Gifford-McMahon 冷凍機によるヘリウムの液化

長尾 政志, 稲口 隆, 吉村 秀人
山田 忠利, 岩本 雅民

三菱電機(株)中央研究所 尼崎市塚口本町

(1989年5月15日受理)

Helium Liquefaction by Gifford-McMahon Cycle Cryogenic Refrigerator

Masashi NAGAO, Takashi INAGUCHI, Hideto YOSHIMURA,
Tadatoshi YAMADA and Masatami IWAMOTO

Central Research-Laboratory, Mitsubishi Electric Corp.,
8-1-1 Tsukaguchi-honmachi, Amagasaki 661, Japan

(Received May 15, 1989)

Synopsis :

This paper describes the principal design features and performance test results of a three-stage Gifford-McMahon cycle cryogenic refrigerator by which we have achieved no-load temperature of 3.3 K and succeeded in helium liquefaction. The refrigeration capacity was 20 mW at 4.2 K and the helium liquefaction rate was 10 cm³/h. The keypoint of the success is the selection of GdRh and Gd_{0.5}Er_{0.5}Rh compounds as a regenerator material. This is the first success that regenerative cycle cryogenic refrigerator has liquefied helium without auxiliary refrigerator for precooling.

1. 緒 言

Gifford-McMahon 冷凍機 (以後 GM 冷凍機と呼ぶ) とは, W. E. Gifford と H. O. McMahon によって 1959 年に発明された冷凍機¹⁾, Stirling 冷凍機や Vuilleumier 冷凍機と同じく蓄冷型冷凍機の 1 種である。蓄冷型冷凍機は再生式熱交換器 (以後蓄冷器と呼ぶ) を用いる冷凍機であり, 構造が簡単でかつ信頼性が高いので液体窒素温度や液体水素温度で動作する冷凍機としてよく用いられている。とくに GM 冷凍機はヘリウムガスに混入する不純物に比較的強い, また膨張機の動作速度を他の蓄冷型冷凍機にくらべて遅くできるなどの特徴を持つため信頼性が最も高い。したがって GM 冷凍機はクライオポンプや MRI のシールド冷凍機として現在広く使用されている²⁾。

ところがこのような蓄冷型冷凍機を 4.2 K (ヘリウムの大気圧での沸点, 以後液体ヘリウム温度と呼ぶ) で動作させることはこれまで困難であった。この理由の 1 つは極低温領域で蓄冷材の比熱が減少する一方, 逆に作動流体であるヘリウムの比熱が増大するために

蓄冷器が有効に動作しなくなるからである³⁾。もう 1 つの理由は極低温領域でヘリウムが実在気体的な性質を示し, その結果発生冷凍量自体が小さくなるためである³⁾。もし液体ヘリウム温度で動作する蓄冷型冷凍機が実用化できれば, MRI 等の超電導マグネットや SQUID 等の超伝導素子の冷却に適用でき, 蓄冷型冷凍機の用途がさらに広がる可能性がある。

そこで到達温度を下げるために, 極低温用の蓄冷材の開発と種々の熱損失を低減するための多くの研究が行われてきた。しかし単体の蓄冷型冷凍機の到達温度の記録は 6.5 K といわれており⁴⁾, 液体ヘリウム温度を達成した報告はまだない。これに対し常温から約 10 K まで冷却する補助冷凍機と約 10 K から液体ヘリウム温度まで冷却する主冷凍機を用いる方式では液体ヘリウム温度がすでに実現されている^{5~7)}。しかし, この方式では構造が複雑になる欠点があり, 蓄冷型冷凍機の特徴を十分には生かすことができなかった。

そこで筆者らは構造の簡単な単体の蓄冷型冷凍機でヘリウムの液化をするための研究に取り組んだ。まず 3 段膨張式 GM 冷凍機を試作し, この冷凍機の蓄冷

Fig. 1 Schematic of three-stage Gifford-McMahon cycle cryogenic refrigerator (a) and photograph of cold head (b).

器の蓄冷材に極低温領域で磁気転移に伴う大きな比熱を有する GdRh と $\text{Gd}_{0.5}\text{Er}_{0.5}\text{Rh}^{9)}$ を用いて到達温度を下げる試みを行った。その結果蓄冷材の構成が到達温度に大きく影響することを明らかにするとともに、 GdRh と $\text{Gd}_{0.5}\text{Er}_{0.5}\text{Rh}$ を組み合わせて用いると、効率の高い蓄冷器が得られることを見いだした。そしてこの蓄冷器を使用した単体の3段階膨張式 GM 冷凍機で 3.3 K を達成するとともに、ヘリウムを液化することに成功した。単体の蓄冷型冷凍機でヘリウムの液化に成功したのは世界で初めてであろう。

本論文では試作した3段階膨張式 GM 冷凍機の概要とこれを用いて行ったヘリウムの液化実験の結果について述べる。

2. 冷凍機概要

2.1 冷凍機の構成

Fig. 1 に試作した3段階膨張式 GM 冷凍機の基本的な構成と膨張機の写真を示す。この冷凍機はヘリウムガスを圧縮する圧縮機とこれを膨張させて寒冷を発生する膨張機から構成される。圧縮機の供給圧力は 2.1 MPa, 吸い込み圧力は 0.6 MPa である。

膨張機のシリンダ部は3つの直径の異なる SUS 304 製の薄肉シリンダからなる。それぞれのシリンダには無酸素銅製の冷凍ステージが金ロウ付けされている。Displacer 部は3つの直径の異なる displacer と、これらの中にそれぞれ組み込まれた蓄冷器および displacer の外周部に取り付けられたシールからなる。

Table 1 Displacers configuration.

