超流動ヘリウム生成用静止型磁気冷凍機

白楽 善則, 尾形 久直

(株)日立製作所 機械研究所
土浦市神立町502

(1985年7月25日受理)

Thermodynamic analysis of a static magnetic refrigerator
for superfluid helium with heat switches
based on thermosiphon principle

Yoshinori HAKURAKU and Hisanao OGATA

Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi Ltd.
502 Kandatsu, Tsuchiura, Ibaraki, 300 JAPAN

(Received July 25, 1985)

Synopsis :

Two magnetic refrigerators with new heat switches based on the thermosiphon principle were designed and tested, which could produce and preserve superfluid helium. However, these magnetic refrigerators did not satisfy the designed performance. To make clear this problem, the detailed cycle analysis was performed including heat losses due to heat switches. The results show that heat loss relating to heat capacity of liquid helium mainly affects the reduction of experimental cooling power, and is approximately 8 times larger than that of the case taking into account of only unsteady-state conduction heat exchange between magnetic element and liquid helium. It is believed that this large heat loss may be caused by the convection of liquid helium.

1. 緒言

従来の気体冷凍機に比べ、高効率、高信頼性の可能性のある磁気冷凍法が注目され、4 K近頃の温度で動作する磁気冷凍機の開発が精力的に進められている¹⁾。特に、1981年 Lacaze らは作業物質として単結晶 $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG)を使用し、1.8 K~4.2 Kの温度間で動作する超流動ヘリウム生成用の往復動型磁気冷凍機を製作し、有効冷凍能力 1.2 W を得た²⁾。また、著者らは Lacaze らの装置とほぼ同型のものを製作し、有効冷凍能力 0.5 W を得た³⁾。これらの冷凍機は、作業物質を動かして動作するものである。これに対し、Nakagome らは 4.5 K~15 K 温度域で動作し、低温側熱スイッチとして開放型ヒートパイプを適用し、作業物質を静止させた状態でヘリウムを液化する装置を製作し、実験した⁴⁾。一方、著者らは 1.8 K~4.2 K 温度間で動作し、流体(ヘリウム)の熱伝達モードの熱伝達量の差を応用した熱サイフォン式の熱スイッチを低

温側および高温側に適用し、作業物質を静止させた状態で超流動ヘリウムを生成する磁気冷凍機を製作し、性能試験を実施してきた。そして、完全静止型で 0.6 W⁵⁾、回転磁界型で 1.5 W⁶⁾の有効冷凍能力を得たが、設計値に比べ低い値を示した。これは、熱スイッチのダイナミックな動作による性能低下に主に起因していると推測された。そこで、本研究ではこの熱スイッチのダイナミックな特性を考慮した熱力学的なサイクル解析を実施し、この原因の解明を行った。

2. 構造と動作原理

本磁気冷凍機は、流体(ヘリウム)の熱伝達モードの差を応用した熱スイッチを採用することによって、作業物質を静止状態で使用し、1.8 K~4.2 Kの温度間でカルノーサイクルを実現するものである。作業物質としては、2 Kと15 Kの温度域で現在もっともすぐれた磁性材料と考えられているガドリニウム・ガリウム・ガーネット $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG)^{7)~9)}を使用した。こ

の作業物質を磁化あるいは消磁するのに超電導パルスマグネットを適用して完全に可動部のない構成としたのが、Fig. 1 に示す完全静止型磁気冷凍機⁵⁾である。また、超電導マグネットシステムを回転させて、作業物質の磁化・消磁を繰り返して、磁気冷凍サイクルを実行するのが、Fig. 2 に示す回転磁界型磁気冷凍機⁶⁾である。

