

温度約 1-10K の領域における重水素化水素 HD プローブの NMR 実験及び 固体 HD 薄膜ターゲットの試作(NMR 実験の最終報告)

宇津呂 雄彦, 中井 光男^A, 郡 英輝, 太田 岳史^B, 今野 巧^C, 井頭 麻子^D, 藤原 守

大阪大学核物理研究センター,^A 大阪大学レーザー科学研究所,^B 東京大学医学部附属病院放射線科,

^C 大阪大学大学院理学研究科, ^D 明治学院大学法学部

研究目的

核偏極 DT レーザー核融合[1,2]の実現可能性追求の1つのアプローチとして、T 崩壊熱の負荷下で固体 DT を偏極させる道筋を探る実験を行う。即ち熱伝導性能が優れた単結晶 HD[3]に T 崩壊熱を与えた際の想定温度である約 1~10K の領域における H 及び D の効率的核偏極法の開発の試みを次のように段階的に行う。(1) まず比較対象として固体 HD を模擬した極低温天然ゴムの H-NMR 実験、(2)次に新たな比較対象としての KelF 壁プローブの F-NMR、及び(3)最終目的として強磁性錯体により偏極させた極低温 HD プローブの H-NMR 実験、の3段階を順次行い、手法の有効性並びに問題点を明らかにする。更に、レーザー照射可能な無背壁固体 HD 薄膜ターゲット試料を試作する。

研究項目と今年度の成果

1) 複室式プローブセルによる NMR 実験:

本研究の着想点は、約 1~10K の領域における H の効率的核偏極法として水素吸着性強磁性錯体を利用すること及び偏極測定 NMR に HD 吸着活性炭を用いることである。一方 D の偏極は RF 法[4]が可能である。2018 年の NMR 測定に用いた複室式プローブの構成を図 1 に示す。

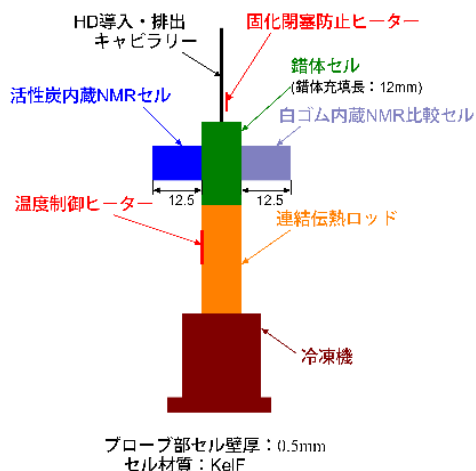


図 1. 複室式 HD 偏極及び NMR 測定プローブ
(Multilocular probe cell; 図中寸法単位は mm)

図 1 には描くのを省略したが、左右の各枝室の付け根部分にはそれぞれの枝室の内蔵試料に胴体内の磁性錯体粉末 $\text{Ni}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]_2$ が混入しないよう隔離するための活性炭膜を挿入した。活性炭膜の占有厚

さは約 1.5 mm である。

図 1 のセルを用いて行った初期段階の NMR 実験で明らかになった問題は、NMR 測定中は雑音防止のため冷凍機短時間停止の必要があり、H29 成果報告書に書いたように、これによる温度乱れが安定した NMR 測定を困難にすることである。その解決策は、HD 吸着用活性炭ペレットをプローブに内蔵することにより安定した NMR 測定が実現した。

図 1 の複室式セルを用いて H_2 凝縮温度下の天然白ゴムの H-NMR 実験から得られたピーク強度の結果は最後の図 4 に比較のために示してある。ピーク強度というのは、測定結果として得られた振幅及び位相の周波数に対するデータを次式の吸収及び分散でフィッティングして得た NMR absorption A_R に共鳴幅 Δ_R を乗じてピーク強度 $I_R = A_R \Delta_R$ を計算し各 RUN に対してプロットする。

Fitting formulae to NMR absorption and dispersion

$$R = R_{BG} + \frac{A_R}{1 + \{(X - X_{R0})/\Delta_R\}^2}; \quad \varphi = \varphi_{BG} + \frac{A_\varphi \cdot \{(X - X_{\varphi0})/\Delta_\varphi\}}{1 + \{(X - X_{\varphi0})/\Delta_\varphi\}^2}.$$

