かつ 17Tesla の磁場を印加できればスピン偏極度は 95 %に達する。もしこの偏極度が達成されれば、原子核実験で使用される光核反

応用の偏極ターゲットとしては世界最高のものとなり、光核反応実験での最高品質のデータが測定できることを意味する。図 2.13 は ^3He ガス流量を変化させた時に達成された温度変化をに示したものである。

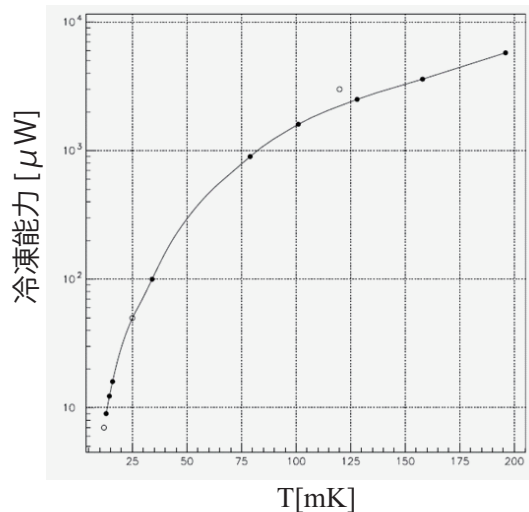


図 2.13: 希釈冷凍機の冷凍能力

^3He ガス流量を変化させた時に達成された温度変化を図 2.14 に示す。

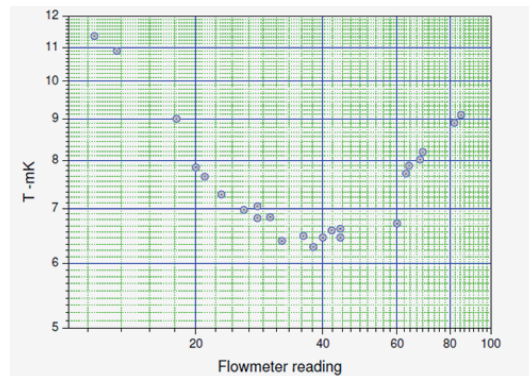


図 2.14: 希釈冷凍機の最低到達温度

現在の最低到達温度は 6.5mK 程度である。この温度測定には極低温でのもっとも信頼の置ける CNM 温度計を用いた。冷却能力の測定精度についての問題はあるが、一応、125mK で冷却能力 2500 μW が達成できた。今後、機器のパラメータの最適値を見つける努力で 3000 μW 以上の冷却能力を示すかどうかは興味のある点である。この時点での、測定データは最低到達温度は一応 7 mK 程度まで下がることを示している。我々が一応目標としたのは 10 mK まで HD 標的部を冷却するということであった。

2.4.3 超電導ソレノイド

図 2.15 は 17T 超伝導マグネットの基本構造を示している。

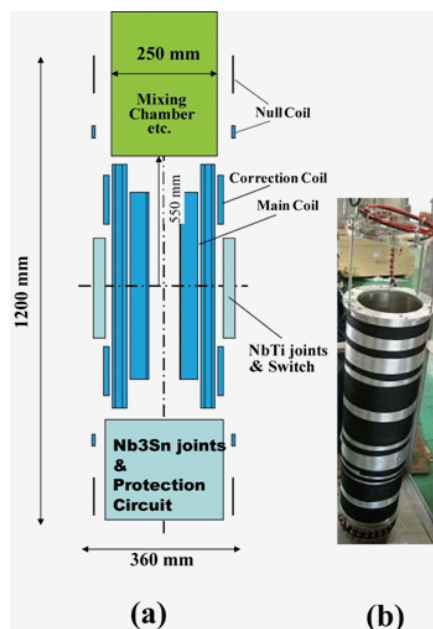


図 2.15: (a) 17 T 超伝導ソレノイドのコイル配置と (b) コイルの写真。黒いエポキシ・モールドの部分に Nb₃Sn 超伝導線が巻かれている。Correction Coil はソレノイド磁場の中心付近での一様性の範囲を広げる役割を果たしている。また上部に Null Coil が巻いてあり、ソレノイドの磁場がコイル中心部から Mixing Chamber 付近まで磁場方向が反転せずに同じ方向になるように工夫されている。これは、スピン偏極を壊すことなく偏極標的を取り出すための最も重要な点である。この超伝導ソレノイドは電流リードケーブルと PCS ヒーターを介して電源兼コントローラー盤への接続が自由にでき、永久電流モードへの切り替えや手動モードでの磁場の励磁や消磁を任意の値、任意の速度で行うことができる。

このソレノイド・マグネットでは、17T という高磁場を直径 7cm の領域に発生し、かつ、偏極した HD を引き抜く時にスピン方向の反転が無い様に考えられている。通常のソレノイドコイルによる発生磁場では、磁場強度がコイルのエッジ近辺でゼロを切り、磁場方向の反転が起こる。このような状況では、折角、95 % もの高偏極を作成した標的の偏極が、引き抜き作業の時に発生してしまうこととなる。これを防ぐための、Null Coil を巻き、磁場の反転を防いだ。上部の Mixing Chamber の挿入される部分は開口部が大きく、主コイルの中心部分には HD 標的を冷却するための Cold Finger が挿入される。希釈冷凍機の冷却性能を保証するために、磁場中心で 17Tesla の励磁の時でも、ミキシング・チェンバー近辺での磁場強度は約 400 ガウス程度とする必要があった。この条件を満足するため null coil と Correction coil の幾何学的位置を変えての磁場計算が行われ、偏極 HD 標的生成に必要な磁場分布を得た。偏極用超伝導電磁石 (Superconducting Magnet) は JASTEC 社製の超伝導点は約 7K である Nb₃Sn 線を用いた。この超伝導線の特徴は中心 Ta コア部分である。この Ta コアが引っ張り強度を飛躍的に高め、一定の強い張力でコイルをアルミニウム・ボビンに巻くことで高磁場での超伝導線の微小な動きを防止することが出来ている。巻いた Nb₃Sn ワイヤはコイルに電流を流した時に、膨張し、クエンチングが発生しないように、ワイヤ

の外からさらに高張力で巻かれたアルミニウムワイヤで保護し、最終的にアルミニウム・ボビンに全体を固定するためにエポキシ樹脂で真空モールドされている。こういった処置を施すことで、最高磁場 17Tesla を達成することができた。このコイル配置でのコイル中心付近での発生磁場分布を図 2.16 に示す。

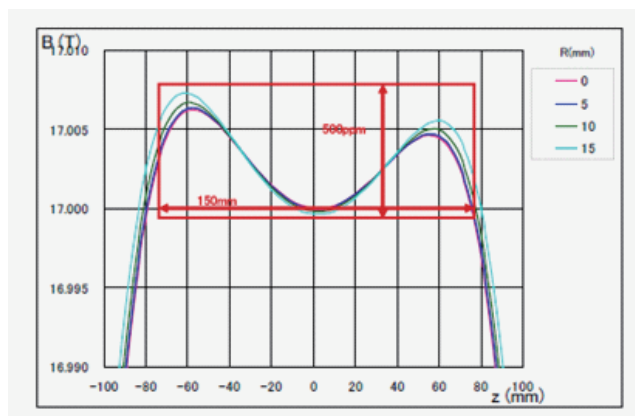


図 2.16: 17T 超電導ソレノイドの磁場計算結果

15cm のコイル中心領域で 500ppm 以下の磁場均一度が達成できる。実際の HD 標的の長さは 5cm なので、中心の 5cm では 200ppm 程度の均一度となる。偏極測定のための NMR シグナル発生のためには十分に良い磁場均一度が得られる。

図 2.17(a)(b) は試験運転の際に測定されたソレノイドの磁場分布を示している。計画したように 17Tesla の強磁場が発生しており、中心付近で、計算と実測は 1/10000 程度の良い一致を示している。磁場分布計算は円筒対称を仮定して行われ、棟伝導コイルのリード線の効果などは考慮に入られていないものが 10^{-4} 程度で一致していることは、現実のコイル巻き線が設計とほぼ同じように行われていることを示している。図 (c) はミキシングチェンバー領域での磁場の実測データである。17Tesla 発生時にも Mixing Chamber 付近 ($Z=700 \sim 1000$ mm) で漏れ磁場は 400 ガウス程度になっており、ソレノイド中心から Mixing Chamber に至るまで磁場が反転することは無い。6m の深い縦穴に希釈冷凍機を設置し、かつ縦穴を形成するコンクリートには一切、磁気を帯びる鉄筋を使用しなかったために、漏れ磁場は極めて小さく、縦穴の近辺に近寄らない限り、磁場強度は 10 ガウス以下となった。

図 2.18 に Mixing Chamber、Cold Finger、HD 標的セルの写真と位置関係を示す。希釈冷凍機の Mixing Chamber に Cold Finger をセットした時、セルの中心が磁場中心になるよう設計されていて、セル中心が 17T 超電導ソレノイドの中心に位置する。極低温で熱伝導が極めて高くするために Cold finger は 99.9999 % の高純度無酸素銅の円筒管状に加工している。Cold Finger は Mixing chamber に取り付けられ、その先に HD セルを固定し、セルと Mixing chamber とに距離をとっている (図 2.18(a))。Cold finger に高純度無酸素銅を使用しているのは、遠く離れたセルも Mixing chamber と同じ温度に出来るように高熱伝導物質が必要だったからである。Cold finger の上から下まで入っているスリットは、電磁石の磁場の昇降の際に生じる誘導起電流を流さないために設けられている。円筒管である Cold finger の円周上に電磁石とは逆向きの電流 (eddy current) が流れ、それが発熱の原因となるためそれを防ぐ役割を持っている。

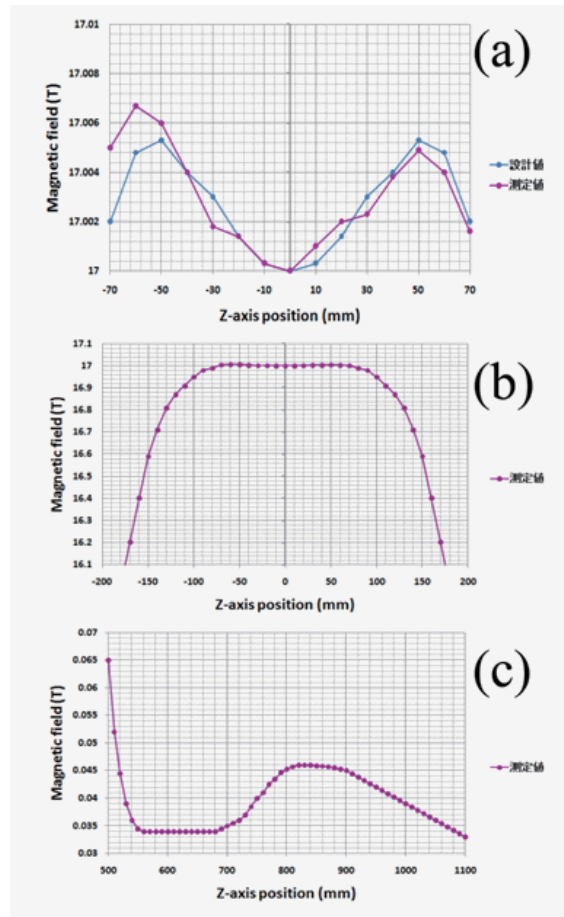


図 2.17: 希釈冷凍機に設置された超伝導ソレノイドの磁場分布。測定はソレノイド中心軸に沿って行われている。(a) ソレノイド中心付近の測定磁場データと計算値の比較。(b) ソレノイドの中心に沿って測定された磁場分布。(c) ソレノイドの上部から Mixing Chamber 領域にかけての磁場分布。計算値と実測値は良い一致を示している。

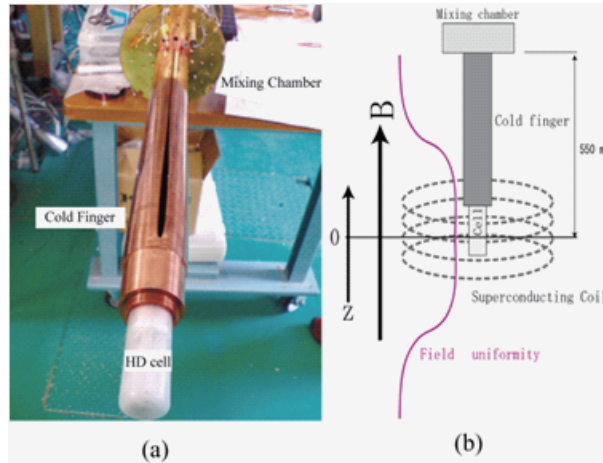


図 2.18: 超伝導ソレノイド、HD セル、希釈冷凍機の位置関係。(a) Mixing Chamber 下部に Cold Finger および HD セルを取り付けた写真。(b) Mixing Chamber と超伝導ソレノイドの位置関係についての模式図。

2.4.4 Transfer Cryostat (TC)

希釈冷凍器で極低温に HD 標的を冷却し、17T 磁場を印加し陽子の偏極を達成した後、希釈冷凍器内から標的セルのみを抜き取る。そのための装置が Transfer Cryostat(TC1) である。これは小型の超伝導ソレノイドを備えた長尺の冷凍機で、あらかじめ希釈冷凍機の上方に設置し、標的の偏極度を保持したまま HD セルを取り出したり、挿入したり、移動させたりする目的に用いられる。図 2.19 は Transfer Cryostat(TC1) の写真とその機能を模式的に示している。

TC1 は真空層の内部で 3 層構造を持っており、液体 He で冷却されていてセルを掴みに行く内層、同じく液体 He で冷却されていて稼働中も HD セルに一定方向の磁場を印加し、偏極を保持するための超伝導ソレノイドが入っている中層、全体を液体窒素で冷却する外層に分かれている。図 2.19(b) の左に示すように、収納時、各層はその一つ外側の層の内部に格納されている。作動時にその下端と希釈冷凍機の上端を開放し外側の層から腕のように伸びて行き、その腕は Cold finger の先端まで約 3.5m 伸びる。このようにして HD セルを低温に保ったまま一定方向の磁場を印加しながら引き抜くことが出来る。