動作原理を二つの熱スイッチの状態および GGG と外部との熱の授受を基に Fig. 3 によって簡単に説明する。熱スイッチが理想的に働いている場合を考える。等温磁化過程 (AB) において、GGG の温度は高温側の動作温度 T_H より高くなり、主に高温側の伝熱面より液体ヘリウム (4.2K, 1 atm) へその沸騰熱伝達によって排熱 (Q_H) する。次に、断熱減磁過程 (BC) を経て、等温減磁過程 (CD) において、GGG の温度は低温側の動作温度 T_C より低くなり、熱負荷によって飽和超流動ヘリウムが蒸発して発生したガスヘリウムは低温側の伝熱面で再凝縮して、熱負荷は作業物質へ吸熱 (Q_C) される。そして断熱磁化過程 (DA) を経て、サイクルは完成する。このように、ABCD 過程を連続的に繰り返して安定な磁気冷凍サイクルを実行するのである。しかしながら、実際には二つの熱スイッチの ON, OFF が完全でないので熱損失が生ずる。これは、主に GGG がその上面にある液体ヘリウムあるいはその下面にあるガスヘリウムと常に直接接して

いるため、OFF 時にも完全に断熱にならず熱伝導や対流などによって、これらと熱交換していることに起因している。すなわち、AB 過程では GGG の温度は $T_M > T_H$ となるので、液体ヘリウム側へその沸騰熱伝達によって主に放熱 (Q_H) するが、ガスヘリウム側へもその熱伝導や対流などによって、放熱し、ガスヘリウムを温めて、これが冷凍サイクルにおける熱損失 (Q_L) となる。BC 過程では、 $T_C < T_M < T_H$ となるの

Fig. 1 A static magnetic refrigerator for superfluid helium with new heat switches and a superconducting pulse coil.

(a) (b)
Fig. 2 Magnetic refrigerator for superfluid helium equipped with rotating superconducting magnet system.
(a) schematic diagram, (b) photograph

Fig. 3 Operating principle of magnetic refrigerator.

で、GGG は液体ヘリウムを冷却し、かつガスヘリウムを温め、熱損失 (Q_L) となる。CD 過程では、 $T_M < T_C$ となり、GGG はその下面でガスヘリウムを凝縮しながら吸熱するとともに、その上面にある液体ヘリウムと熱交換し、熱損失 (Q_L) となる。DA 過程では、BC 過程と同様のことが起こる。

3. 熱力学的サイクル解析の方法と計算条件

磁気冷凍機の熱解析では、作業物質に印加される周期的な磁場変化に従って、作業物質と外部との周期的な熱の授受を見積る熱力学的なサイクル解析が不可欠である^{4), 5), 10)~12)}。このとき、作業物質と外部とのダイナミックな熱交換を考慮することが非常に重要である。従来、簡単化のため、二つの等温過程におけるダイナミックな熱交換のみを考慮した、すなわち熱損失を含めないサイクル解析によって、冷凍能力の周波数特性を計算した。有効冷凍能力は、熱損失の周波数特性を別に見積って、これと前記冷凍能力との差として計算していた。しかしながら、ここでは実際のサイクル過程をシミュレーションするために、作業物質の温度変化による外部との熱交換に関して熱損失のダイナミックな変化も考慮してサイクル解析することにする。解析の対象は、静止型磁気冷凍機とする。

作業物質である GGG の熱伝導率は非常に大き

い^{8), 9)}ので、GGG の大きさが極端に大きくなく、かつ動作周波数が 1 Hz 以下の条件の下では、たとえ冷凍サイクル中の過渡状態にあっても、GGG 内で温度勾配がついていないとする仮定は無理でない。したがって、計算を簡単化するために、ここでは GGG の熱伝導率は無限大と仮定する。GGG と外部との熱交換を表す基礎方程式は、

$$nT_M \frac{dS}{dt} = Q_0 + Q_L \quad (1)$$

と与えられる。ただし、GGG のエントロピー S および温度 T_M は、GGG のエントロピー・温度線図から決定されるもので、それぞれ $S = S(B, T_M)$ 、 $T_M = T_M(S, B)$ である。 Q_0 は二つの等温過程における GGG の放熱量 Q_H あるいは吸熱量 Q_C で、 Q_L は GGG が熱交換する熱損失量である。従来の解析では $Q_L = 0$ としていた。