(1a) 及び(1b)

これらの NMR ピーク強度が NMR 共鳴点に関する結果であることを常に確認するようにした。その方法は、電磁石電流値 I (A) を NMR 共鳴周波数 f_{NMR} (MHz) で除したパラメータ値 m (A/MHz) が妥当な値であることを確認することである。

後に図 4 に示す複室式プローブセルに内蔵の天然白ゴムの H-NMR 実験の結果は $f_{\text{NMR}} = 9.923\text{--}9.947$ MHz に対して $m = 0.18958 \pm 0.00018$ [A/MHz] の狭い帯域内にあった。図 4 の H_2 凝縮温度下の天然白ゴムから温度効果により冷凍機運転開始後約 100 分の時点で室温のピーク強度の約 3 倍に増大していることが判る。

2) 単筒型 KelF プローブセルによる F-NMR 実験:

図 1 の NMR 比較セルの必要性は、冷凍機運転によるセル温度低下の効果と磁性錯体による効果とを識別するためにセル温度低下の効果の比較対象が必要なことである。これには必ずしも H-NMR でなくとも他の核種でもよいのであり、この着想から複室式セルを用いてセル壁 KelF の F-NMR を測定してみた。その結果、昨年度の成果報告書の Table 1 に示したように F-NMR がセル温度低下の効果を現わし、比較測定に使えることが判った。

そこで磁性錯体と活性炭ペレットを二階建てにしその間に隔離用の活性炭膜を挟んだ図 2 の単筒型

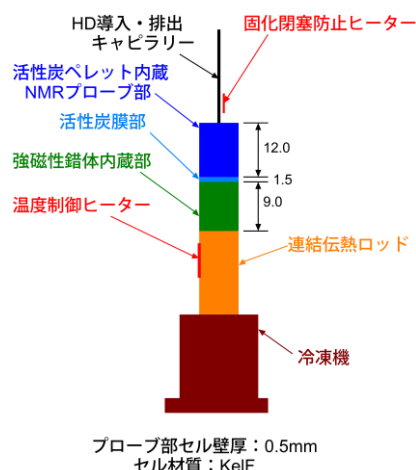


図 2. 単筒型 HD 偏極及び NMR 測定プローブ
(Single tube probe cell; 図中寸法単位は mm)

プローブセルに図 1 のセルから簡単化した。この単筒型プローブセルを用いてまず KelF 壁の F-NMR 測定を行った。フィッティングの結果は NMR 共鳴周波数 $f_{\text{NMR}} = 9.793\text{--}9.824$ MHz に対して $m = 0.20113 \pm 0.00060$ [A/MHz] と全て狭い幅に入っていた。

温度効果によるピーク強度の増大を見ると、水素凝縮なしに冷凍機運転開始後約 100 分で室温のピーク強度の約 4 倍に増大し、約 200 分では約 8 倍になり、プローブセルが小型簡単化されたため H_2 凝縮下の複室式プローブセルよりも大幅に早くプローブセル温度が降下することを示した。

3) 単筒型プローブ活性炭吸着 HD の H-NMR 実験:

そこでいよいよ最終目的の強磁性錯体と同一単筒セル内に内蔵の活性炭ペレットに吸着された HD の H-NMR 実験を開始した。NMR 測定の前半は比較のための KelF 壁 F-NMR 測定を行い、HD がある程度活性炭ペレットに吸着後は H-NMR 測定に切り替える計画で進めた。その経過を図 3 に示す。