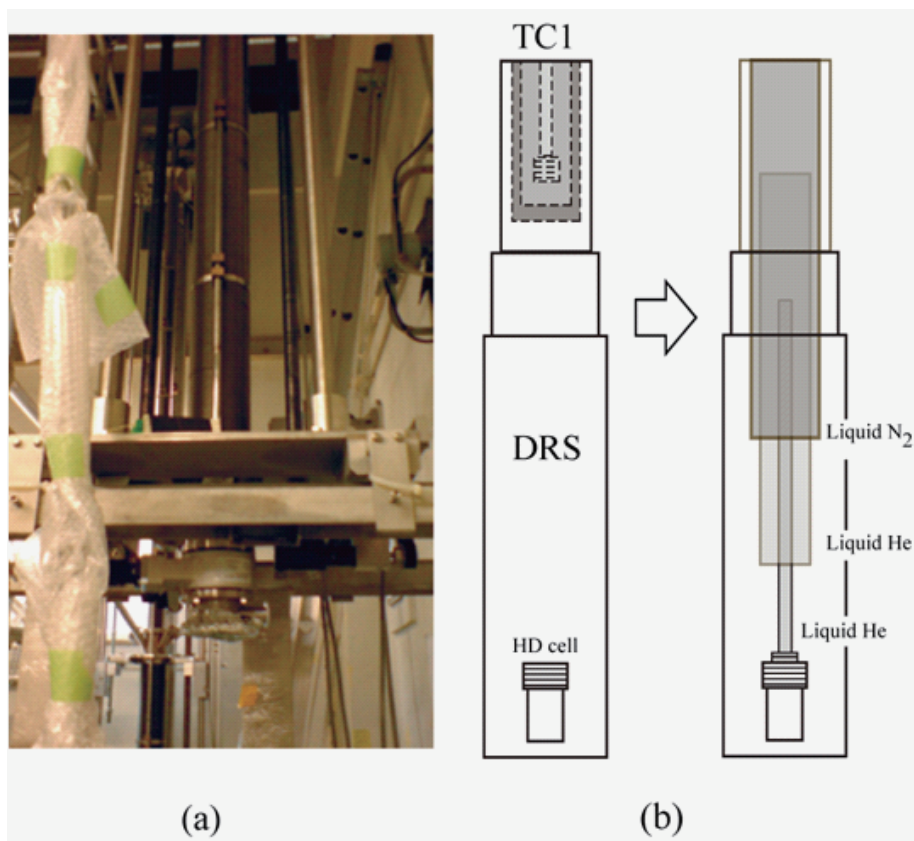


図 2.19: Transfer Cryostat 1 (TC1)。 (a) TC1 の写真。 (b) 希釈冷凍機中の HD セルを引き抜く時の模式図。

2.4.5 標的用冷凍装置 (In Beam Cryostat (IBC))

図 2.20 は IBC の概観図である。

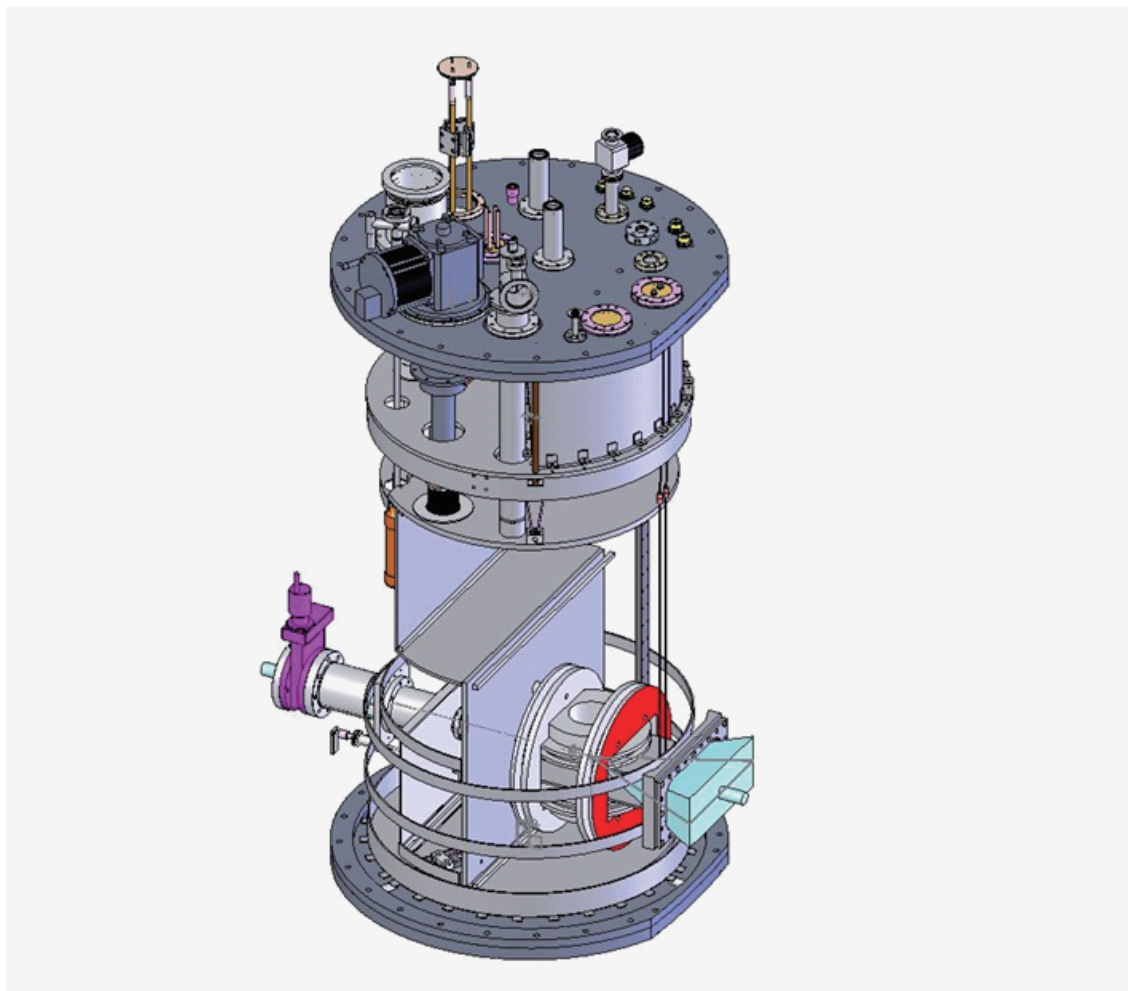


図 2.20: 標的用冷凍装置の概観図。外側真空槽を取りはらってみたときの鳥瞰図である。HD 標的はヘルムコイルの中心部に置かれ、200 mK の温度まで冷却される。ガンマ線ビームは左方のゲートバルブの方向から入射され、光核反応で発生した粒子は L E S スペクトロメータの立体角に合わせて開けられた右方向の窓を通し標的用冷凍装置の真空槽外に出射される。

IBC は $3\text{He}+4\text{He}$ 希釈冷凍機、ガス・ハンドリング・システム・真空ポンプ系、制御システムの 3 つで構成されている。制御システムを用いて $3\text{He}+4\text{He}$ 希釈冷凍機、ガス・ハンドリング・システム、真空ポンプ系の運転をコントロールする。ガス・ハンドリング・システムと真空ポンプ系は、 $3\text{He}+4\text{He}$ ガスを排気し循環させることによって希釈冷凍を行わせるために使用する。IBC はスピン偏極した HD 標的を長時間の実験で使用し、かつ、スピン方向を自由に回転できる工夫がなされている。

★ 基本的な概要

- HD 標的の導入をするため、 $3\text{He}+4\text{He}$ 希釈冷凍機は運転時 (2.5K 以下) の状態で最大 28°

の傾斜に耐えうる構造である。

- 3He+4He 希釈冷凍機は、液体窒素シールド型で、積層断熱材と真空で断熱されている。液体ヘリウムの蒸発を最小にするためのヘリウム再凝縮装置が装着され、少なくとも、希釈冷凍機が働かない時には、蒸発するヘリウムガスは再度、再凝縮して液体に帰ることが可能となる。(別に再凝縮装置を使用することにより、希釈冷凍機の作働時でも液体ヘリウムの大量補給がなくても長期実験として使用可能なように、外から再凝縮装置を取り付けも可能である。)
- 3He+4He 希釈冷凍機の高さは、ターゲット部から 1500mm 以下であり、LEPS 実験室の高さにフィットするように作られている。
- 偏極 HD ターゲットが設置される周囲にはスピン方向の維持のために縦方向、横方向に磁場が発生できるヘルムホルツ・コイルが設置され、偏極の方向が自由に回転できる。
- 運転状況の把握のための圧力、真空、温度センサー用ケーブルが設置されている。
- 液体ヘリウム、液体窒素デューワー用モニターケーブル、NMR 信号用モニターケーブルなどが装着されている。

★ HD 標的周辺部については以下の要件が可能となっている。

- 運転時の温度は 500mK 以下であり、最低温度として 250mK が得られる。無負荷の状態でもミキシング・チェンバー外側の温度が 350mK (± 10 %) の時、冷凍能力は 1000 μ W 以上である。
- 3He+4He 希釈冷凍機の横部から外径 25 \pm 1mm、長さ 60 \pm 2mm の HD 標的を挿入できる構造である。
- 設置された HD 標的から検出器への開口窓の角度は水平方向 \pm 25 °以上、垂直方向 \pm 11 °以上である。
- 真空切り離しゲートバルブを通じて、300K から 4K までの環境温度の変化の中で、4K に冷凍した HD 標的が挿入できる。
- 80K、20K、4K 温度シャッターを通じて、250mK のターゲット部へ HD 標的を挿入できる。
- 校正された酸化ルテニウム測温抵抗体による温度センサーがあり、温度モニターが出来る。

★ 超伝導マグネット部については以下の要件が満たされている。

- HD 偏極ターゲットが TC2 から受け渡される位置での HD 標的の経験磁界が 0.1 T の超伝導マグネットを取り付けられる構造となっている。
- 発生磁場が中心領域において 1T 以上であり、磁界均一度が長さ 50mm において 0.001 以下の超伝導マグネットを取り付けられている。
- 偏極した HD 標的のスピンを回転させるための横磁場発生のための超伝導コイルが取り付けられている。

標的用冷凍装置は小さな実験室に設置するために、極めてコンパクトに設計されている。そのため、液体 He の消費量が必然的に大きくなっている。長期間例えば 3ヶ月以上を使用するときには、液体 He の使用費用が大きくなる。平成 19 年 6 月現在、液体 He の価格は 1 リットル当たり約 1100 円程度である。1 時間の He 消費量が 2 リットルとすれば、3ヶ月の運転で 475 万円の運転経費が発生する。この消費量を低減するには、He 再凝縮装置をつけて He の使用に問題が無い様にすることは大きなメリットとなる。幸い SPring-8 サイトにニュースバル放射光施設があり、その研究室の好意で 6W の He 再凝縮装置が使用できる可能性も検討してはとの示唆があり、この再凝縮装置の取り付けが考えられている。

2.4.6 運搬用冷凍装置 (Storage Cryostat(SC))

下図が ORSAY から貸与されている運搬用冷凍装置 (SC) である。



図 2.21: SC

この装置は偏極 HD 標的を 1.8 ~ 2K の温度に保ちながらトラックに搭載し移動できる。これまでの経験では、パリからグルノーブルの距離 600km を HD カプセルを装着し問題なく移動した。また、核物理研究センターから SPring-8 間も永久モードでコイルに電流を流しながら移動することに成功している。以下に備わっている個別部分を記す。

- 超伝導マグネットを含む極低温装置をトラックに移動させても振動による問題が無いバネ付、支持機構がある。
- イギリス・オックスフォード社製の超伝導マグネット及びそのデュワー容器であり 1.5K から 200K までの温度を可変にできる。

- 液体窒素、液体ヘリウム用の液面計とその読み取り付帯回路（オックスフォード社 ILM211）
- HD 標的の偏極を測定する KEL-F 製 NMR コイルと校正済み AB100 温度計
- ORSAY 原子核研究所製の小型 NMR 測定サンプル
- 超伝導コイル用電流電源（製品名 SML120L(120A) と 120A 電流リード線）
- パワーサプライ
- パワーサプライ用バッテリー箱
- 1.6 kW 交流電力発生器（直流 22-33 ボルトから単相 AC230 ボルト）
- 25 リットルの安全ガスリザーバー

この装置用いての HD 標的の引き抜き、運搬のテストは吹田キャンパスにある核物理研究センターに於いて何回ものテストを行う。実験成功の成功率を 100 % に高めた後に、トラックに搭載されて、SPring-8 に運搬され、HD 標的が TC2 によって引き抜かれ、標的用冷凍装置に装着され実験に使用される。

第3章 ガスクロマトグラフィーを使ったガスの分析原理

3.1 実験目的

我々のグループは平成 17 年から偏極 HD 標的の開発を行ってきた。初めの 3 年間に、偏極生成用の希釈冷凍機と SPring-8 実験用の希釈冷凍機を製作し、3 台の標的移動用の ^4He 冷凍機をフランスの ORSAY グループから譲り受けた。平成 20 年末に、初めての偏極 HD 標的の製作を行った [27, 28] 偏極生成用の希釈冷凍機を用いて、HD を 14mK の極低温に冷却し、17Tesla の高磁場で偏極させ、53 日間エイジングを行って偏極を凍結させた。偏極凍結後、偏極度と偏極持続時間を測定すると、偏極度は約 40 % で偏極持続時間は SPring-8 での実験環境 (300mK, 1Tesla) において約 100 日であった [27] 約 100 日の偏極持続時間は、SPring-8 での実験には十分であり、エイジング時間を長くすれば延長することが可能である。約 40 % であった偏極度は、予想される 80 % 以上の値から大きくずれている。その原因として一番に考えられたのが、NMR を用いた偏極測定装置の問題だが、NMR 出力信号の直線性の調査では結論には至らなかった [29] 他に考えられる原因は、HD ガス中の $o\text{-H}_2$ の濃度が低くなりすぎていて、HD を偏極させることが十分にできていなかった可能性である。HD ガス中の $o\text{-H}_2$ の割合を把握することの重要性は先にも述べた。残念ながら今までの実験では正確な値を知ることができなかった。我々はガスを分析する際に四重極質量分析器 (以下 QMS という) のみを用いて実験していた。実験データのサンプルを図 3.1 に示す。

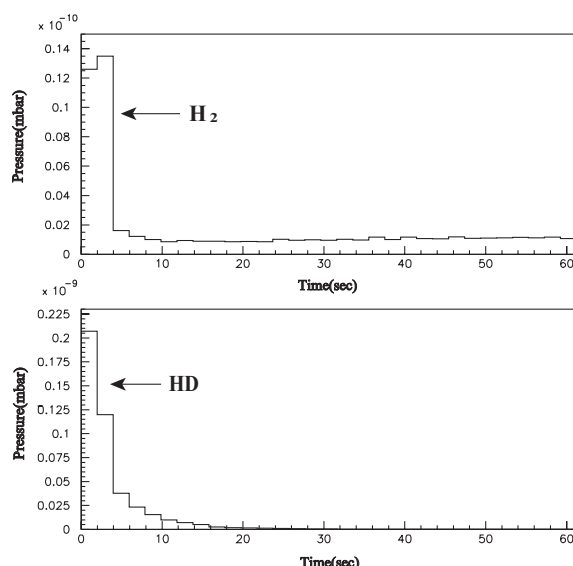


図 3.1: QMS で H_2 と HD の混合ガスを分析したものの。 H_2 と HD は同時に検出される。

質量分析をするためにはガスをイオン化する必要がある。ここに本質的な問題が発生する。QMSでは分析するガスに電子をぶつけてイオン化し、質量分析を行うのであるが、イオン化の際にHDガスが分離し、 $HD \rightleftharpoons H^+ + D^+$ というようなイオン化が起こり、フラグメンテーションが発生する。表 3.1 は H_2 、HD、 D_2 を分析した時のフラグメンテーションの様子を表したものである。

u/e	1	2	3	4	5	6
測定したい分子		H_2^+	HD^+	D_2^+ ,		
フラグメント	H^+	D^+	H_3^+	H_2D^+	D_2H^+	D_3^+

