

3

技術発表

3.2 第 30 回機器・分析技術研究会 2024 広島大学

発表

題 目：NMR の移設に伴うヘリウム の収支

所属・氏名：共通支援グループ 多田 康平

NMR の移設に伴うヘリウムの収支

○多田 康平^{a) b)}、西崎 修司^{a) b)}

^{a)}京都大学 大学院工学研究科 附属桂インテックセンター

^{b)}京都大学 環境安全保健機構 低温物質管理部門

1. はじめに

京都大学桂キャンパスは平成 15 年 10 月に開学した、吉田・宇治キャンパスに次ぐ京都大学で 3 番目のキャンパスであり、おもに工学部および大学院工学研究科の教育研究拠点となっている。桂キャンパスは、電気系・化学系の専攻が入居する A クラスター、共同実験室など共通施設のある B クラスター、地球系・建築系・物理系の専攻が入居する C クラスターで構成されている。現在、桂キャンパスでは 400–700 MHz サイズの核磁気共鳴 (Nuclear Magnetic Resonance; NMR) 装置が、A クラスターを中心に合計で約 15 台稼働している。令和 5 年 12 月から令和 6 年 2 月にかけて、B クラスターから A クラスターへ 400 MHz サイズの NMR (ブルカー、Ascend 400) を 1 台移設する機会があったため、本稿ではその経過を紹介したい。

近年、世界的なヘリウム需給のバランスの崩れ (いわゆる「ヘリウム危機」) が大学等の教育研究機関にも大きな影響を与えており、各機関においてもヘリウムの安定的なリサイクルを維持するための努力や工夫が続けられている。[1,2] 今回の NMR 移設においては、できるだけヘリウムを損失せず回収するよう努めた結果、一連の作業で発生したヘリウムガスのうち 80%以上：液体換算で約 200 L を損失せず回収することができた。

2. 桂キャンパスでのヘリウム回収

桂キャンパスには超伝導量子干渉計 (Superconducting Quantum Interference Device; SQUID) など NMR 以外のヘリウムを使用する装置もあるが、ここでは NMR に限って説明する。通常稼働中の NMR では、日常蒸発により典型的なオーダーとして $10^{-1} - 10^0 \text{ m}^3/\text{day}$ の速度でヘリウムガスが発生している。一方ヘリウム充填時には、それよりも速い $10^0 - 10^1 \text{ m}^3/\text{h}$ の速度でヘリウムガスが発生する。桂キャンパスでは、通常稼働中の日常蒸発ガスの回収には内径 9 mm 程度の細いホースを使用することもあるが、充填時には大量のガスを回収できるよう内径 25 mm 以上の太い回収系統を用いてガス回収をおこなっている。また、充填時に発生する大量のガスが低温のまま流量計に導入されるのを防ぐため、その上流で熱交換器 (内径 25 mm 程度で長さ 10–16 m 程度の銅管) に通すことで室温まで加温している。

こうして桂キャンパス内の各研究室から回収されたヘリウムガスは、建物内の回収配管を通じて、各建物に設置されている回収サブステーションのガスバッグ (ダイゾー、容積 4 m³) に一旦集められ、油回転ポンプ (エドワーズ、E2M18、排気速度 20 m³/h/台、建物によって 1 台または 2 台設置) によって共同溝内の回収配管へ送り込まれ、B クラスター極低温施設棟のガスバッグ (スカイピア、容積 30 m³) へと集約される。極低温施設棟のガスバッグに溜められたヘリウムガスは、ヘリウム回収高圧圧縮機 (加地テック、WH5A-15G、処理速度 40 Nm³/h/台を 2 台設置) によって高圧に圧縮され、乾燥などの所定の

過程を経て不純ガス長尺カードルへ貯蔵される。今回の NMR の移設先の建物ではエドワーズの油回転ポンプが 2 台並列接続されているため、40 m³/h の速度でヘリウムガスを回収することができる。