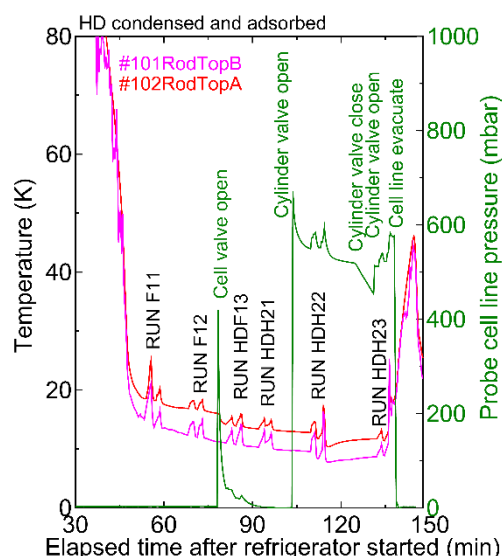


図 3. 伝熱ロッド温度と HD ガス圧の冷凍機運転時間に対する経過 (NMR 測定中は冷凍機短時間停止)

まず各 NMR 測定の確認として、室温と RUN

F11-RUN HDF13 の F-NMR の $m = 0.20027 \pm 0.00011$ [A/MHz] の狭い幅に入っており、NMR 共鳴周波数 f_{NMR} は冷凍機運転では 9.801-9.811 MHz、室温では 9.701-9.704 MHz であった。次に H-NMR の確認は NMR 共鳴周波数 f_{NMR} が 9.798-9.823 MHz に対して $m = 0.18936 \pm 0.00020$ [A/MHz] の幅に入った。2つの m の比は 2 核種の核磁気モーメントの略逆比である。

これらの NMR 共鳴に対するフィッティングの結果を天然白ゴムの結果と比較して図 4 に示す。

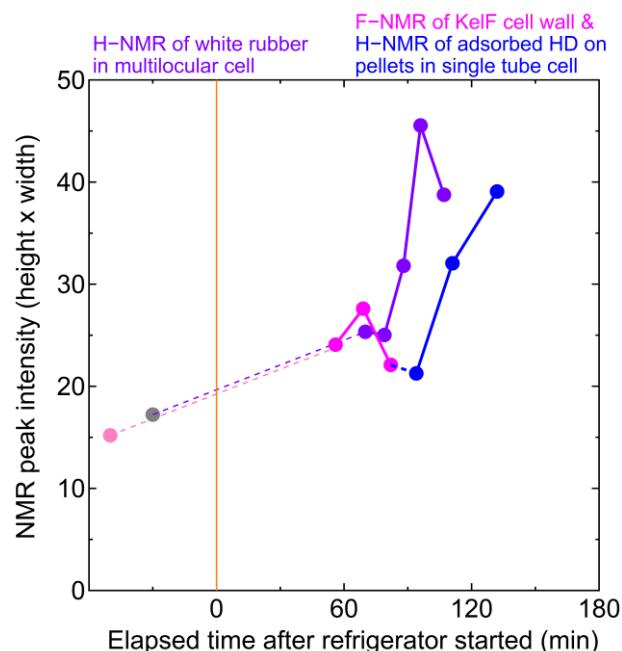


図 4. F-NMR 及び H-NMR ピーク強度の時間経過を天然ゴム H-NMR のピーク強度と比較

図 4 で 80-90 分の所のピーク強度が低下しているのは室温 HD ガス導入による温度上昇の影響である。

図 3 に示したように、残念ながら RUN HDH23 の測定終了直後にセルの気密度が損なわれ実験続行を断念した。図 4 で示された範囲で判断すれば、温度効果以外に特に錯体による効果は認められないと考えている。内部磁場がより大きい強磁性錯体で同様の実験を進めることが有意義であると推論される。

R2 年度の計画

R2 年度には、残る課題である改造型気相セル 2 号による無背壁固体 HD 薄膜ターゲットの試作をするるとともに、最終年度の取り纏めを行う予定である。

本研究は大阪大学レーザー科学研究所の共同研究(2019B2-UTSURO)のもとに実施された。また、関西熱化学株式会社より活性炭ペレットの提供を受けたことを記して謝意を表する。

REFERENCES

- [1] P.C. Souers and P.A. Fedders: Phys. Rev. B41 (1990) 8643.
- [2] H. Paetz gen Schieck: Eur. Phys. J. 44 (2010) 321.
- [3] M. Utsuro et al.: Physica B 418 (2013) 36.
- [4] C.M. Bade: Ph.D. Thesis, College of Arts&Sci., Ohio Univ., March 2006.