	1st displacer	2nd displacer	3rd displacer
Diameter	52.4 mm	25.4 mm	12.0 mm
Length	128 mm	129 mm	145 mm
Regenerator's material	Phosphor bronze screen (150 mesh)	Lead shot (0.3 mm–0.5 mm)	GdRh & $\text{Gd}_{0.5}\text{Er}_{0.5}\text{Rh}$ grain (0.3 mm–0.5 mm)
Regenerator's weight	220 g	160 g	21 g (GdRh) 17 g ($\text{Gd}_{0.5}\text{Er}_{0.5}\text{Rh}$)

蓄冷器とシールの詳細は後述する。各 displacer の諸元を Table 1 に示す。第1段と第2段の displacer の材料には熱伝導率が小さく、熱膨張率が SUS 304 に比較的近いペークライトを使用した。第3段 displacer の材料には寸法精度がだしやすく極低温域では熱伝導率が小さくなる SUS 304 を使用した。各 displacer はピンで接続し自動的に軸出しができるようにした。Displacer 部はスコッチヨーク機構を介して往復運動する。ストロークは 2.54 cm である。駆動モーターには低速度同期モーターを用いた。モーターの回転速度は 72 rpm である。膨張機にはヘリウムガスの吸排を行う吸気バルブと排気バルブ（図示せず）が内蔵されている。これらのバルブも駆動モーターによって駆動される。

この冷凍機は従来の2段膨張式 GM 冷凍機と同じく構造が簡単で操作も容易である。以下にこの冷凍機の動作原理およびシール部と蓄冷器の詳細について述べる。

2.2 動作原理

この冷凍機の動作原理は一般の GM 冷凍機とまったく同じであり、寒冷の発生は圧縮機で圧縮したヘリウムガスを膨張機で膨張させて行う。まず、各膨張空間の体積がほぼ最小の状態では高圧のヘリウムガスを吸気バルブから膨張空間に導く。この時高圧のヘリウムガスは蓄冷器で冷却される。そして各膨張空間の体積がほぼ最大になるまで吸気バルブを開いたまま displacer 部を動かしヘリウムガスを各膨張空間に元填する。次に吸気バルブを閉じるとともに排気バルブを開け、各膨張空間のヘリウムガスを圧縮機の吸い込み圧力まで膨張させる。このとき各膨張空間で寒冷を発生する。膨張したヘリウムガスは各段の蓄冷器を冷却し自らは昇温され、排気バルブから圧縮機に戻る。最後に各膨張空間のヘリウムガスを displacer 部を動かして排出する。膨張空間の体積がほぼ最小の状態になったとき排気バルブを閉じるとともに、吸気バルブを開き1サイクルを終了する。この時蓄冷器の温度分布も最初の状態に戻っている。

2.3 発生冷凍量と熱損失

1 サイクル当りの発生冷凍量はヘリウムガスが理想気体とみなせる領域では膨張空間の図示仕事量すなわち PV 線図の面積に等しい。しかし極低温領域ではヘリウムガスの性質が理想気体からずれてくるので発生冷凍量も変化する。4.2 K での動作を考えると高圧、極低温状態のヘリウムガスの圧縮性は小さいので、発

生冷凍量は PV 線図の面積より減少していると考えられる。そこで第3段冷凍ステージの熱損失に対し従来以上の注意をはらわなければ、GM 冷凍機で液体ヘリウム温度を実現することはできない。試作した冷凍機は第2段冷凍ステージ温度が約 10 K になるように設計されているので、第2段と第3段冷凍ステージとの温度差が小さい。したがって伝導による損失や、shuttle 損失、pumping 損失は小さい。残る熱損失のおもなものはシールの漏れによる損失と、蓄冷器での損失であると考えられる。そこで筆者らはこの2つの損失に対しとくに注意をはらい研究を進めた。

2.4 シール

3段膨張式 GM 冷凍機の第1段シールにはテフロンシール (FLUOROCARBON 社製) を使用した。第2段シールにはシール面圧が小さくシール性能の高い step-cut タイプのピストンリングを使用している。ピストンリングがシリンダー内面によく密着するようにステンレス製の tension-ring を使用した。ピストンリングの材質はグラスファイバーで補強されたテフロンである。第3段シールには第2段シールと同じ step-cut タイプのピストンリングを使用している。第3段シールのもれ量と摩擦による発熱量は到達温度に大きく影響することが実験から明らかになった。そこで小さなシール面圧で良好なシール効果を得るために第3段シール部のシリンダー内面とシール当り面の面荒さをともに $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下に管理している。このときのしゅう動抵抗は 2.6 N、発熱量は 0.16 W であった。