表 3.1: H と D から発生しうる分子を mass/charge[u/e] で分けたもの

我々の目的は蒸留器から蒸発された HD ガス中の H_2 、 D_2 の割合を知ることであるが、上図からみても分かる通り HD に電子をぶつけた際に発生する D^+ は、 H_2^+ と質量が同じなので正確に H_2 の割合を把握することはできないという問題が残る。ここで D^+ は D_2 に電子をぶつけた際にも発生するが、我々が分析しようとしている混合ガスは HD がほぼ 100 %なので、 D_2 から発生する D^+ の影響は無視できる。あまり影響しないものとしては H_2 に電子をぶつけた際に発生する H_3^+ で、これは HD^+ と質量が同じになる。この H_3^+ はプロトン化水素と呼ばれる。

これらの問題を解決する一つの方法は分析するガスを時間的に分離することである。今までの方法では、分析ガスが時間的に同時に検出され、このために上述のような問題が発生することになる。我々は $\frac{H_2 \text{ガス純度}}{HD \text{ガス純度}} \approx \frac{1}{10000}$ 以下のガスを分析しなければならない。これには今まで用いてきたダイナミックレンジの高い QMS を用いることは有効的である。一方、分析ガスを時間的に分離させる手段としてガスクロマトグラフィーという手法がある [30] ここで我々はこのガスクロマトグラフィーという手法と QMS を組み合わせて混合ガスを 2 次元的つまり時間と質量で分離するための分析システムを開発することにした。

3.2 ガスクロマトグラフィー

3.2.1 ガスクロマトグラフィーとは

多成分の混合物を単一の成分に分離する方法をクロマトグラフィーという。その中で移動相に気体を用いる手法をガスクロマトグラフィー (以下ガスクロ) という。

3.2.2 実験装置

図 3.2 に実験のシステム概要図を、図 3.3 にカラムでの分離原理について、図 3.4 にカラムを冷やすために作成した装置を示す。ここで高分子を分析する場合はカラムを温めて実験するのだが、今回は HD、H₂ などの質量の小さい分子を分析するので、常温で使用しても瞬時に検出器に到着してしまいガスを分離させることができない。つまりすべての成分が同時に検出器に到着するというのである。これを避けるため、今回の実験ではカラムを低温に冷やすことにした。こうすることで分析ガスの速度を落とし、カラム内での相互作用から成分を分離できるであろうと考えた。

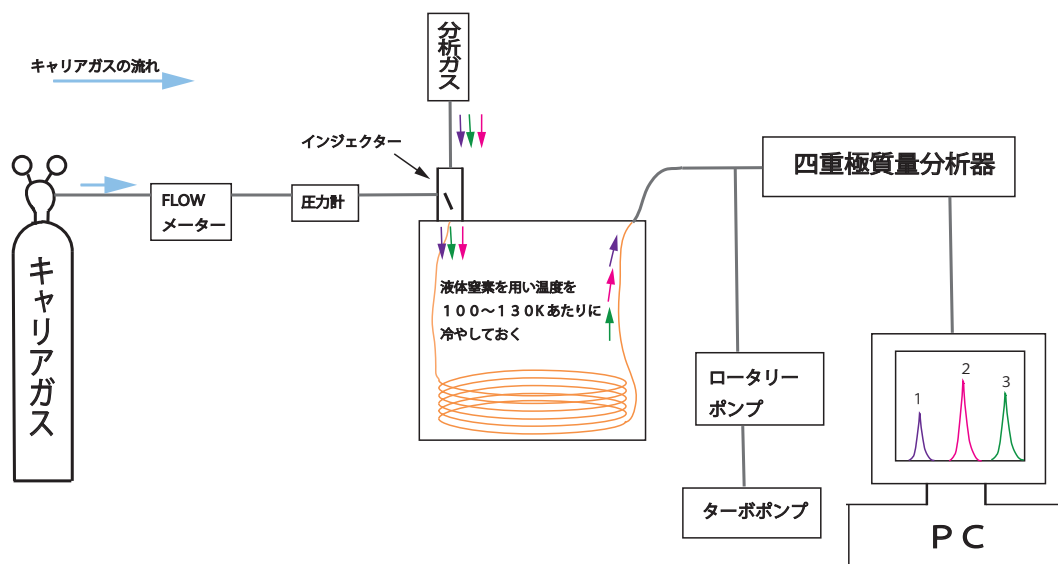


図 3.2: 装置の構成

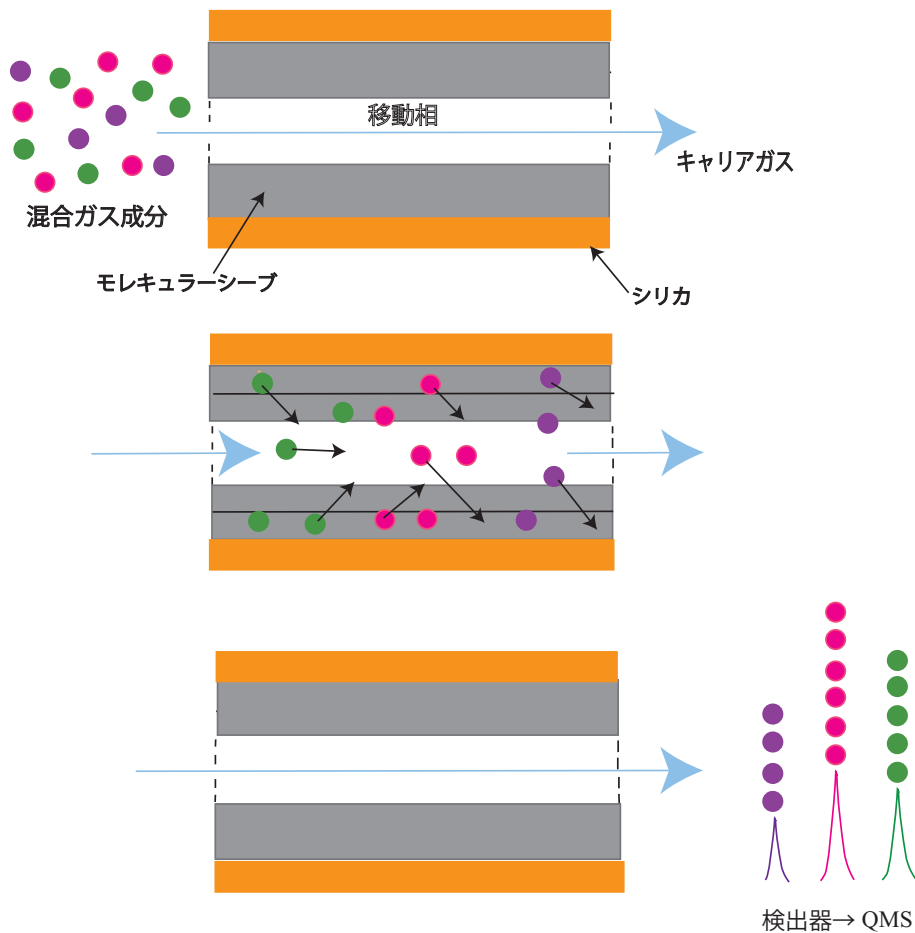


図 3.3: ガスはカラムを通過する速度の違いを測定することによって分離される。カラムはガス口の心臓部と呼ばれている。ガスはカラム内膜にコーティングされているモレキュラーシーブの孔質における吸着・脱着の繰り返しによって各成分に分離される。

3.2.3 分離度

目的成分のピークが近接するピークからどの程度分離しているかを示す尺度として分離度 R (R : resolution) が用いられる。2つのピークが離れているほど、また個々のピークが鋭いほど2つのピークの間隔はよくなる。

例えば図 3.5 のクロマトグラムにおいては、 R は次のように定義できる。

$$R = \frac{(t_{p2} - t_{p1})}{(\sigma_{p1} + \sigma_{p2})} \quad (3.1)$$

ここで、 t_{p1} 、 t_{p2} はピーク 1 及び 2 の保持時間 ($t_{p2} > t_{p1}$)、 σ_{p1} 、 σ_{p2} は peak1 及び peak2 の半値幅を表す。

$R > 1$ では2つのピークが裾で離れ、 $R=1$ のときは裾で接し、 $R < 1$ では裾が重なっていることを示す。実際のピーク裾幅は R が 1.5 以上であれば2つの成分ピークは完全に分離されていると認められるようになる。 $R=1.5$ を基線分離とよぶ。

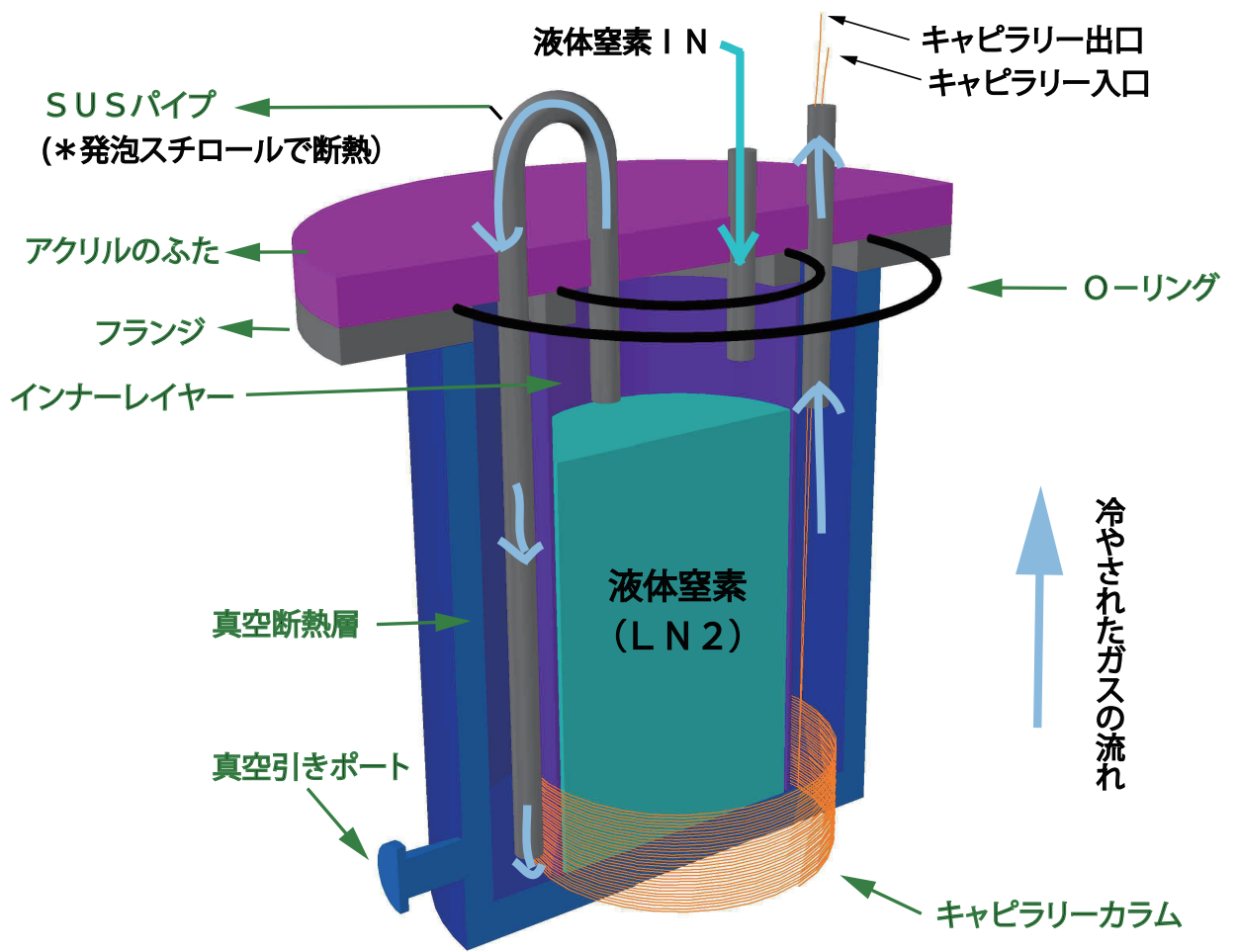


図 3.4: カラムを冷やすために作成した容器。温度センサを SUS パイプから通してカラムの位置で固定している。

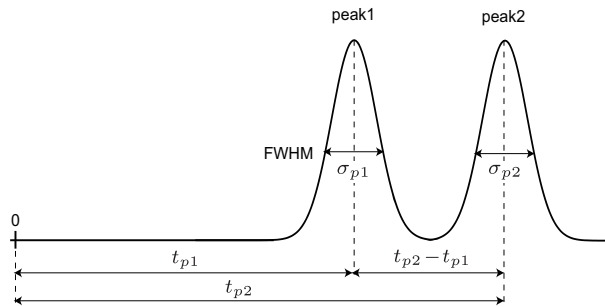


図 3.5: 分離度を説明するための模式図

3.2.4 理論段数

理論段数 (theoretical plate number) N とはカラムの性能・効率を判断する指標の1つである。クロマトグラフィーの分離の原理は溶媒抽出法での向流分配を元としている。1つのカラムを多くの抽出段を有する分配系と考え、その中で試料が各段の分配平衡を行いながらキャリアガスにより移動させられていくと考える。この考えにより得られる分配系の段数を理論段数といい、キャリアガスの量とピークの広がりが元になっている。ピークが鋭ければ分離が良好だが、カラムの移動中に起こる成分の拡張によりピークが広がることになる。

平衡にあると考えられる最小の長さでカラムを等間隔に輪切りにしたときに、その輪切りにされた1個を理論段という。すなわち、各段 (理論段) の中で試料は固定相と移動相とに分配され、平衡状態にあると考える。そして、理論段の数、つまり理論段数はカラム1本あたり、あるいは単位長さあたり、試料の固定相と移動相への分配が生じる最小の単位が何個あるかを表す値である。分配平衡を繰り返す理論段が多いほどクロマトグラムのピークの対称性が高くなるので、 N が大きいほどそのカラムの効率が低いことを示している。

理論段数 N はピークの保持時間を t_R 、ピーク幅を W 、ピークの形状を正規分布とみなした時の標準偏差を σ とすると次のように表される。

$$N = \left(\frac{t_R}{\sigma}\right)^2 = 16\left(\frac{t_R}{W}\right)^2 \quad (3.2)$$

ただし、ピーク幅 W は $W=4\sigma$ とした。

理論段数はカラムの長さによって異なるため、直接比較できるのは同一の長さの場合に限られる。また保持時間が同じであれば、ピーク幅が狭いほど N は大きくなり、分離効率のよいカラムといえる。クロマトグラムのピークの高さの半分の位置でのピーク幅である半値幅 $W_{1/2}$ が最も測定しやすいので、通常 N はこの半値幅を用いて算出される。正規分布曲線から $W=4\sigma$ 、 $W_{1/2}=\sqrt{8\log 2} \cdot a$ の関係があるので、(3.2) 式は

$$N = \left(\frac{4t_R}{W}\right)^2 = 5.545\left(\frac{t_R}{W_{1/2}}\right)^2 \quad (3.3)$$