3. NMR 移設の各作業とヘリウムの経過

今回の NMR 移設における各作業とヘリウムの経過を表 1 にまとめた。表 1 において「作業」の列の 3-1 から 3-8 までの番号は、本章の節番号に対応している。本章で記述するヘリウムの量は、各作業時点で判っていたものではなく、一連の作業が全て終了した後に計算して見積もられたものである。状況によっては NMR やヘリウムベッセルの中に溜められている液体ヘリウムの量を精確にはかることは難しい場合もあり、本章で記述するヘリウムの量には数リットル程度の誤差が含まれている可能性がある。

3-1. 消磁前のヘリウム充填

今回は NMR を移設する前に一旦消磁する計画であり、この消磁作業を行うためには NMR 内のヘリウム液量を一定以上にしておく必要があった。令和 5 年 12 月 18 日（月）に、消磁前の最後のヘリウム充填を行った。充填前の NMR のヘリウム液量は 93 L であった。本学低温物質管理部門 (Low Temperature and Materials Sciences Division; LTM) から供給し、充填に使用した液体ヘリウムは 25 L で、このうち 20 L が NMR へ充填された。したがって充填後の NMR のヘリウム液量は 113 L となった。充填作業中に蒸発した 5 L 分のヘリウムガスはほぼ全量、NMR に接続された回収配管によって回収された。

3-2. 消磁

12 月 25 日（月）に業者殿により消磁を行った。大気放出されるヘリウムガスの様子を見ながら消磁を行うということであったので、この消磁のあいだはヘリウムガスの損失は避けられなかった。消磁前の NMR のヘリウム液量は 113 L であった。消磁作業で 19 L のヘリウムを大気放出により失った。消磁直後の NMR のヘリウム液量は 94 L となった。

表 1. NMR 移設における各作業でのヘリウムの経過。「作業」の列の 3-1 から 3-8 までの番号は 3 章の節番号に対応している。各作業において、「NMR 液量」は NMR 内の液量の変化、「使用」は使用された量、「蒸発」はガスとなった量、「回収」は「蒸発」のうち回収された量、「損失」は「蒸発」のうち回収されず損失した量、を表す。「NMR 液量」から「損失」まで、単位は L（液体換算）である。

年/月/日	作業	NMR 液量	使用	蒸発	回収	損失
R5/12/18	3-1.消磁前ヘリウム充填	93 → 113	25	5	5	0
R5/12/25	3-2.消磁	113 → 94	0	19	0	19
R5/12/25 – R6/1/9	3-3.消磁後ヘリウム回収	94 → 0	0	94	94	0
R6/1/26 – R6/1/30	3-4.ベッセル蒸発ガス回収	–	17	17	17	0
R6/1/30 – R6/1/31	3-5.励磁前ヘリウム充填	0 → 100	176	76	73	3
R6/1/31	3-6.励磁	100 → 83	0	17	0	17

R6/1/31	3-7.励磁後ヘリウム充填	83 → 100	21	4	4	0
R6/1/31 –	3-8.その他の作業	–	8	8	8	0
合計			247	240	201	39

3-3. 消磁後のヘリウム回収と移設

12月25日（月）の消磁直後からは、NMRを回収配管に再び接続し、NMR内の液体ヘリウム94 Lが全て無くなるまで蒸発ガスを回収した。このNMRでの通常稼働中のヘリウムの蒸発速度は0.2 m³/day程度（液体換算では0.3 L/day程度）だが、断熱を破ったため、消磁後のヘリウムの蒸発速度は6 m³/day程度（液体換算では8 L/day程度）であった。この蒸発速度に対応するため、ヘリウム充填時に準じた形態（上記2章参照）で、内径25 mm以上の太い回収系統を用いてガス回収をおこなった。（断熱を破った後のヘリウムガス回収に内径9 mm程度の細いホースを使用すると、回収系統のインピーダンスが高くなり内圧が上昇してNMRの安全弁が作動することがある。）

