



NMR 装置用ヘリウム再凝縮装置の開発

Development of Helium Recycling System for NMR

高橋 洋一郎*

TAKAHASHI Yoichiro

1. はじめに

ヘリウム再凝縮装置は、蒸発した液体ヘリウム (LHe) を再凝縮 (再液化) する装置である。本来は蒸発に伴い大気に放散されてしまうヘリウムガス (GHe) を回収し、再凝縮装置内部で再凝縮することで、蒸発に伴う GHe の放散を最小限に抑えることができる。当社では再凝縮能力が 1 日あたり 1L~18L (液体換算) のラインナップを取り揃えている。本装置は LHe を利用する装置の多くに後付けで搭載が可能であり、ユーザーの実験や装置運用時におけるヘリウム管理負担の低減を実現している。また、これまでに数百台の販売実績を有し、多くの研究機関や産業分野で高い信頼を得ている。

核磁気共鳴(NMR)装置は物質の分子構造や分子の運動状態を調べることが可能で、物性物理、高分子化学、生物化学、医学等広範囲の分野で利用されており、国内だけでも数千台が稼働している。NMR 装置では強力な磁場を発生させるために超伝導コイルが使用されており、超伝導状態を維持するために LHe が使用されている。近年 LHe の需要の増加と供給不安による深刻なヘリウム不足や価格高騰が続いている。そのような LHe 供給リスクに対応するため、機械式冷凍機を用いたヘリウム再凝縮装置への需要が高まっている。

国内では主に大手 2 社の NMR 装置が使用されており、そのうちの 1 社がブルカー・ジャパンである。当社はブルカー・ジャパンと共同で、NMR 用ヘリウム再凝縮装置の製品化に取り組んでいる。一方、もう 1 社でも同様の製品が発売されている。

新たに開発した NMR 用ヘリウム再凝縮装置については、ブルカー・ジャパンとの実証評価試験を経て、実用化に十分な性能を有していることを確認でき、また同社からも推奨を得ることができた。

本稿ではこの NMR 用ヘリウム再凝縮装置の概要とその特長について紹介する。

2. 装置概要

NMR 用ヘリウム再凝縮装置は NMR 装置の特性を考慮し、以下 2 つの課題に配慮した設計が必要であった。

1 つ目は機械振動の影響排除である。NMR 装置は外部からの機械振動が測定ノイズとして大きな影響を及ぼすため、これを抑える設計が必要である。2 つ目は LHe 槽圧力の安定性である。NMR 装置の内部で圧力変動が生じると磁場が揺らぎ、スペクトルに影響が生じる可能性があるため LHe 槽の内圧を一定に保つ制御が求められる。

図 1 に NMR 装置とヘリウム再凝縮装置の主要構成を、表 1 に NMR 用ヘリウム再凝縮装置の仕様を示す。NMR 装置は超伝導コイルが設置される LHe 槽と、侵入熱低減を目的とした液体窒素(LN₂)槽を有している。LHe 槽及び LN₂ 槽には圧力上昇を防止する逆止弁が搭載されており、再凝縮装置が設置され

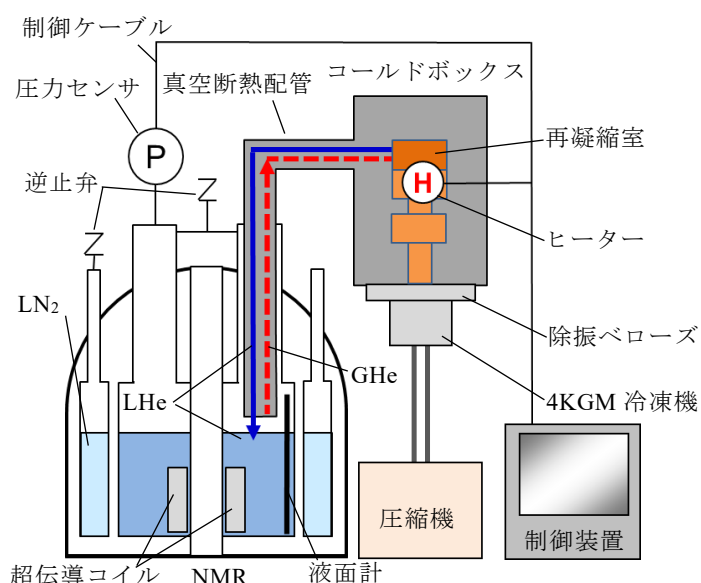


図 1 NMR 装置とヘリウム再凝縮装置の主要構成

* 技術開発ユニット つくば開発センター 低温機器技術部 技術課

表 1 装置仕様

再凝縮能力(仕様値)	1 L/day(LHe 換算)
コールドボックス寸法	Φ 190×H 660
制御ユニット寸法	W 321×H 295×D 330
圧縮機寸法	W 450×H 485×D 591
消費電力	6.5/7.5 kW (50/60Hz)
メンテナンス周期	10000 時間毎