さて、 Q_0 は T_M の範囲によって次式で与えられる。

$$T_M \geq T_H \quad Q_0 = Q_H = hA_H(T_H - T_M) \quad (2)$$

$$T_C < T_M < T_H \quad Q_0 = 0 \quad (3)$$

$$T_M \leq T_C \quad Q_0 = Q_C = \alpha K A_C (T_C^4 - T_M^4) \quad (4)$$

ここで、 h は液体ヘリウムの沸騰熱伝達率で、実測値を与える。 αK は、GGG のカピツア抵抗に関係する常数である¹³⁾ (ラムダ点以下の温度におけるヘリウムガスの凝縮熱伝達は、主にカピツア抵抗によって

決定される, $\alpha_K = 0.018 \text{ W cm}^{-2} \text{ K}^{-4}$). これらによって, 放熱時, 吸熱時における不可逆性を含めることができる。

一方, ヘリウムガスが関与する熱損失は, 液体ヘリウムが関与する熱損失の1/10以下となるので, サイクル解析では液体ヘリウムによる熱損失のみを考慮する。また, その他予想される熱損失⁵⁾は無視できるとした。よって, 有効に使用できる冷凍能力 Q_u は Q_C に等しいと考える。 $T_M \leq T_H$ における GGG と液体ヘリウムとの熱交換量は, サイクル過程における液体ヘリウム中の非定常熱伝導方程式を解くことによって求めた。すなわち, 基礎方程式は

$$\frac{1}{a} \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (5)$$

で与えられる。ここで, T は液体ヘリウムの温度 $T(x, t)$ である。境界条件は,

$$T(0, t) = T_M \quad t > 0 \quad (6)$$

$$T(\infty, t) = T_H \quad (7)$$

で, 計算条件として, AB過程($T_M \leq T_H$)では $T(x, t) = T_H$ とした。差分法で(5)式を解き, サイクル過程における液体ヘリウム中の温度分布を求め, 次式から Q_L を計算した。

$$Q_L = \phi k A_H \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{x=0} \quad (8)$$

ここで, ϕ は液体ヘリウムの対流の効果を表す係数で, $\phi=1$ のとき熱伝導のみの場合を示す。液体ヘリウムの物性値は, 2.2 K から 4.2 K の温度間では 3.5 K の値に対して k は $+\frac{3}{15}\%$, α は $+\frac{20}{30}\%$ の変化であるので, 計算では 1 atm, 3.5 K の値 ($k = 1.91 \times 10^{-4} \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $\alpha = 4.62 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$) の一定値とした。

GGG は, 直径 5 cm, 長さ 5 cm のもの 1 個であるので, $n = 0.67 \text{ mol}$ である。高温側, 低温側の伝熱面は, GGG のそれぞれ上面, 下面で, 伝熱面積を増加させるために, フィン加工 (フィン高さ 1.5 mm, 幅 1.0 mm, ピッチ 1.9 mm の長方形断面の直線フィン) しているので, $A_H = A_C = 50.5 \text{ cm}^2$ である。

GGG に印加する磁場のパターン $B(t)$ は, 正弦波パターンとした。最大磁場 $B_m = 3.0 \text{ T}$, 最低磁場 $B_o = 0 \text{ T}$ である。磁気冷凍サイクルの周波数 f は, 0 ~ 1 Hz の範囲とした。

4. 結果と検討

有効冷凍能力 Q_u の周波数依存性を実測値とともに Fig. 4 に示す。 $\phi=0$ は, 熱損失がない場合で, 二つ

Fig. 4 Frequency dependence of calculated and measured useful cooling power.