となる。

3.2.5 理論段高さ

3.2.4 より理論段数 N は、その値が大きいほど分離効率が良いということであった。ここで分離効率を決めるのもう一つ概念がある。それは理論段高さというものであり、これは理論段数 N

とは逆に、その値が小さければ小さいほど分離効率が良いというものである。理論段 1 段に相当するカラムの長さを理論段高さ HETP (Height Equivalent to a Theoretical Plate) と呼び、

$$HETP = \frac{L}{H} \quad (3.4)$$

と定義される。これはカラム何 mm で試料を分離できるかの指標となるもので HETP が小さいほど効率のよいカラムといえる。また HETP は線速度 $u(t)$ を用いて次のように表すこともできる。

$$HETP = A + \frac{B}{u} + C \cdot u \quad (3.5)$$

この式は Van Deemter の式と呼ばれる。ここで A、B、C はそれぞれ分離成分の多流路拡散 A、カラムの軸方向の分子拡散、移動相内及び固定相内での物質移動に対する抵抗 C に関する定数を表している。

3.2.6 カラムの選定

ガスクロマトグラフィーにおける分離カラムは大きく分けてパッキドカラムとキャピラリーカラムの 2 つに分けることができる。両者の違いを表 3.2 に示す。

	パッキドカラム	キャピラリーカラム
長さ [m]	1 ~ 5	5 ~ 60
内径 [mm]	2 ~ 4	0.2 ~ 0.8
キャリアガス流量 [ml/min]	20 ~ 60	3 ~ 30
固定相の厚さ [μcm]	1 ~ 10	0.05 ~ 1
理論段数	1000 ~ 5000	10000 ~ 100000

表 3.2: パッキドカラムとキャピラリーカラムの違い

我々の実験は極めて高精度な分析が必要である。上の表の理論段数 n の違いから見ても明らかにキャピラリーカラムはその分離能が非常に優れていることが分かるので、本実験ではキャピラリーカラムを用いることにした。キャピラリーカラムを用いるとパッキドカラムより高分離能が得られることについては他の要因もある。先ほどの Van Deemter の式より A、B、C の値がキャピラリーカラムとパッキドカラムでは違いが見られる。パッキドカラムでは充填剤の隙間をキャリアガスが流れるため、その流れ方はばらばらであり、かつその隙間は一様ではないことから分離成分はピークの形が広がりやすくなる。一方キャピラリーカラムでは流れにそった断面が一様であることから定数 A は無視でき、

$$HETP \simeq \frac{B}{u} + C \cdot u \quad (3.6)$$

と表すことができる。この式を Golay の式という。定数 B は充填カラムでは分離成分の移動相中の拡散係数 (D_g) 及び移動相通路の不規則性に関する定数 (γ) で定義され ($B=2\gamma \cdot D_g$)、キャピラリーカラムでは $\gamma \simeq 1$ ($B=2D_g$) と考えられることから、同じ線速度では B 項もキャピラリーカラムの方が小さくなる。さらに C 項を見ると、パッキドカラムでは固定相内での物質移動についてだけ考えるが、キャピラリーカラムではキャリアガス内及び固定相内の両相内での物質移動を考える。そこで、内径や固定相膜厚が大きくなると HETP を大きくする原因になる。図 3.6 はパッキドカラムとキャピラリーカラムを用いた時の HETP と $u(t)$ との関係を示したものである。

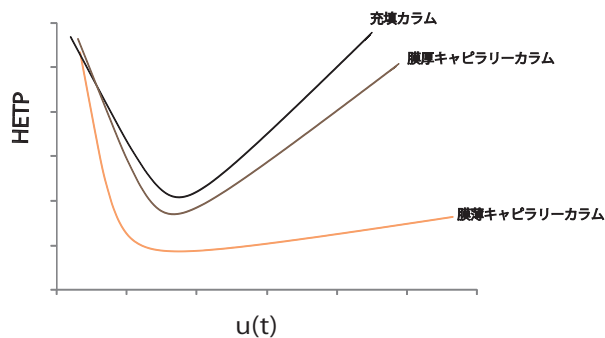


図 3.6: パックドカラムとキャピラリーカラムを用いた時の HETP と $u(t)$ との関係

この図からキャピラリーカラムを用いることで、より小さい HETP が得られることが分かる。但しキャピラリーカラムにおいては固定相の膜厚が小さいほど分離成分の平衡が速やかに達成されるために HETP は小さくなるが、固定相量も少ないので試料負荷容量も小さくなることに注意しなければならない。

3.2.7 キャリアガス

今回の実験で有効的となるキャリアガスとしての条件は以下の 3 つが挙げられる。

- 77K(液体窒素温度) より少し高めの温度で気体として存在できるもの。
- 安定で不揮発性のもの。
- 高純度ガスが市販されているもの。

ここで候補に挙げたのは He、 N_2 、Ar である。これらのガスのうちどれが適しているかを調べる必要がある。

第4章 実験と考察

4.1 キャリアガス選定の実験

温度 T [K]、キャリアガス流量 F [ml/min] をそれぞれ $T=110$ 、 $F=15$ とし、キャリアガスを He、 N_2 、Ar を用い H_2 と HD の混合ガスを分析することにした。図 4.1 ~ 図 4.3 にその結果を載せる。

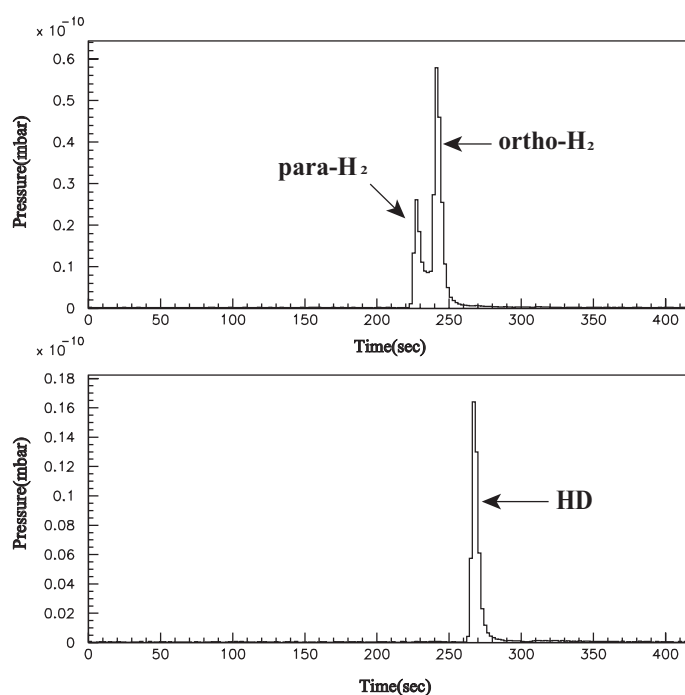


図 4.1: キャリアガス He での実験

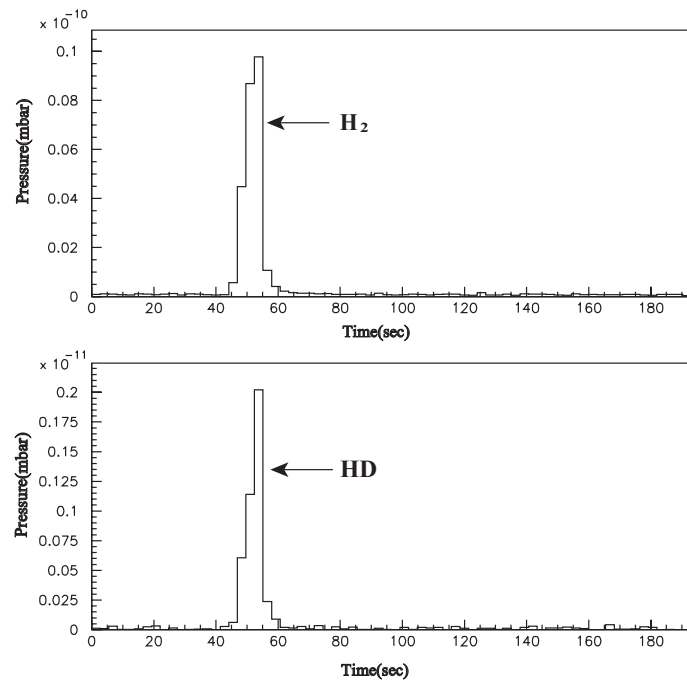


図 4.2: キャリアガス N_2 での実験

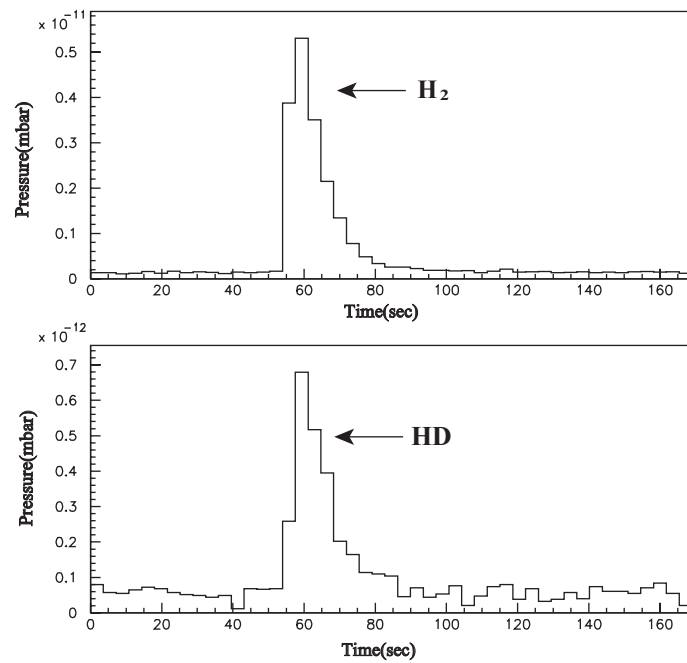


図 4.3: キャリアガス He での実験

4.1.1 実験結果と考察

N₂ と Ar をキャリアガスとして用いた場合、H₂ と HD はほぼ同時に検出されているが、He を用いた場合は H₂ と HD の検出に時間差ができることが分かった。これらの結果から、N₂ と Ar はキャリアガスとして使えないことが分かった。この理由はまだはっきりとは分かっていない。図 4.4 は、Ne、H₂、Ar、N₂ をキャリアガス He で分析したものであるが、Ar、N₂ よりも、H₂ の方が検出時間が早いことが分かる。このデータから、キャリアガスは分析ガスよりも速度が遅ければ不適合となるのかと推測した。

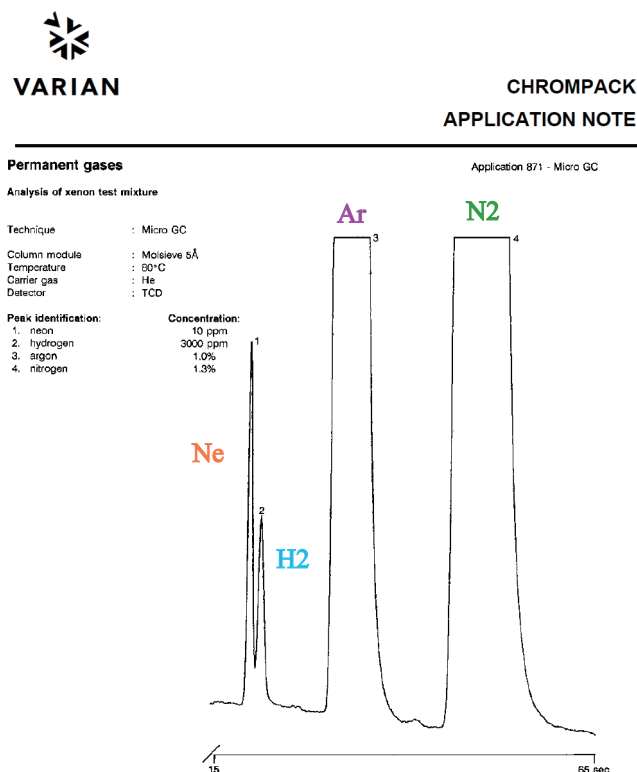


図 4.4: Ne、H₂、Ar、N₂ をキャリアガス He で分析したもの

また、He を用いれば、H₂ が para-H₂ と ortho-H₂ に分離していることが確認できる。これまで、蒸留 HD ガスに対して、H₂ 量 0.01 % が HD の偏極に最適だとしてきた。これは、H₂ が para-H₂ と ortho-H₂ に別れることを確認していないときの話なので、今後は HD の偏極に影響を及ぼす ortho-H₂ の量が 0.01 % が最適な量として話を進める。そしてこの時点で He を用いれば分析ガスを 2 次元的つまり時間と質量で分離させることができるということも分かった。このことで目標達成に一步前進したといえる。

4.2 最適温度 T[K]、最適流量 F[ml/min]

我々は最も良い分離度を示すための最適温度 T[K] と最適キャリアガス流量 F[ml/min] がどのような値なのかまだ分かっていない。そこで温度 T と F をそれぞれ変えながら傾向をつかむことにした。但しシステム上、温度は 105[K] までしか冷やすことができず T=105 を最低温度として、T=105、110、120、130 を初期温度とし、そのそれぞれに対して F=1、3、5、10、20、30 と変えていき測定を行った。実験結果を付録に載せる。

4.2.1 実験結果と考察

T=105 での F=1、3、5 のときと、T=110 での F=1、3 のときは温度が低いせいか、流量が少ないすぎると検出までにかなりの時間を要し、温度が安定している間に分析することができなかつたのでデータから外した。ここで F=10 のときの、T=105 と T=130 の結果を比較してみると T=105 の方が分離具合が良いことが見てとれる。このことから温度が低ければ低いほど分離度が良いのではないかと予測することができるが、それを確認するためには、それぞれのパラメーターにおける分離度を導かなければならない。分離度は para-H₂ と ortho-H₂、ortho-H₂ と HD、HD と D₂ のそれぞれについて求めることにする。