消磁から15日後の令和6年1月9日（火）には流量計の値が変化しなくなったことを確認し、NMR内の液体ヘリウムが無くなったものと判断した。

1月18日（木）に移設先実験室の回収配管の設置工事を行った。また、1月18日（木）から1月25日（木）までの間に移設元でNMRの真空開放とウォームアップを行い、NMRの移設準備が進められた。1月26日（金）に移設先実験室へNMRが移設された。

3-4. ヘリウムベッセル搬入とNMR立上げ準備

幸いなことに、業者殿から100 Lのヘリウムベッセル2本で液体ヘリウムを160 L程度提供できるという申し出があり、1月26日（金）に移設先実験室へ搬入して頂いた。実際にベッセルに溜められていた液量としては、1月26日（金）の搬入時点で158 Lであった。ベッセルに溜められているヘリウムも常時蒸発しているので、実験室への搬入後、速やかにベッセルを回収系統へ接続し、液体ヘリウムを使用する1月30日（火）までの間に蒸発したガス13 m³（液体換算で17 L）をすべて回収した。

NMRの立上げ準備としては、1月26日（金）から1月29日（月）まで真空引きが行われた。1月29日（月）には液体窒素による予冷が行われた。

3-5. 励磁前のヘリウム充填

1月30日（火）に励磁の準備が行われた。まず窒素予冷した後のNMR内の窒素ガスがヘリウムガスで置換された。この置換作業には、業者殿の持ち込まれた7 m³ヘリウムガスボンベの約3 m³分（液体換算で3 L程度 [3]）が使用された。この置換に使用したヘリウムガスは、窒素ガスと混合して純度が低いと考えられたため、回収されず、大気放出された。

その後、業者殿の提供して下さった液体ヘリウムを用いてNMRへヘリウム充填を行った。いわゆるイニシャルトランスファーのためヘリウムの蒸発は通常の充填に比べて激しいのであるが、充填速度を抑えて、ヘリウムの蒸発速度を我々の回収限界速度（40 m³/h、上記2章参照）以下に調整して頂くことで、蒸発ガスをほとんど全て回収することができた。業者殿の提供して下さった液体ヘリウムはこの充填直前では141 Lあり、そのうち77 LがNMRに溜められ、61 Lが蒸発して回収され、ベッセルには3 Lほどが残った。この充填の後には1日NMRを静置してヘリウムの蒸発が落ち着くのを待った。

励磁を行う 1 月 31 日(水)の朝までに NMR から蒸発した 5 L 分のヘリウムガスもすべて回収された。さらに NMR にヘリウムを溜めるため、1 月 31 日(水)の朝に、LTM から提供した液体ヘリウムを 35 L 使用して、NMR に 28 L の液体ヘリウムを充填し、7 L 分の蒸発したガスを回収した。充填後の NMR のヘリウム液量は 100 L となった。

3-6. 励磁

1 月 31 日(水)の午前中に励磁が行われた。大気放出されるヘリウムガスの様子を見ながら励磁を行うということであったので、この励磁のあいだはヘリウムの損失は避けられなかった。この励磁のあいだに 17 L のヘリウムを大気放出し、励磁直後の NMR のヘリウム液量は 83 L となった。

3-7. 励磁後のヘリウム充填

1 月 31 日(水)の午後に、LTM から提供した液体ヘリウムを 21 L 使用して、再び充填を行った。NMR に 17 L の液体ヘリウムが充填され、4 L 分の蒸発したガスが回収された。充填後の NMR のヘリウム液量は 100 L となった。

3-8. その他の作業とヘリウムガス回収

プローブの調整などの NMR のその他の作業は、1 月 31 日(水)から 2 月上旬にかけて行われた。

業者殿のヘリウムベッセルに残っていた 3 L ほどの液体ヘリウム(上記 3-5 参照)も、ベッセルが干上がるまで蒸発ガスを回収させて頂いた。また、NMR 内のヘリウム置換(上記 3-5 参照)で余った、ヘリウムガスボンベの約 4 m³ 分(液体換算で 5 L 程度 [3])のガスも回収配管で回収させて頂いた。