ていない場合、通常運転時は蒸発ガスが逆止弁を通じて大気中へ放出される。LHe 槽には LHe の液面計が組み込まれており、液面が低下すると LHe が充填される。

ヘリウム再凝縮装置は主にコールドボックス、圧縮機、制御装置から構成されている。コールドボックスは、再凝縮に必要な寒冷を発生させる 4KGM 冷凍機(GM:Gifford McMahon)と、再凝縮室、およびヒーターが組み込まれている。さらに、再凝縮室と NMR とを連通させる真空断熱配管が取り付けられ、NMR のヘリウム槽と通じるポートに挿入される。コールドボックスと 4KGM 冷凍機との間には、除振ベローズを設置し 4KGM 冷凍機内部の摺動部品による機械振動を可能な限り遮る構造とした。圧縮機は、4KGM 冷凍機の冷媒ガスの循環に用いられ、4KGM 冷凍機と 2 本のフレキシブルチューブで接続されている。

制御装置は 4KGM 冷凍機および圧縮機の起動停止を操作すると共に、NMR 装置の上部に取り付けられた圧力センサの信号により再凝縮室に搭載されたヒーターの動作を制御し LHe 槽の圧力を一定に保持している。

蒸発した LHe を再凝縮する仕組みは、蒸発により発生した GHe が真空断熱配管を上昇し、再凝縮室へ流入する。再凝縮室内は 4KGM 冷凍機によりヘリウムの液化温度に保持されており、再凝縮により LHe が生成される。LHe は再び真空断熱配管を通り、LHe 槽に戻り液面が保持される。既に述べた通り、再凝縮室内のヒーターにより LHe 槽の内圧を一定に制御しているが、この制御により再凝縮室に上昇する GHe 量と再凝縮する LHe 量とがバランスし、LHe の液面も一定に保持される。制御圧力は逆止弁からガスが放出されず、かつ NMR 装置内が負圧とならないよう設定値を決定している。これらの運用により GHe の外部への放散がないゼロボイルオフ運転を可能としている。

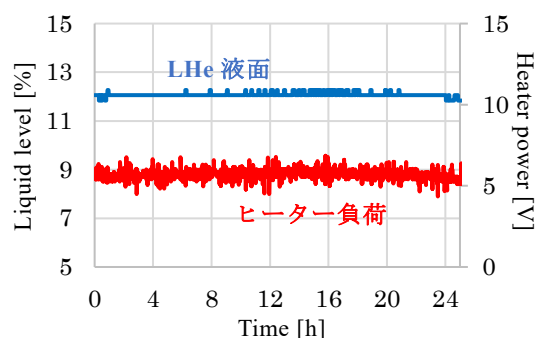


図 2 再凝縮装置液面保持運転

3. ヘリウム再凝縮装置の運転評価

3.1 社内設備での評価

図 2 にヘリウム再凝縮装置のゼロボイルオフ運転における LHe 液面とヒーター負荷の挙動を示す。図 2 では、NMR 装置での実証評価に先立ち、社内設備の低蒸発クライオスタットを使用して運転特性を評価している。クライオスタット内のヘリウム蒸発量は実測により 1 日あたり約 0.54L であり、これは一般的な NMR 装置の蒸発ガス量と同程度である。運転結果より、クライオスタット内部の圧力が保持されるようヒーター出力は約 5V で制御され、これに伴い LHe 液面も安定に保持されていることが確認できた。