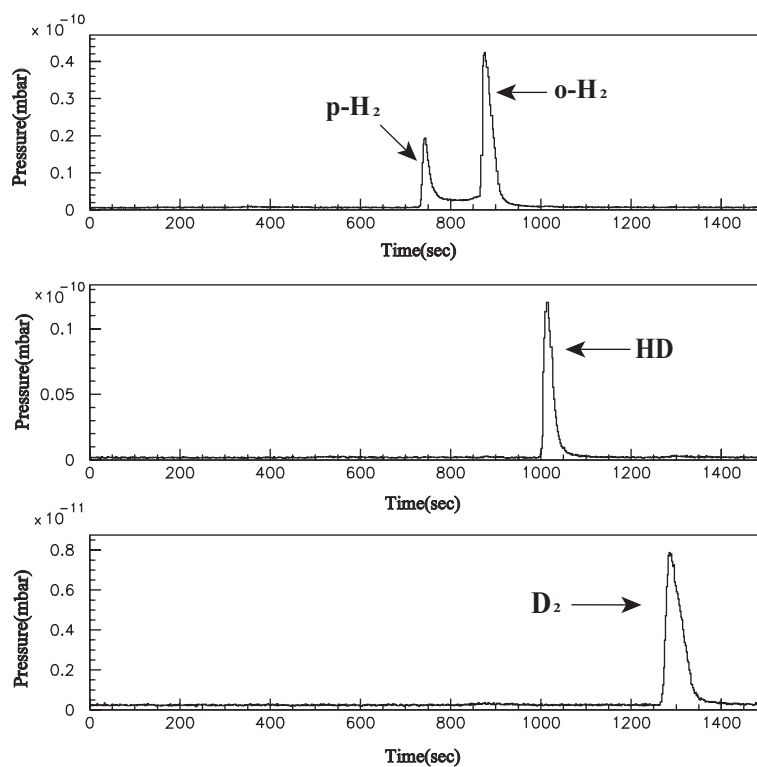


図 4.5: T=105、F=10 のときのガス分析

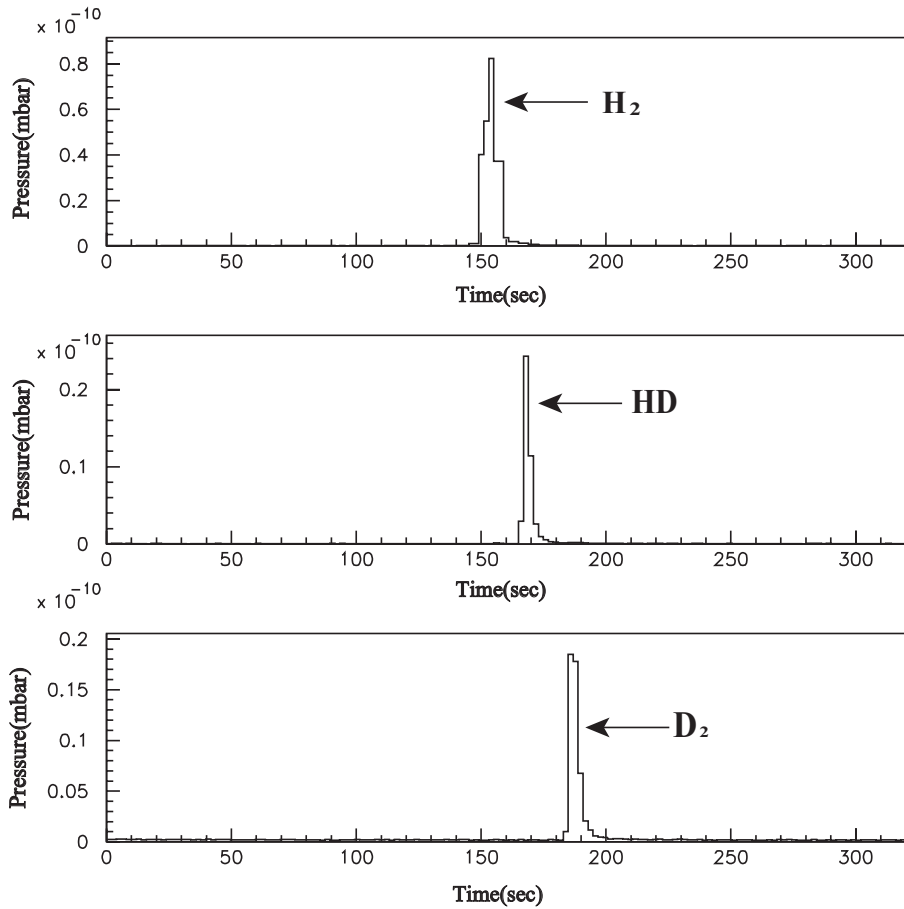


図 4.6: T=130、F=10 のときのガス分析

4.2.2 フィッティング関数と分離度の定義

それぞれのピークの形がガウス分布として近似できるならばガウス関数でピークをフィットして (3.1) 式を使って分離度を求めることができるが、実験結果によると、ピークの形はテールを引いた形になっていることが分かる。例として、T=105、F=5 のときの実験結果を下に載せる。

テールを引く原因としては、分析ガスがカラムに入る際に行き詰まりを起こしていることが挙げられる。先頭でカラムに入ったガスはすぐさまカラムから出るわけではなく、カラム内で相互作用を何回も繰り返しながら進んでいく。そうすると遅れてカラムに入ったガスは、前方が行き詰まっているので、なかなか前に進めないことになる。このことがテールを作っているのではないかと考えられる。このようなピークの場合、以下の関数でフィットすることにした [31]

$$HD \text{ と } D_2 \text{ のフィット関数: } f(t) = \begin{cases} \text{Hexp} \left(\frac{-(t-t_R)^2}{2\sigma_g^2 + \tau(t-t_R)} \right), & 2\sigma_g^2 + \tau(t-t_R) > 0 \\ 0, & 2\sigma_g^2 + \tau(t-t_R) \leq 0 \end{cases} \quad (4.1)$$

H はピークの最大値、 t_R は保持時間、 σ_g はガウシアン標準偏差、 τ は時定数である。

ここで H_2 のフィット関数であるが、 H_2 の場合 p- H_2 と o- H_2 の間の関数も考慮しなければならない。つまり、HD と D_2 の場合は単なる 1 ピークフィットでよいが、 H_2 の場合は同時に 3 ピーク

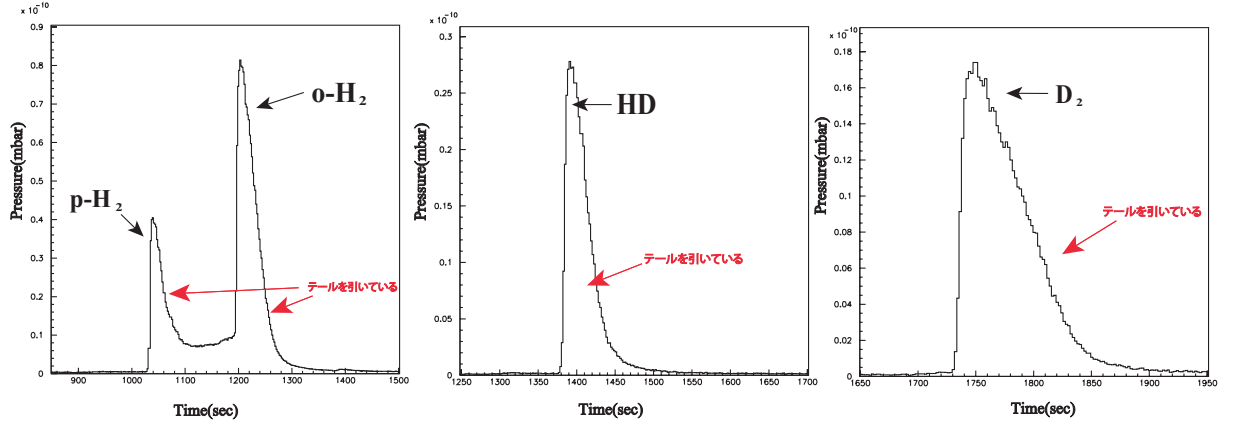


図 4.7: 各ピークはテールを引いていることが分かる

フィットを行わなければならないということである。p-H₂ と o-H₂ の間では ortho-para 変換が起こり、ピークが3つに分れると考えられている [30] p-H₂ と o-H₂ の間は次式を用いることにする [32]

$$f_{o \rightleftharpoons p}(t) = \begin{cases} CH_1 \exp\left(\frac{-(t-t_1)^2}{2\sigma_{g1}^2 + \tau_1(t-t_1)}\right), & 2\sigma_{g1}^2 + \tau_1(t-t_1) > 0 \\ & t \leq t_1 \\ C \frac{(H_1 - H_2)}{(t_1 - t_2)} \times (t - t_1) + CH_1, & t_1 < t < t_2 \\ CH_2 \exp\left(\frac{-(t-t_2)^2}{2\sigma_{g2}^2 + \tau_2(t-t_2)}\right), & 2\sigma_{g2}^2 + \tau_2(t-t_2) > 0 \\ & t_2 \leq t \end{cases} \quad (4.2)$$

C はコンバージョン係数である。p-H₂ と o-H₂ のピークを (4.1) 式で適応したものと、p-H₂ と o-H₂ の間を (4.2) 式で適応したものと、つまり合計3つの関数を足し合わせたもので H₂ をフィットすることにした。またテールの影響を考慮して分離度 R を我々は以下のように定義する。

$$R = \frac{T_{dif}}{\sqrt{\sigma_{p1}^2 + \tau_{p1}^2} + \sqrt{\sigma_{p2}^2 + \tau_{p2}^2}} \quad (4.3)$$

ただし T_{dif} は2つのピークの保持時間の差である。 $\sqrt{\sigma_{p1}^2 + \tau_{p1}^2} + \sqrt{\sigma_{p2}^2 + \tau_{p2}^2}$ は (3.1) 式の $\sigma_{p1} + \sigma_{p2}$ に対応しており、テールの影響を考慮したものとなっている。この値が大きければ大きいほど分離度が良いということになる。

4.2.3 フィッティング

図 4.8 は H_2 を、図 4.9 は HD、 D_2 のフィットしたときの様子を示したものである。これにより得られたデータから、分離度 R を求めることにする。

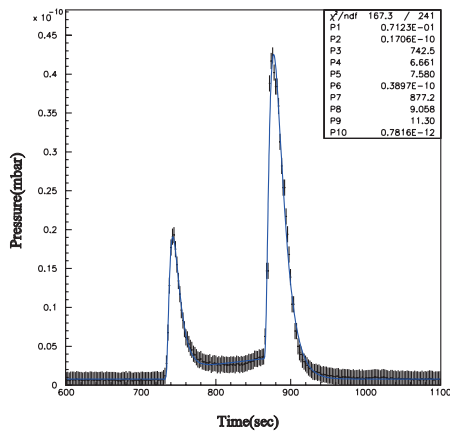


図 4.8: $T=105$ 、 $F=10$ のときのピークを H をフィットしたものである。

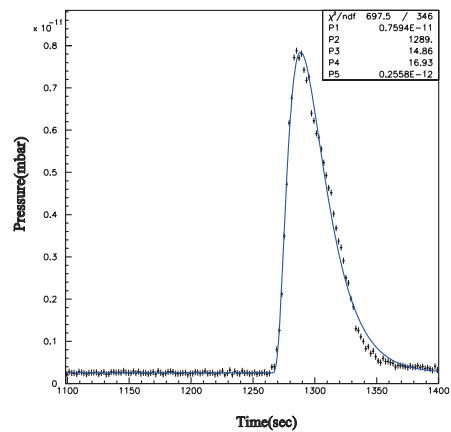
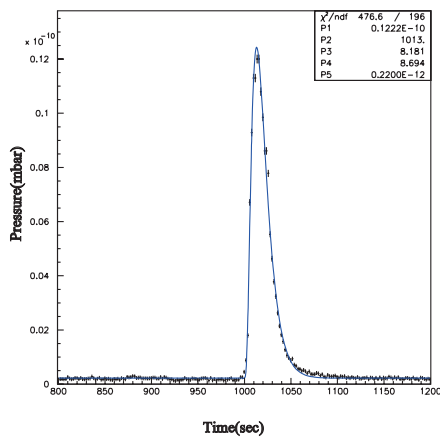


図 4.9: 上図左は $T=105$ 、 $F=10$ のとき HD を、右は $T=105$ 、 $F=10$ のとき D_2 をフィットしたものである。

4.2.4 温度 T、流量 F と分離度 R の関係

図 4.10 ~ 図 4.12 はそれぞれ p-H₂ と o-H₂、o-H₂ と HD、HD と D₂ の温度 T と流量 F を変化させたとき、分離度 R がどのように変わるかを表したものである。

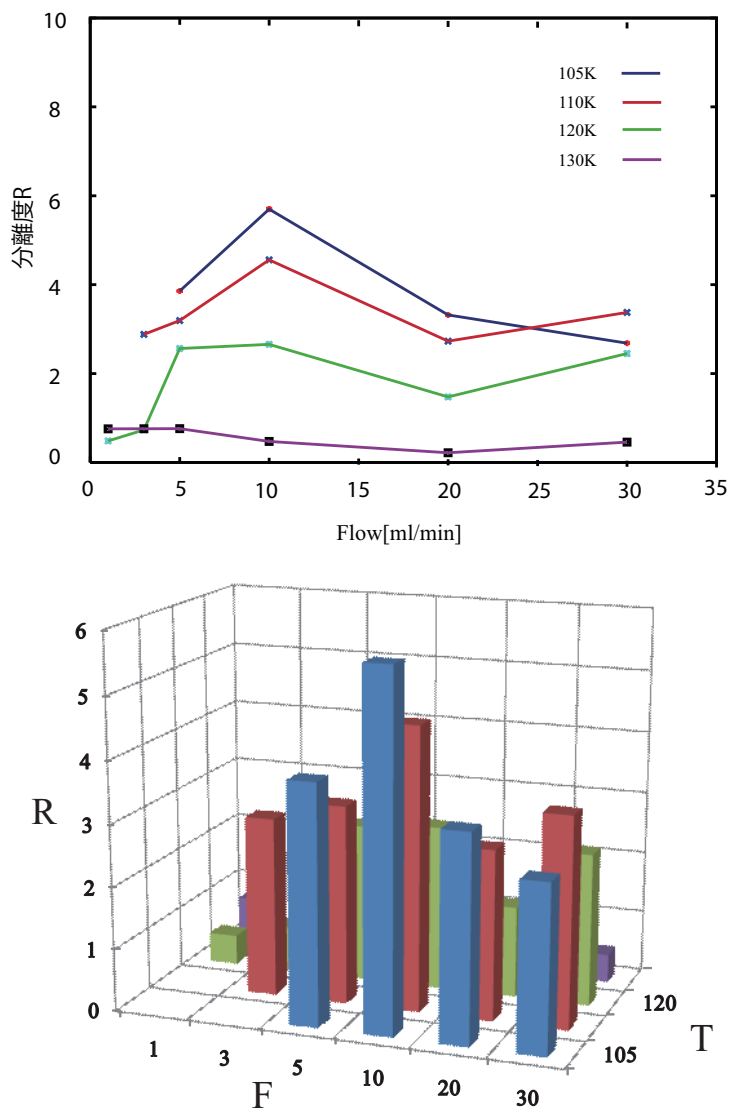


図 4.10: p-H₂ と o-H₂ についての温度 T、流量 F、分離度 R の関係

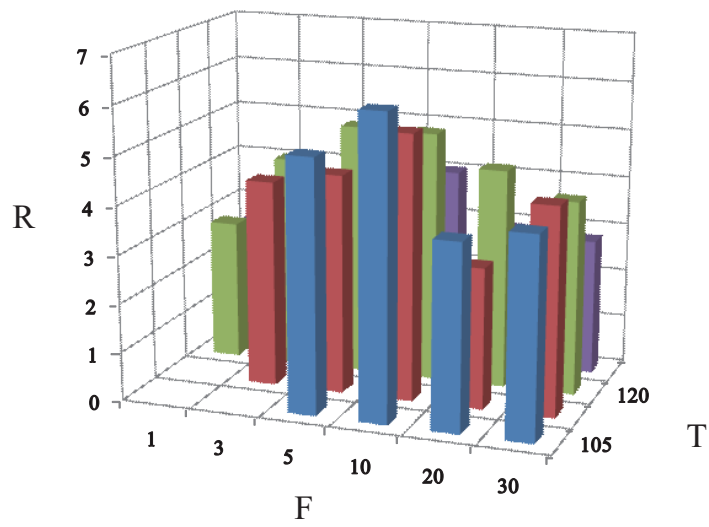
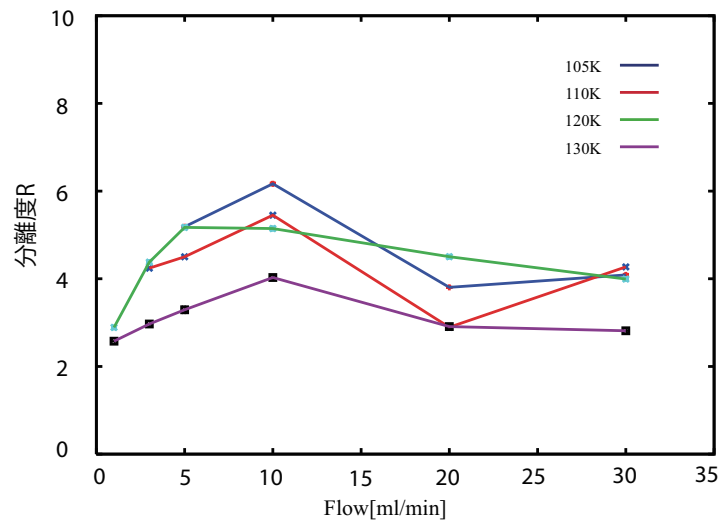