の断熱過程は完全に維持される。 $f = 0.3 \text{ Hz}$ 近傍で極大値を示すのは, 主に AB 過程における液体ヘリウムの沸騰熱伝達特性に起因している。すなわち, f が増加すると, AB 過程における単位時間当りの放熱量が増し, 液体ヘリウムと GGG 間の温度差が大きくなり, 理想カルノーからのずれの著しいサイクル過程となり, 冷凍性能が低下するためである。 $\phi=1$ は, 熱損失が液体ヘリウムの熱伝導のみによるとした場合である。このとき, $\phi=0$ の場合に対して Q_u の低下は, $f = 0.3 \text{ Hz}$ で約 11% で, f が高いほどこの低下率は大きい。 Q_u の実測値は, $f = 0.2 \text{ Hz}$ で極大を有し, 約 0.5 W である。これは, $\phi=1$ の場合の $f = 0.2 \text{ Hz}$ における値, 約 1.75 W に比べ, かなり小さい。このことは, 熱損失は液体ヘリウムのみによるのではなく, 何かの原因で液体ヘリウムの流れが発生し, この対流効果により熱損失が大きくなっている可能性を示唆している。そこで, ϕ を 2, 4, 8 と増加させて計算してみた。これらの結果から, $\phi=8$ の場合において, 極大値の位置は $f = 0.3 \text{ Hz}$ から 0.2 Hz へずれ, Q_u の大きさおよび周波数依存性は測定値とよく一致する。また, 熱損失の増加による影響は, f が高いほど大きいことがわかる。以上の結果から, 実際のサイクルでは, 液体ヘリウムの流れが発生して大きな熱損失となっていることは明らかである。この流れは自然対流ではなく, AB 過程で, 液体ヘリウムが GGG 表面で沸騰しているときに誘起された液体ヘリウムの流れが, 次の一連の BC, CD, DA 過程においても残ってい

て、これを駆動源として熱伝導のみで生ずる熱損失以上に熱損失が増加しているものと考えられる。

次に、効率の周波数依存性を Fig. 5 に示す。効率 η_p は、パーセントカルノー効率 η_p と FOM (figure of merit) の 2 種類を基に検討を行う (η_p と FOM の定義は、Appendix を参照)。FOM の方が η_p に比べ高い数値になって表わされるが、どちらも磁気冷凍サイクルの不可逆性の度合を表現するものである。 $\phi = 0, 1$ に対して、 Q_u が極大値を示す $f = 0.3\text{Hz}$ で、 η_p (FOM) はそれぞれ 46% (62%), 39% (52%) となり、 $f > 0.3\text{Hz}$ ではほぼ一定値を示す。 ϕ を 2, 4, 8 と増加させていくと、 η_p は徐々に低下し、さらに $f = 0.2\text{Hz}$ 近くで極大を示すようになる。実験では、 $\phi = 8$ の場合に相当すると考えられる。このとき、 $f = 0.2\text{Hz}$ で $\eta_p = 13\%$ (FOM = 20%) となり、期待された 40% (50%) 以上に比べかなり低い値を示すことになる。

さて、磁気冷凍サイクルの振舞いは、GGG のエントロピー・温度線図上におけるサイクル軌跡を見るとよく理解できる。Fig. 6 に $\phi = 8$ に対する $f = 0.2\text{Hz}$, 0.3Hz の二つの場合のサイクルの軌跡を示す。大きな熱損失のために、二つの断熱過程は著しく壊れていることがわかる。そして、理想的なサイクルに比べ、全体的にエントロピーの高い領域へずれて動作している。また、冷凍能力が極大となる $f = 0.2\text{Hz}$ では、AB 過程における GGG の最高温度は約 4.7K で液体ヘリウムの沸騰状態は、核沸騰領域にあるのに対し、 $f = 0.3\text{Hz}$ では約 7.5K まで上昇していることから、膜沸騰領域に遷移していることは明らかである。 f が高

Fig. 5 Frequency dependence of efficiency η_p and FOM.

Fig. 6 Calculated thermodynamic cycles ($\phi = 8$) on entropy-temperature diagram of GGG.