これらの結果から、NMR 装置に搭載するための再凝縮能力及びゼロボイルオフ運転の安定性が十分であることが確認された。

3.2 NMR 装置による実証評価

図 3 にヘリウム再凝縮装置を NMR 装置 (Ascend400) に設置した状況を示す。真空断熱配管は LHe 注液ポートである右側ポートへ挿入している。



図 3 NMR 装置への設置状況

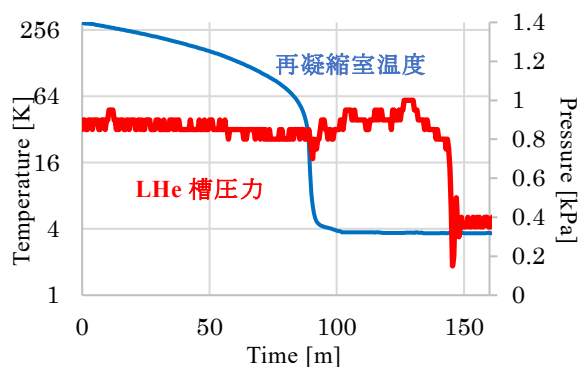


図4 ヘリウム再凝縮装置のクールダウン特性

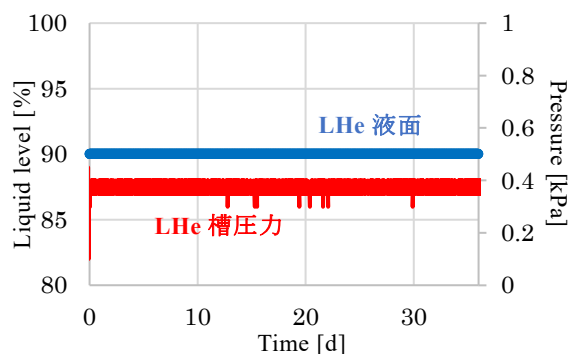


図5 長期ゼロボイルオフ運転結果

図4にヘリウム再凝縮装置のクールダウン特性を示す。再凝縮室の外表面には評価用に温度センサを取り付けている。

ヘリウム再凝縮装置を起動すると、再凝縮室の温度が低下し、約90分で4.2Kに到達した。圧力制御の設定値は0.4kPaであるが、起動時は逆止弁の設定圧である約0.8kPaでGHeを放散している。約140分で圧力が急激に低下し、その後、圧力制御によりLHe槽の圧力が安定していることから、ゼロボイルオフ運転が成立していると判断した。

図5に35日間の長期ゼロボイルオフ運転結果を示す。1ヶ月以上の運転でLHe液面は90%のレベルで安定して推移し、LHe槽からの蒸発ロスが発生していないことを確認した。またLHe槽の圧力については、ヒーターの設置されている再凝縮室と、圧力測定部であるLHe槽が真空断熱配管により連通しているため、再凝縮室とLHe槽の僅かな圧力差などにより圧力の不安定化が懸念されたが、制御特性の調整により設定値である0.4kPaで大きな圧力変動が起きることなく安定しており、長期的なゼロボイルオフ運転が可能であることが確認された。

3.3 スペクトル評価

スペクトルデータはNMR装置の設置環境、パラメータ設定に依存するが、参考例として図6に標準

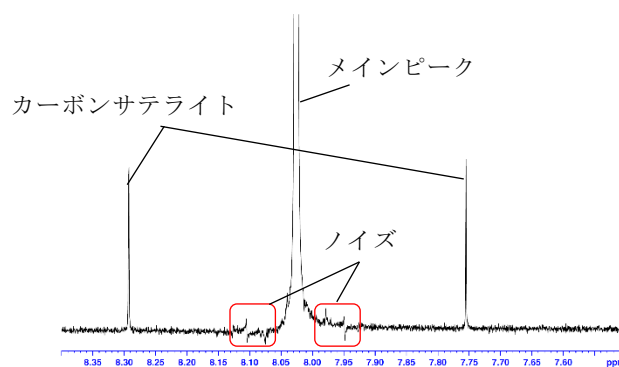


図6 スペクトルデータ

サンプル(CHCL3)のスペクトルデータを示す。スペクトルデータの積算回数は16回である。取得されたスペクトルデータでは中央のメインピークに加えその両端に対称的に2本の短いピーク(カーボンサテライト)が観測されている。カーボンサテライトは、メインピークに対して0.55%の高さを示すことが知られており、これを基準としてヘリウム再凝縮装置の運転によるノイズの大きさを評価した。

ノイズはメインピークの両脇に発生する傾向がある。積算回数が少ない場合はノイズがカーボンサテライトに対して顕著に表れるが16回積算した場合はノイズが打ち消しあい、メインピークに対して約0.1%以下に抑えられる結果が得られた。

4. まとめ

NMRに搭載可能なヘリウム再凝縮装置を開発し、ブルカージャパンと共に製品化に取り組んだ。

その結果、製品化に不可欠なNMR装置内の圧力や液面の安定性、スペクトルへの影響において実用上十分な性能を有することが確認された。本装置はNMRユーザーへの提案を進める中で高い評価を受けている一方、ランニングコストに関する課題も指摘されている。

このうち、ランニングコストの主要因である電気代の低減を図るため、再凝縮運転に必要な能力を維持しつつ、消費電力の低減が可能となるよう圧縮機選定の最適化を検討しており、それが実現できれば消費電力を現状の2/3程度に抑えることが期待できる。

今後は低電力モデルの製品化やノイズ低減に取り組み、さらなる普及を通じてヘリウム資源の有効活用や省エネに貢献していきたい。