図 4.11: o-H_2 と HD についての温度 T、流量 F、分離度 R の関係

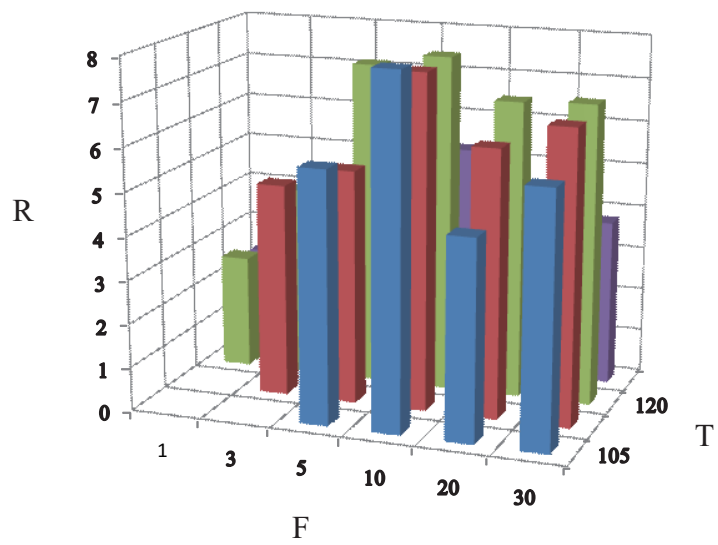
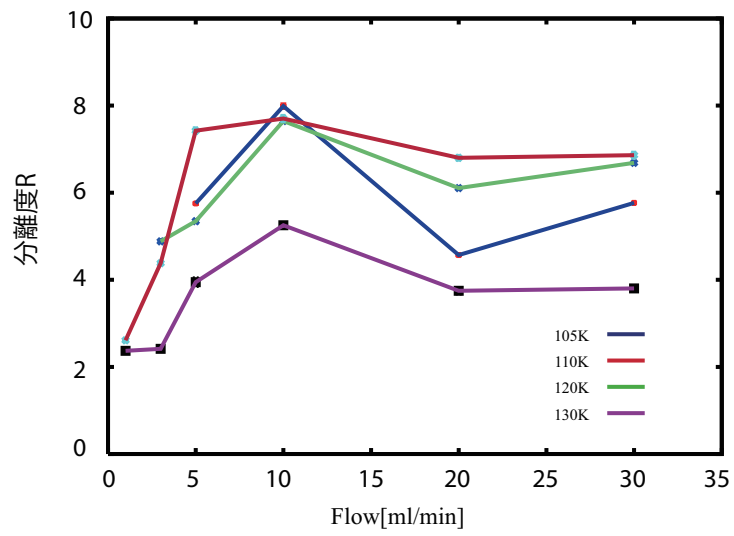


図 4.12: HD と D₂ についての温度 T、流量 F、分離度 R の関係

4.2.5 実験結果と考察

温度と分離度の関係について

予想では温度が低ければ低いほど分離度が良いのではないかと考えたが、その傾向が強いのは p-H₂ と o-H₂ に対する分離具合であり、o-H₂ と HD、HD と D₂ に対しては必ずしもそうではないことが実験結果から分かった。図 [4.9]、図 [4.10] を見るとたとえ温度が低くても、キャリアガスの流量 F によっては、温度が高い方が分離度が良いという場合がある。特に温度が 120[K] のときの各流量に対する分離度の動きは、他に対して不規則である。我々は分離度を (4.3) 式で定義したが、温度が上昇すると、試料が早く流れるので、 σ と τ が小さくなる。温度が低ければ低いほど (4.3) 式の分子である T_{dif} の値は大きくなるが、温度が上がったときに、それにもまして分母の $\sqrt{\sigma_{p1}^2 + \tau_{p1}^2} + \sqrt{\sigma_{p2}^2 + \tau_{p2}^2}$ の値が小さくなれば、結果的に分離度は温度が高い方が良くなるということになる。このような現象が、例えば、図 [4.10] の T=105、T=110 と T=120 の境界で起きているのではないかと考えられる。

各分離度に対しての統計エラーが小さすぎる点について

分析の結果、各分離度において統計エラーの値が小さすぎるということが分かった。このことから他にエラーを左右するものがあるのではないかと考え、系統エラーを求めべく、温度と流量を固定して、同じ実験を 5 回繰り返して、分離度の系統エラーがどのような値になるかを調べることにした。T=110[K]、F=10[ml/min] で実験を行った結果、分離度の平均は系統エラーを考慮して、5.56±1.10 と算出された。この原因の一つとして考えられるのは、注入するガスの量が一定でないことが挙げられる。分析ガスは一旦インジェクタの容器に溜められ、スイッチを切り替えることでカラムに流れていく。次の実験を進める前に、インジェクタ容器内を真空引きしておかなければ前回のガスの残りや、キャリアガスがインジェクタ容器に含まれていることがあると考えられる。この作業を行っていなかったことが、系統エラーが大きくなった要因ではないかと考える。

p-H ₂ とo-H ₂ の分離度							
T \ F	1	3	5	10	20	30	
105			3.85585	5.69885	3.31924	2.68242	
110		2.88115	3.19239	4.55806	2.72826	3.37566	
120	0.48335	0.73265	2.56234	2.65744	1.47346	2.45028	
130	0.75671	0.75871	0.75983	0.47157	0.21852	0.45733	

エラー							
T \ F	1	3	5	10	20	30	
105			0.00458	0.02155	0.00567	0.01099	
110		0.00457	0.00574	0.01277	0.01551	0.01523	
120	0.00406	0.00322	0.01589	0.02751	0.00976	0.01938	
130	0.00413	0.00313	0.00409	0.01038	0.00058	0.01667	

図 4.13: p-H₂ と o-H₂ の分離度と統計エラー

o-H ₂ とHDの分離度						
T \ F	1	3	5	10	20	30
105			5.18777	6.16702	3.80438	4.08815
110		4.24265	4.50063	5.45137	2.89428	4.27091
120	2.89009	4.38005	5.17165	5.14668	4.50372	3.99463
130	2.57604	2.96723	3.29219	4.02719	2.90991	2.81373

エラー						
T \ F	1	3	5	10	20	30
105			0.00711	0.02057	0.00444	0.01395
110		0.00362	0.00543	0.01336	0.01543	0.01639
120	0.00678	0.00999	0.03528	0.03739	0.02261	0.02961
130	0.00554	0.00634	0.06646	0.03883	0.00534	0.02311

図 4.14: o-H₂ と HD の分離度と統計エラー

HDとD ₂ の分離度						
T \ F	1	3	5	10	20	30
105			5.75436	7.98791	4.56776	5.76587
110		4.88143	5.34571	7.64635	6.10663	6.68517
120	2.61035	4.38253	7.42475	7.70225	6.80024	6.86207
130	2.36196	2.41592	3.94642	5.25328	3.74846	3.80228

エラー						
T \ F	1	3	5	10	20	30
105			0.00941	0.04158	0.00686	0.00751
110		0.05321	0.03155	0.01666	0.01316	0.02592
120	0.00204	0.01846	0.05472	0.06067	0.04346	0.05547
130	0.00206	0.00396	0.08661	0.02669	0.06265	0.01608

図 4.15: HD と D₂ の分離度と統計エラー

最適温度、最適流量について

今回行った実験では、図 4.10 ~ 図 4.12 から $T=105[\text{K}]$ 、 $F=10[\text{ml}/\text{min}]$ が最適温度、最適流量といえる。特に、 H_2 に関しては、付録を見ても分かる通り、温度を上げていくと、 $p\text{-H}_2$ と $o\text{-H}_2$ に分離しなくなっていく。さらに温度を下げる事ができたら、 $p\text{-H}_2$ と $o\text{-H}_2$ の分離はさらに良くなるかもしれないが、逆に温度を下げすぎると、ガスが検出器に到着するまでにかなりの時間を要してしまう懸念も残る。しかし、今回開発したガス分析システムを用いれば、ガスを時間と質量の2次元で分離することができたことは大きな功績といえるだろう。

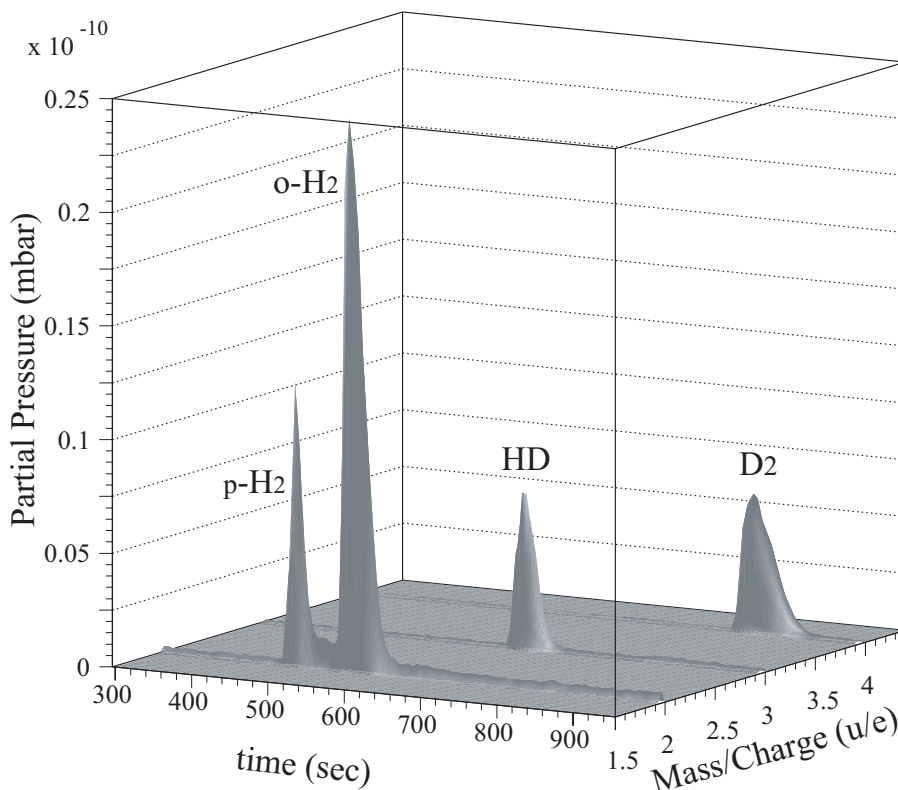


図 4.16: ガス分離を 3 次元的に表したものの。

4.3 蒸留 HD ガスの分析

最適温度、最適流量を見出す実験では、分析ガスが QMS で検出される前に、2つのターボポンプとスクロールポンプで引きながら実験を行っていた。これは QMS の性質上、多量の分析ガスが同時に QMS に到達すると、壊れてしまう危険性があるからである。しかし、今回は蒸留 HD ガス中に含まれるごくわずかな H_2 を測定しようとしているので、2つのポンプで引いてしまうと、ガスが真空側に捨てられてしまい高純度ガスを正確に分析することができなくなってしまう。このガスを分析するには、ガスのすべてを QMS で受け止めて測定することが必要である。そのためには、キャリアガスの流量 F をできるだけ少なくし、分析ガスが一気に QMS に到達するのを避けなければならない。しかし、流量が少ない時に、温度を冷やしすぎると、ピークが広がってしまうので、

流量と温度をうまく調整することが必要である。前回求めたより良い分離度を示す最適温度、最適流量は $T=105$ 、 $F=10$ であった。しかし $F=10$ という流量は QMS が一気に受け止めるには多すぎるということが経験的に分かっているため、残念ながらこのパラメーターを用いることはできない。しかしこれまでの実験データを参考にして、パラメーターを調整しながら実験を繰り返した結果、我々は $T=120$ 、 $F=1$ というパラメーターで目的を達成することができた。

4.3.1 実験結果と考察

図 4.18 は正確に D_2 の量を測定するために、キャリアガスに Ne を用いている。He は D_2 と質量が同じなので、今回は H_2 測定用と D_2 測定用でキャリアガスを分けて実験を行った。また、今回のガスはその成分のほとんどを HD が占めているので、 H_2 と質量が同じ D^+ 、 D_2 と質量が同じ H_2D^+ も検出されていることが分かる。ここで検出されたガスを分析した結果表 4.1 のようになった。ピークをフィットした時に、ピークの高さに対して得られるエラーを statistical エラーと

	割合
p- H_2	$0.034 \pm 0.004(\text{stat.}) \pm 0.0095(\text{syst.}) \%$
o- H_2	$0.056 \pm 0.001(\text{stat.}) \pm 0.0071(\text{syst.}) \%$
HD	$99.847 \pm 0.002(\text{stat.}) \pm 0.017(\text{syst.}) \%$
D_2	$0.063 \pm 0.007(\text{stat.}) \pm 0.010(\text{syst.}) \%$

表 4.1: 蒸留 HD ガスに含まれる各成分の割合

した。またガスを分析した結果、HD に限って、注入したガスの 83 % しか検出されないことが分かった。また p- H_2 と o- H_2 の間の成分を、p- H_2 と o- H_2 のどちらに足し合わせるかということも考慮しなければならない。この 2 つを systematic エラーとした。