4. ヘリウムの収支とまとめ

表 1 を用いて、今回の NMR 移設に伴うヘリウムの収支をまとめる。液体換算で合計 240 L のヘリウムガスが NMR 移設の一連の作業で発生した。この一連の作業でヘリウムガスを損失した場面は消磁(19 L)、窒素予冷後のヘリウム置換(3 L)、励磁(17 L)の 3 回で、損失したヘリウムの合計は 39 L(240 L に対して 16%)であった。これらの損失は、作業の性質上やむを得ないものだと考えている。それ以外の 201 L(240 L に対して 84%)のヘリウムは損失を免れて回収することができた。

NMR のクエンチが起きずに無事にすべての作業を終えられたことがヘリウムの損失を抑えられた要因のひとつであることは間違いないが、その他にヘリウム損失を低減できた要因としては、2 章で述べたようなヘリウム回収系統の能力を我々が十分に理解し、その能力を踏まえてヘリウム損失を最小限とする作業計画として頂けるよう、我々から研究室および業者殿に働きかけたことが挙げられる。研究室からも業者殿に対して丁寧に相談や働きかけをして下さったものと想像している。一方的に働きかけるだけではなく、ヘリウム回収系統の構築(熱交換器・ホース・流量計・バルブ等の選定や接続)については我々から助言したり軽微な作業を補助したりもした。ヘリウムをできるだけ回収したいという我々の意図を業者殿も汲み取って下さり、研究室・業者殿・我々の三者がヘリウム損失を低減するために協力し合う雰囲気となったことが重要であったと考えている。

消磁後に NMR 内に残った液体ヘリウムの処理や、NMR 立上げの際のイニシャルトランスファーの場面では、作業時間の短縮などを重視して、発生するヘリウムガスを捨ててしまう場合も多いという話を聞いたことがある。しかし、本稿で紹介したように、回収設備の能力に見合うように蒸発速度を調整すれば、そのほとんど全てを回収できるようになる。作業者の人件費コストやダウンタイムの増加による実験機会の損失コストのように、ヘリウム回収を重視することで発生するコストも存在することは理解できる。その一方で、今回回収できた約 200 L のヘリウムをすべて損失したと仮定すると、以下の 2 つのコストが考えられよう。第一に、たとえば文献 [4] を参考にして液体ヘリウム価格を 0.7 万円/L と仮定すれば、200 L のヘリウムの損失は、ただちに 140 万円の金銭的な損失を意味する。第二に、ヘリウム回収液化システムを所有しヘリウムを学内でリサイクルしながら運用している大学を想定すると（ヘリウム回収率は 95%と仮定する）、一度にヘリウムを 200 L 失うことは、ヘリウムを使用した実験機会を単に 200 L 分だけ失うのではなく、将来を含めると実験機会を 4000 L 分も失うことに相当する（ $4000 = 200 / (1 - 0.95)$: 無限等比級数の和）。一時的な人件費コストや実験機会の損失コストを理解しつつも、ヘリウムは限りある貴重な資源であるという認識を共有し、できるだけ損失を低減する努力を続けていくことが、ヘリウムを 100%輸入に頼る我が国でこれからも安定的にヘリウムを使い続けるために必要な姿勢だと思われる。

謝辞

ブルカー・ジャパン株式会社のご担当者様、ならびに、京都大学大学院工学研究科材料化学専攻教授の沼田圭司先生および同講師の大前仁先生には、NMR 移設および移設に際してのヘリウムガス回収に多大なご協力を賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

文献

- [1] 山下穰「ヘリウム危機の現状と今後の課題について」固体物理, **55**, 215 (2020).
- [2] 勝本信吾, 鷺山玲子, 土屋光, 山下穰「ヘリウムリサイクルへの取り組みー東京大学物性研究所の活動ー」低温工学, **56**, 119 (2021).
- [3] 宗本久弥「ヘリウムはガスボンベ 1 本で何リットル液化できるのか」平成 25 年度 核融合科学研究所技術研究会, 4-01 (2014).
- [4] 出田圭子「液体ヘリウム再凝縮装置使用体験記」2022 年度 機器・分析技術研究会, P-38 (2022).