くなるほど等温過程におけるエントロピー変化 ΔS が小さくなることもわかる。

最後に、 $\phi = 8$ に対して GGG の温度および GGG の上面にある液体ヘリウムの温度変化を測定値 (カーボン抵抗と Au+0.07at% Fe-Chromel 熱電対で測定) とともに Fig. 7 に示す。GGG の温度 T_M は、4.2K 以下 (BC, CD, DA 過程) では計算値と実験値はよく一致している。これに対し、AB 過程では T_M は計算では 4.7K 程度であり、実験では 5.0K と高くなっているが、まだ液体ヘリウムの沸騰状態は核沸騰領域にあることは確かである。液体ヘリウムの温度の測定値 T_0 は、GGG の上面にある液体ヘリウム中に、カーボン抵抗を GGG 表面に押し付けるように配置して測定されたものである。液体ヘリウムの温度の計算値 T_5, T_{10} はそれぞれ GGG 表面から 0.5mm, 1.0mm 位置のものである。 T_5, T_{10} の最低温度はそれぞれ 4.05 K, 3.45K で GGG は BC, CD, DA 過程において液体ヘリウムを冷却することによってかなり吸熱していることが理解できる。計算値が、単純に温度低下しているのに対し、測定値は最低温度が 3.7K 程度で、かなり変動している。この変動は、液体ヘリウムは単純に熱伝導のみで冷却されているのではなく、明らかに何らかの対流が液体ヘリウム中に生じて、これによ

Fig. 7 Temperature variations of liquid helium and GGG during steady-state operation, $f=0.2\text{ Hz}$.

て GGG への熱損失が増加していることを示すものである。

5. 結論

超流動ヘリウムを生成する磁気冷凍機として、熱サイフォンを応用した熱スイッチを使用した静止型、回転磁界型の二機種を試作したが、その性能は設計値よりも低かった。そこで、この原因を解明するために、静止型を対象として熱スイッチに起因した熱損失をサイクル解析の中に組み込んだ解析を実施した。高温側の液体ヘリウムの熱容量による熱損失が主に影響を与えているので、この液体ヘリウムと作業物質である GGG との熱交換を、非定常熱伝導問題で取り扱い、熱損失を計算し、サイクル解析の中へ含めた。その結果、作業物質と液体ヘリウムとの熱損失が、非定常熱伝導のみとした場合の 8 倍程度であるとき、冷凍能力やその他の性能が実験値とよく一致することがわかった。これは、等温磁化過程における液体ヘリウムの沸騰現象により誘起された液体ヘリウムの流れが、これに続く断熱減磁、等温減磁、断熱磁化過程まで残っていて、この対流によって熱伝導のみで考える以上に熱損失が増加したものと考えられる。今後の問題は、この熱損失をいかに低減するかである。これは、作業物質の液体ヘリウム側の表面に、沸騰熱伝達の劣化を抑え、上述対流を抑制するような機構を設けることによ

って解決できるものと思われる。

Appendix : 効率の定義

パーセントカルノー効率は、理想的な場合と実際の場合の COP (the coefficient of performance) の比として定義する¹⁴⁾。

$$\eta_p = \frac{\text{COP}_{ac}}{\text{COP}_{id}} = \frac{(Q_C/W)_{ac}}{(Q_C/W)_{id}} \quad (\text{A1})$$

$$\left(\frac{Q_C}{W}\right)_{ac} = \frac{Q_C}{Q_H - Q_C}, \quad \left(\frac{Q_C}{W}\right)_{id} = \frac{T_C}{T_H - T_C} \quad \text{であるの}$$

で、 η_p は、

$$\eta_p = (T_H/T_C - 1) \frac{Q_C}{Q_H - Q_C} \quad (\text{A2})$$

次に、FOM (the figure of merit) は次式で定義する¹⁵⁾。

$$\text{FOM} = \frac{(Q_C/Q_H)_{ac}}{(Q_C/Q_H)_{id}} \quad (\text{A3})$$

$$(Q_C/Q_H)_{id} = T_C/T_H \quad \text{であるので、}$$

$$\text{FOM} = \frac{T_H}{T_C} \cdot \frac{Q_C}{Q_H} \quad (\text{A4})$$

(A2) 式と (A4) 式から、

$$\begin{aligned} \text{FOM} &= \frac{\eta_p}{1 + \frac{T_C}{T_H}(\eta_p - 1)} \\ &= \frac{1}{(1 + T_C/T_H)/\eta_p + T_C/T_H} \end{aligned} \quad (\text{A5})$$