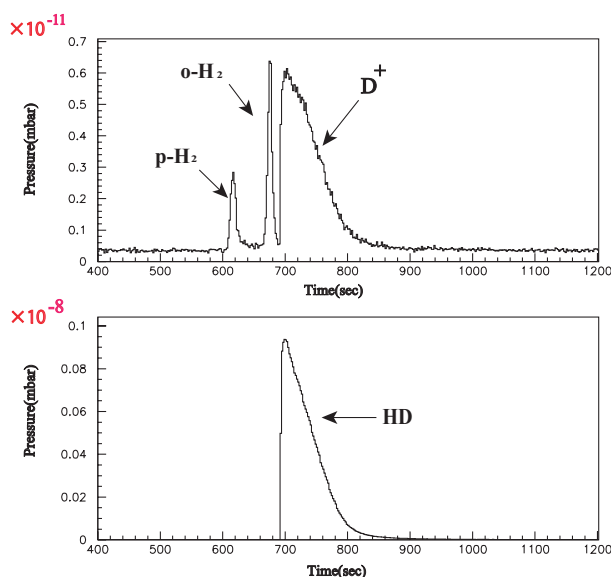


図 4.17: キャリアガス He で H_2 を分析した結果

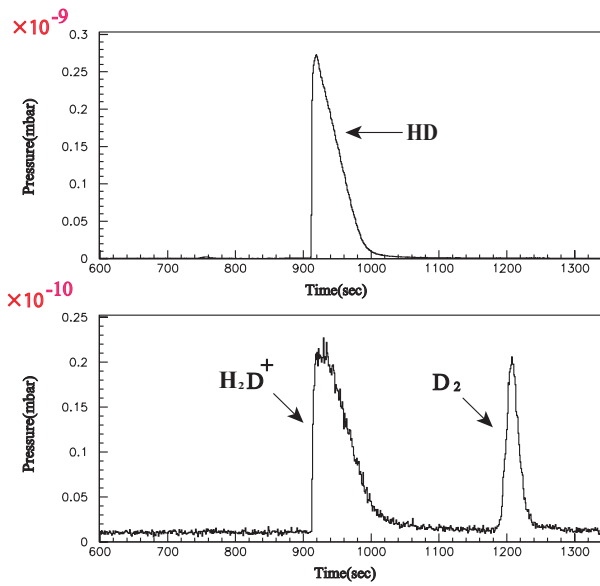


図 4.18: キャリアガス Ne で D₂ を分析した結果

1/10000 の精度で H₂ が観測できるかどうかについて

ここで蒸留器で o-H₂ 濃度 0.01 % が達成された場合、この H₂ ガスを測定できるかどうかについて考える。表 4.1 より、今回分析した o-H₂ の濃度は HD に対して、0.01 % を上回っていたが、仮に o-H₂ の濃度が 0.01 % として H₂ のピークを図 4.17 にプロットすると図 4.19 の赤線のような形となる。ここでバックグラウンドの誤差を見積もると 0.73×10^{-13} であった。赤線であらわされている p-H₂ のピークの高さはバックグラウンドを差し引いて 4.17×10^{-3} であるので、H₂ はバックグラウンドを考慮しても検出されると考える。蒸留器で H₂ 0.01 % が達成されれば、1/10000 の精度で HD ガス中の H₂ を分析することに成功できるであろうと考える。またバックグラウンドの誤差から、さらに高精度でガスを分析することができるのではないと思われる。同じ理由で D₂ に関しても濃度 0.01 % D₂ を測定することができることが分かった (図 4.20)。

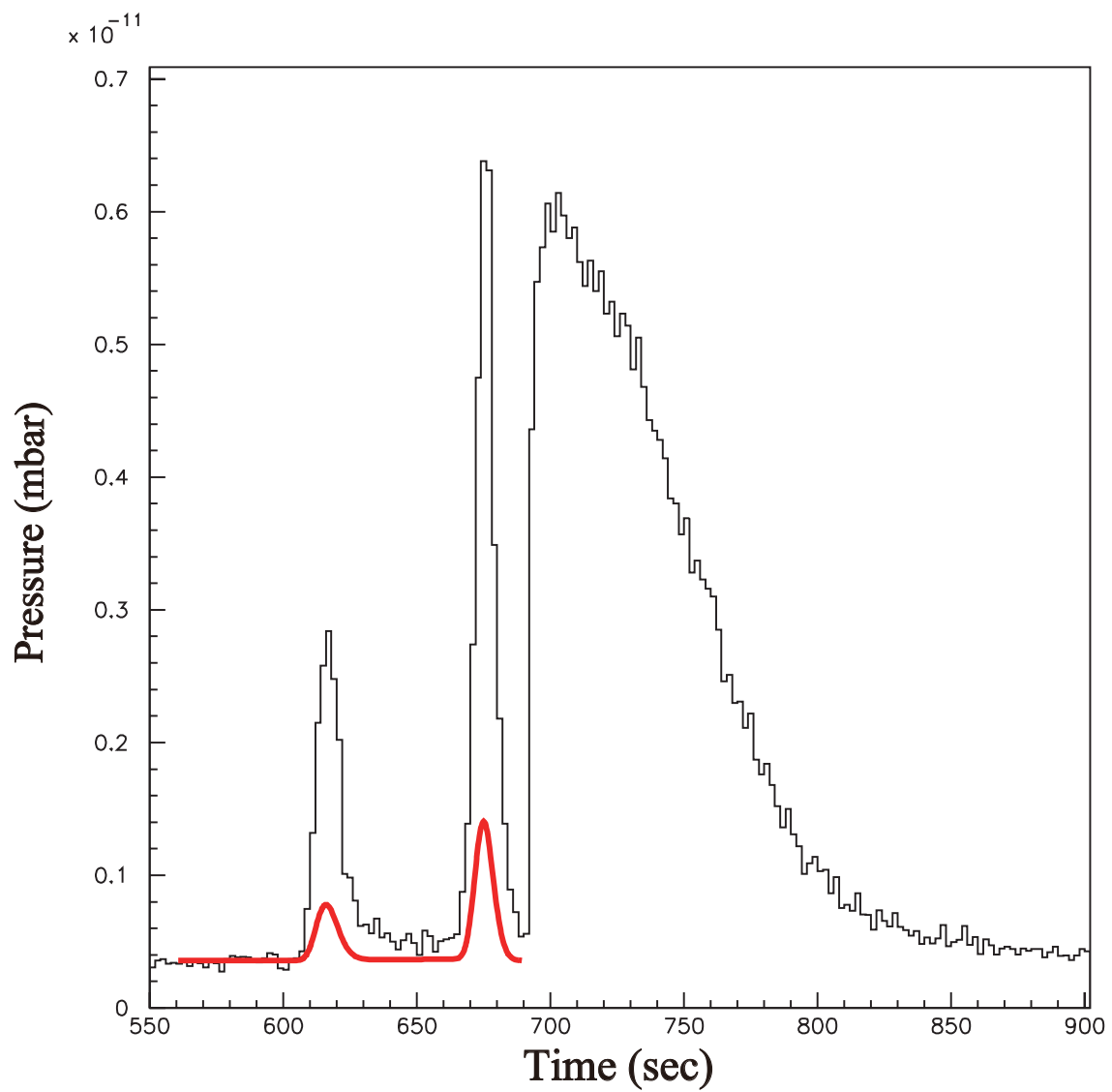


図 4.19: $o\text{-H}_2$ 純度 0.01 % のときのピークの形を赤線で示す。

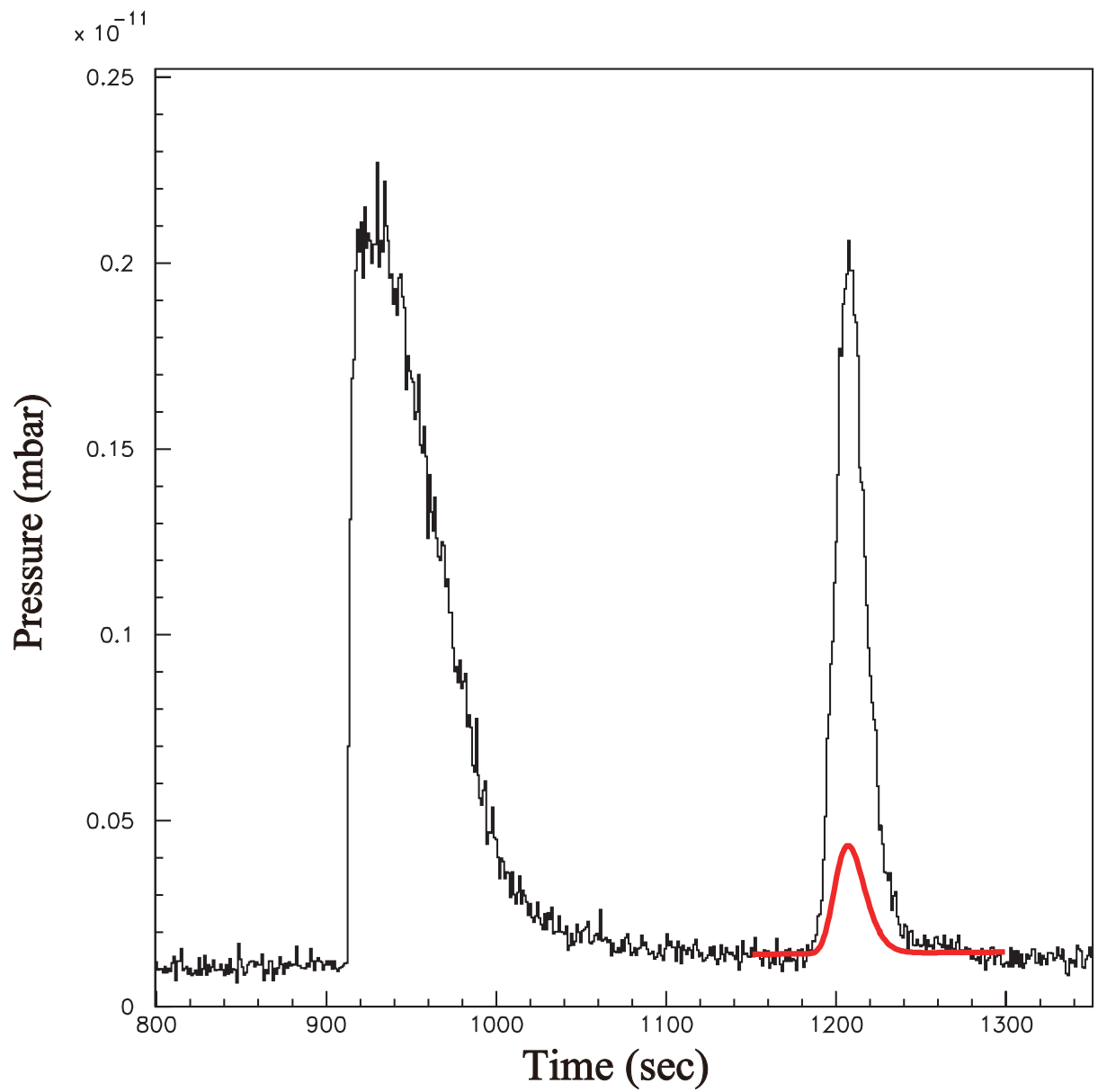


図 4.20: D₂ 純度 0.01 % のときのピークの形を赤線で示す。

第5章 まとめと今後の展望

今回開発した新しいガス分析装置によって、QMS だけでは不可能だったガスの時間分離に成功した。また蒸留 HD ガスにおいて、HD 濃度 99.99 % に対して、 $o\text{-H}_2$ 濃度 0.01 % を分析するという極めて精度の高い分析も可能となった。以前は $o\text{-H}_2$ の濃度を正確に測定することができなかったが、今後は $o\text{-H}_2$ の濃度を調整して効率良く HD を偏極させることができると考える。

付録

Flow[ml/min]

T=105[K]