例えば、 $T_H = 4.2\text{ K}$, $T_C = 1.8\text{ K}$ とすると、 $T_C/T_H = 0.429$ であるので、FOM は η_p から次式で換算できる。

$$\text{FOM} = \frac{\eta_p}{0.571 + 0.429\eta_p} = \frac{1}{0.571/\eta_p + 0.429} \quad (\text{A6})$$

Nomenclature

A_C = heat transfer area at low temperature side, cm^2

A_H = heat transfer area at high temperature side, cm^2

a = thermal diffusivity of liquid helium, $\text{cm}^2 \text{ s}^{-1}$

B = magnetic field, T

B_m = maximum applied magnetic field, T

B_0 = minimum applied magnetic field, T

f = operating frequency, Hz

FOM = the figure of merit, see Appendix

h = boiling heat transfer coefficient of liquid helium at 4.2 K, $\text{Wcm}^{-2} \text{ K}^{-1}$

k =thermal conductivity of liquid helium,
Wcm⁻¹ K⁻¹

n =molar mass of magnetic element (GGG),
mol

Q_C =cooling power, W

Q_{II} =heat released to liquid helium at 4.2K, W

Q_L =heat loss, W

Q_u =useful cooling power, W

$Q_O = Q_C$ or Q_{II}

R =molar gas constant (8.314 Jmol⁻¹ K⁻¹)

S =entropy of magnetic element, J mol⁻¹ K⁻¹

T =temperature of liquid helium, $T(x, t)$, K

T_C =operating temperature at low temperature
side, K

T_{II} =operating temperature at high temperature
side, K

T_M =temperature of magnetic element (GGG), K
 t =time, s

W =input power. W

x =distance from the surface of GGG

Greek letters

α_k =constant relating to Kapitza conductance

η_p =percent Carnot efficiency, see Appendix

ϕ =coefficient, see eq. (6)

Suffix

ac; actual condition

id; ideal condition

参 考 文 献

- 1) A. F. Lacaze, G. Claudet, A. A. Lacaze and P. Seyfert: *Proc. 10th Int. Cryog. Eng. Conf., Helsinki, 1984* (Butterworth Press, UK, 1984) p. 23.
- 2) A. F. Lacaze, R. Beranger, G. Bon Mardion,

G. Claudet, C. Delpuech, A. A. Lacaze and J. Verdier: *Adv. Cryog. Eng.* **27** (1981) 703.

- 3) H. Nakagome, N. Tanji, O. Horigami, H. Ogiwara, T. Numazawa, Y. Watanabe and T. Hashimoto: *Adv. Cryog. Eng.* **29** (1983) 581.
- 4) Y. Hakuraku and H. Ogata: *Teion Kohgaku* **19** (1984) 311
- 5) Y. Hakuraku and H. Ogata: to be published in *Jpn. J. Appl. Phys.*
- 6) Y. Hakuraku and H. Ogata: to be published in *Jpn. J. Appl. Phys.*
- 7) R. A. Fisher, G. E. Brodale, E. W. Horening and W. F. Giauque: *J. Chem. Phys.* **59** (1973) 4652.
- 8) J. A. Barclay and W. A. Steyert: *Cryogenics* **22** (1982) 73.
- 9) B. Daudin, R. Lagnier and B. Salce: *J. Mag. and Mag. Mat.* **27** (1982) 315.
- 10) A. F. Lacaze, A. A. Lacaze, R. Beranger and G. Bon Mardion: *Proc. 9th Int. Cryog. Eng. Conf., Kobe, 1982* (Butterworth Press, UK, 1982) p. 14.
- 11) 白楽善則, 尾形久直: 第28回低温工学研究発表会 (1982).
- 12) T. Hashimoto, T. Numazawa and T. Maro: *Adv. Cryog. Eng.* **29** (1983) 597.
- 13) Y. Hakuraku: *Cryogenics* **24** (1984) 156.
- 14) T. R. Strobridge: *NBS Tech. Note* 655 (1974).
- 15) A. F. Lacaze, R. Beranger, G. Bon Mardion, G. Claudet and A. A. Lacaze: *Cryogenics* **23** (1983) 427.