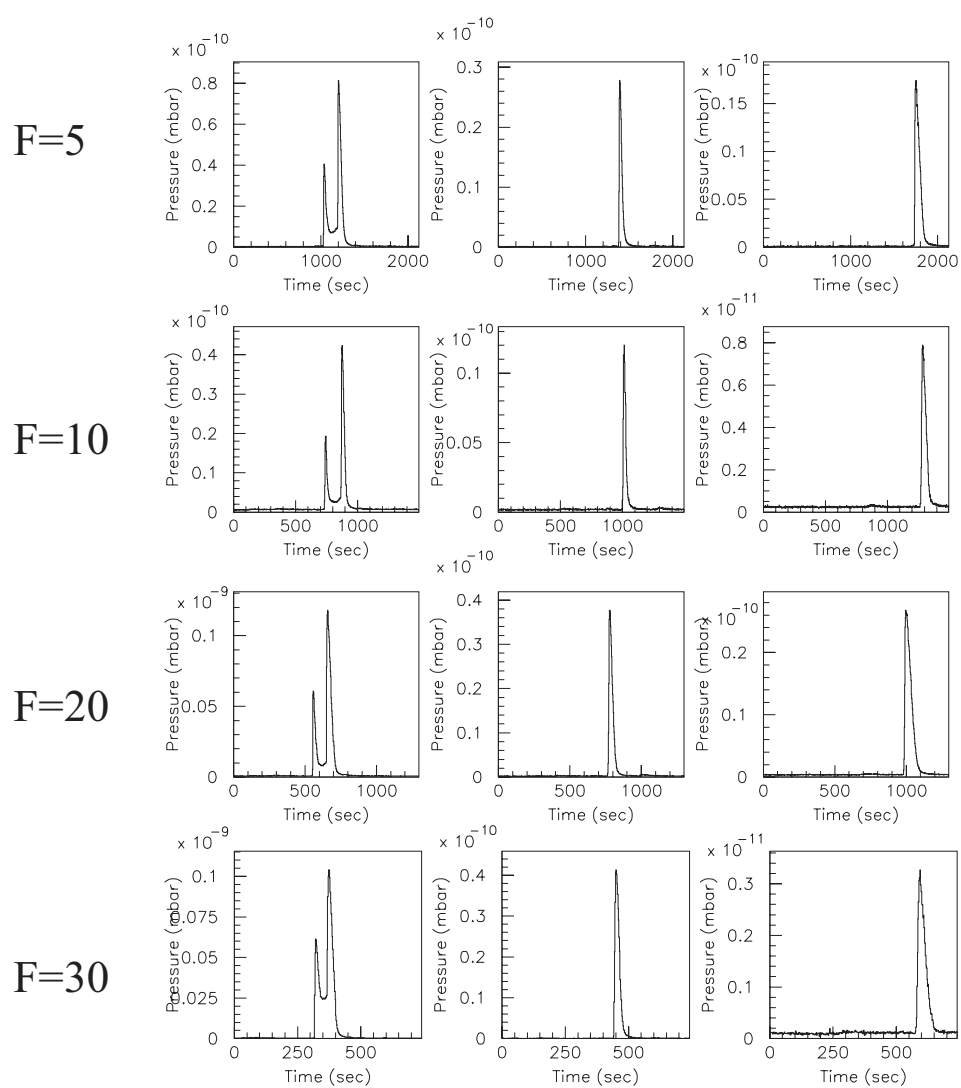


図 5.1: T=105[K] での測定

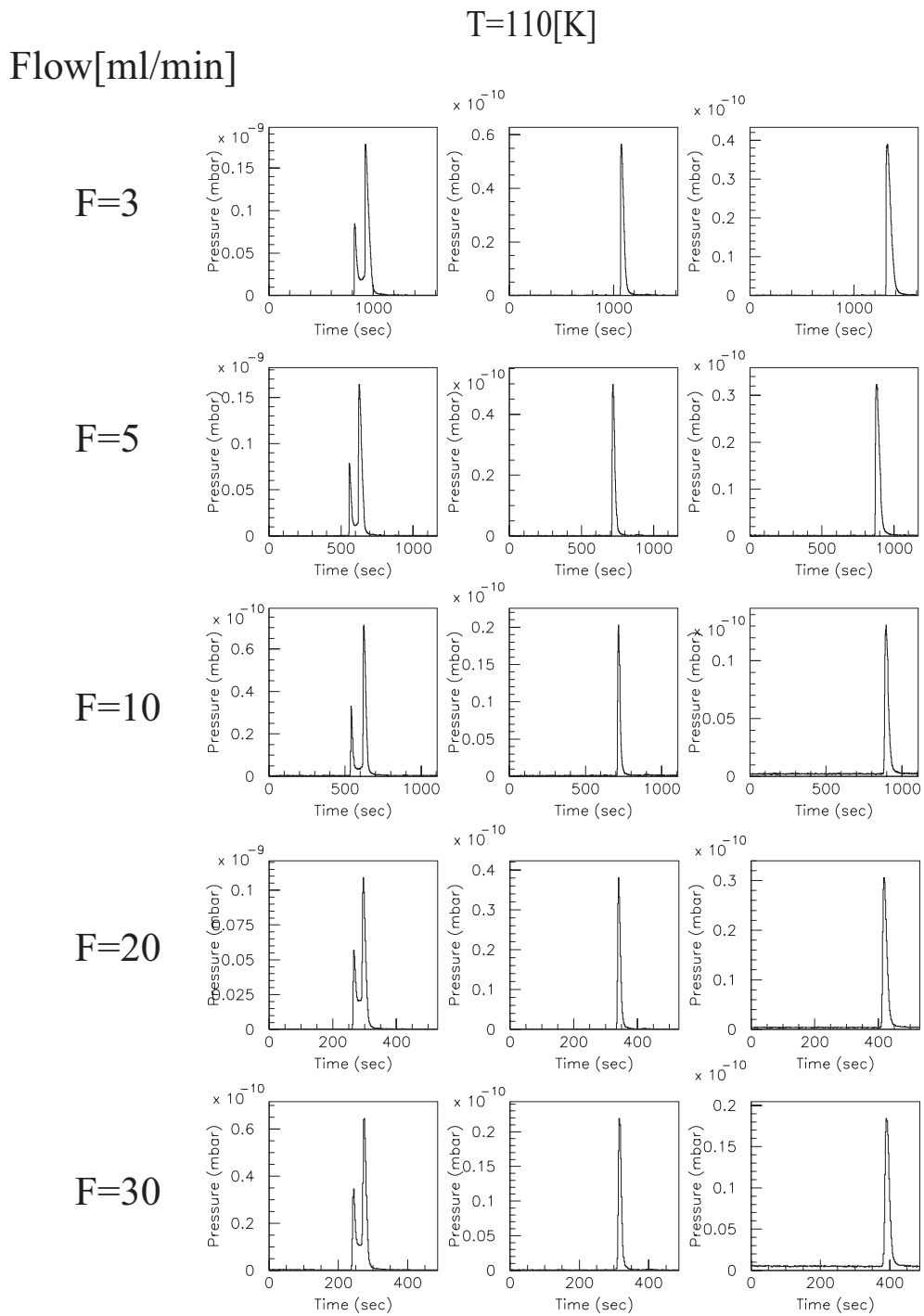


図 5.2: T=110[K] での測定

Flow[ml/min]

T=120[K]

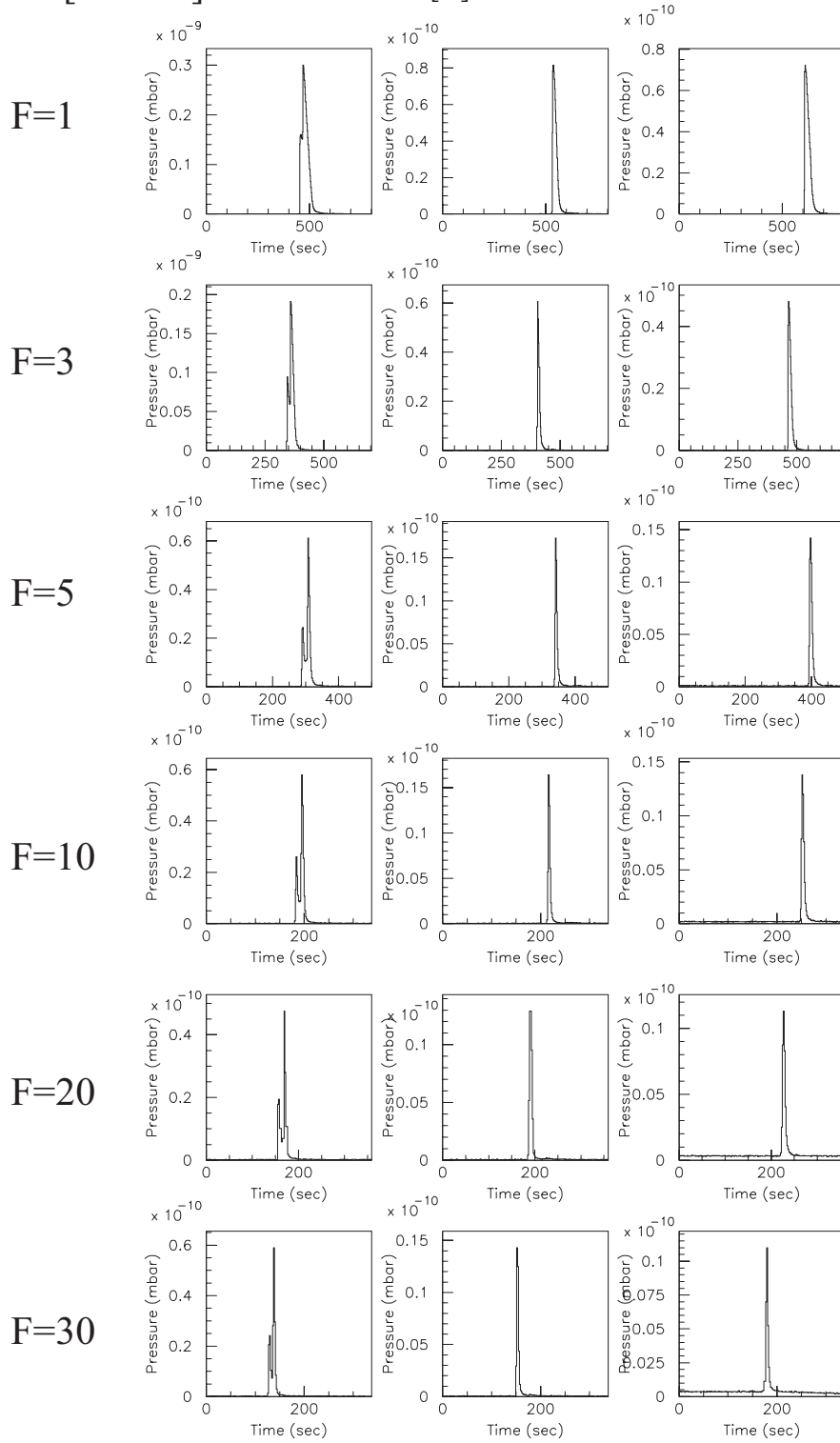


図 5.3: T=120[K] での実験

Flow[ml/min]

T=130[K]

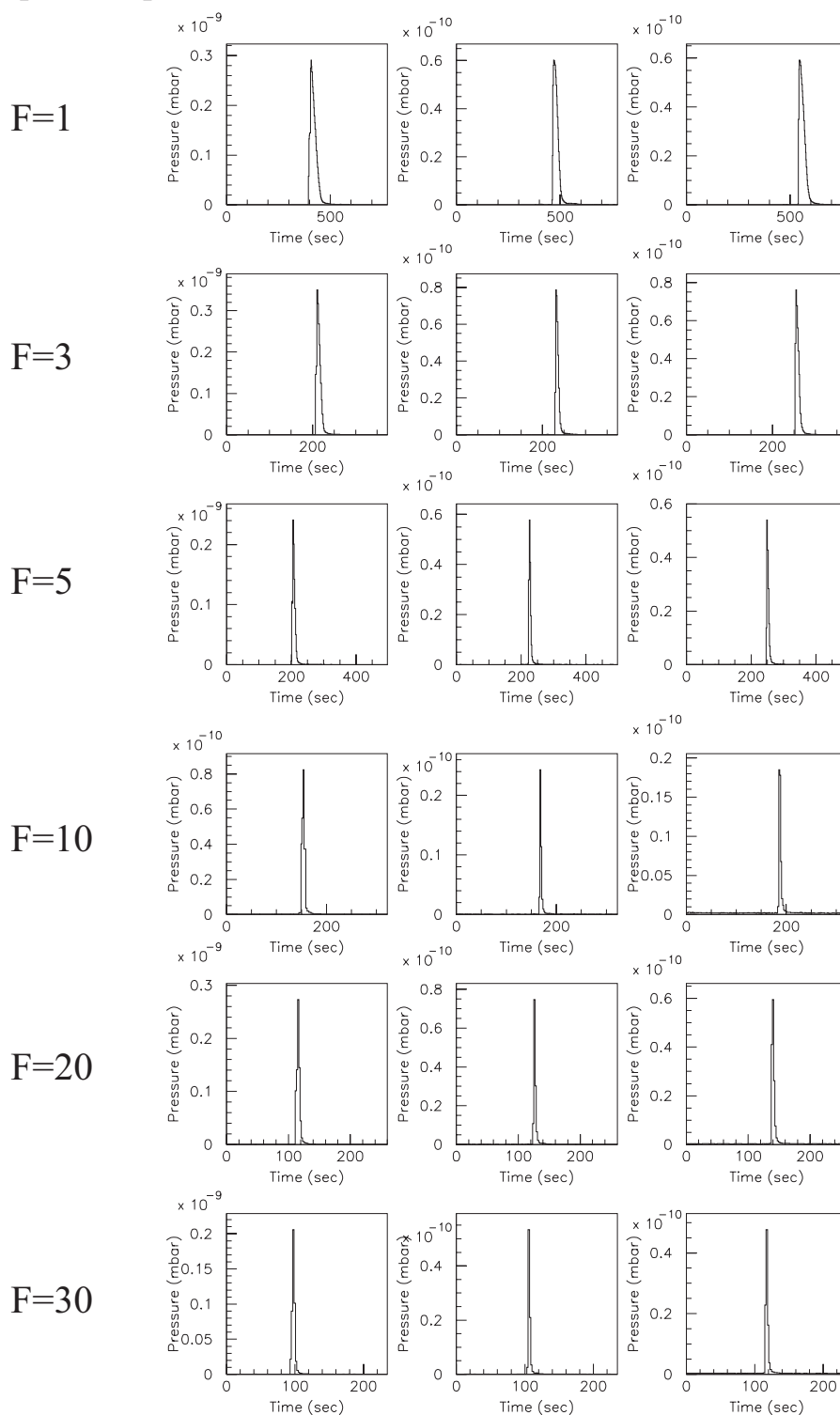


図 5.4: T=130[K] での実験

参考文献

- [1] Mibe T *et al.* 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 182001
- [2] Chang W C *et al.* 2008 *Phys. Lett. B* **658** 209
- [3] Chang W C *et al.* 2010 *Phys. Lett. B* **684** 6
- [4] Chang W C *et al.* 2010 *Phys. Rev. C* **82** 015205
- [5] Ishikawa T *et al.* 2005 *Phys. Lett. B* **608** 215
- [6] Zegers R G T *et al.* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 092001
- [7] Sumihama M *et al.* 2006 *Phys. Rev. C* **73** 035214
- [8] Hicks K *et al.* 2007 *Phys. Rev. C* **76** 042201(R)
- [9] Kohri H *et al.* 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 082003
- [10] Niiyama M *et al.* 2008 *Phys. Rev. C* **78** 035202
- [11] Hicks K *et al.* 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 012501
- [12] Muramatsu N *et al.* 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 012001
- [13] Kohri H *et al.* 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 172001
- [14] Sumihama M *et al.* 2007 *Phys. Lett. B* **657** 32
- [15] Sumihama M *et al.* 2009 *Phys. Rev. C* **80** 052201(R)
- [16] Nakano T *et al.* 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 012002
- [17] Nakano T *et al.* 2009 *Phys. Rev. C* **79** 025210
- [18] M. Fujiwara *et al.*, Photoproduction Experiment with Polarized HD Target at SPring-8,LEPS/RCNP proposal(2003).
- [19] J. Ashman *et al.*, Nuclear Physics B 328 (1989) 1.
- [20] A. Acha *et al.*, Phys. Rev Lett. 98 (2007) 032301.
- [21] A. Airapetian *et al.*, Eur Phys. Rev. Lett. 92 (2004) 012005.
- [22] A. Airapetian *et al.*, Eur. Phys. J. C29 (2003) 171[arXiv:hep-ex/0302012].
- [23] T. Mibe, W. C. Chang, T. Nakano *et al.*, Phys. Rev. Lett. 95 (2005) 182001

- [24] H. Kohri, M. Fujiwara et al., RCNP Annual Report (2005) 1.2.2.
- [25] A.Honig, Phys. Rev. Lett. 19 (1967) 1009
- [26] Myer Bloom Physica 23(1957) 767.
- [27] Morisaki 森崎 知治 大阪大学修士論文 (2009)
- [28] Wang 王 素音 台湾高雄大学修士論文 (2009)
- [29] Ueda 上田 圭祐 大阪大学修士論文 (2010)
- [30] C. S. Whisnant, Rev. Sci. Inst, to be published (2011)
- [31] Kevin Lan and James W.Jorgenson, J.Chromatography A,915 (2001) 1.
- [32] T.Ohta et al., arXiv:1101.5562v1 (2011)

謝辞

一から私の研究をサポートして頂いた大阪大学核物理研究センター (RCNP)・郡英輝助教授に感謝いたします。私のスキルアップを常に考えてくれ、なかなか前に進めなかった私を温かく見守って頂いたことは一生忘れません。また、実験全般を手伝って頂き、あらゆる面でサポートして頂いた RCNP・D3 太田岳史さんへ感謝の意を表したく思っております。また基礎的な質問にも毎回答えてくれた RCNP・與曾井優准教授、様々な知識を日々伝授してもらい、私の個性を誰よりも尊重してくれた RCNP・藤原守準教授、そして専門的な知識を教えてくれた神戸常盤大学・田中正義教授、宇津呂雅彦京都大学名誉教授、そして関係者の皆さん本当にこの2年間お世話になりました。この恩返しは必ずします。みなさん待っていてください。