2.5 蓄冷器

蓄冷器の機能は排気時のヘリウムガスの寒冷を次のサイクルで吸気されるヘリウムガスに与えることである。したがって蓄冷器の持つ熱容量は処理されるヘリウムガスの熱容量より十分大きいことが要求される。大きな熱容量を得るために蓄冷器を大きくすると、蓄冷器内部のヘリウムガスの量が増える。したがって1サイクル当りの処理流量が増え、大きな圧縮機が必要になる。また処理流量が増えると蓄冷器での損失を増大させる。そこで本研究では各段の蓄冷器の蓄冷材にそれぞれの動作温度領域で比熱の大きな材料を選び、蓄冷器を小型化するように努力した。Table 1 に示すように第1段と第2段の蓄冷器の蓄冷材は、それぞれ 150 メッシュの燐青銅の金網と鉛の小球を使用した。これらは従来からよく蓄冷材として用いられている。

第3段蓄冷器の蓄冷材には極低温領域で比熱の大きな希土類元素を含む化合物（以後希土類物質と呼ぶ）

Fig. 2 Specific heat of GdRh, $Gd_{0.5}Er_{0.5}Rh$ and Lead.

である GdRh と $Gd_{0.5}Er_{0.5}Rh$ を 2 層構造にして用いた。Fig. 2 に使用した希土類物質の比熱の温度変化（文献値）を示す⁸⁾。GdRh は 19 K で、 $Gd_{0.5}Er_{0.5}Rh$ は 5 K で磁気転移にともなう比熱のピークを持つことがわかる。このため GdRh は 20 K 以下で鉛より大きな比熱を持ち、 $Gd_{0.5}Er_{0.5}Rh$ は 7.5 K 以下で GdRh より大きな比熱を持つ。Fig. 3 に蓄冷材に使用した GdRh の写真を示す。蓄冷材に使用した GdRh と $Gd_{0.5}Er_{0.5}Rh$ の形状はともに砂状であり大きさは、0.3 mm から 0.5 mm である。

Fig. 3 Photograph of GdRh grains.

3. 実験方法

Fig. 4 に実験装置の概要を示す。膨張機はその冷凍発生部を真空断熱するために真空容器に取り付けられる。第 2 段冷凍ステージと第 3 段冷凍ステージは銅製の熱シールド板によって囲まれている。この熱シールド板は第 1 段冷凍ステージに取り付けられて、約 40 K に冷却される。第 3 段冷凍ステージには銅製の液化容器がインジウム箔を介して取り付けられている。ヘリウムガスは圧力調整器によって任意の圧力に減圧された後、膨張機の第 1 段ステージと第 2 段ステージで予冷され、そして液化容器の中に導入される。ヘリウム導入管には外径 2 mm、内径 1 mm のステンレス管を使用している。

第 1 段冷凍ステージと第 2 段冷凍ステージの温度計測には白金コバルト温度センサーを用いた。第 3 段冷凍ステージの温度計測には白金コバルト温度センサー（10 K 以上）とゲルマニウム抵抗温度計（10 K 以下）を用いた。液化速度の測定には常温部に取り付けた質

Fig. 4 Test configuration schematics.

量流量計を用いた。第3段冷凍ステージの温度はヘリウムの臨界温度 (5.22 K) 以下であれば圧力を調整することによって制御できる。第3段冷凍ステージの冷凍能力は、液化容器に取り付けた電気ヒーターから熱負荷を与えて測定した。

4. 実験結果

4.1 液化容器にヘリウムを入れない場合

まず Fig. 4 に示すバルブを閉じ、液化容器にヘリウムを入れない状態で第3段蓄冷器の蓄冷材を変えて、第3段冷凍ステージの到達温度の変化を調べた。その結果 GdRh を用いたときに到達温度 5.4 K を得た。次により低い到達温度を得るために GdRh と $Gd_{0.5}Er_{0.5}Rh$ を2層構造にして、これらの比率を変えて到達温度を測定した。Fig. 5 に GdRh の割合と到達温度の関係を示す。GdRh の比率が重量比で 55 % のとき最低到達温度 3.9 K が得られた。

4.2 液化容器にヘリウムを入れた場合

次にこの構成の蓄冷器を用いて3段膨張式 GM 冷凍機によるヘリウムの液化を試みた。液化実験は Fig. 4 に示すバルブを開き、液化容器にヘリウムガスを供給しながら行った。ヘリウムガスの供給圧力は 0.1013 MPa (大気圧) に調整した。Fig. 6 にこの冷凍機の初期冷却特性を示す。第1段冷凍ステージの温度は約 50 分で 40 K になり、この後定常になる。第2段冷凍ステージの温度は 35 分で 14 K になり、その後徐々に低下して 11 K になる。第3段冷凍ステージの温度は徐々に下がり、約 80 分で 6 K になる。20 K から 6 K

Fig. 5 Relation between ratio of GdRh to $Gd_{0.5}Er_{0.5}Rh$ and no load temperature of 3rd refrigeration stage temperature.

Fig. 6 Cooldown performance of three-stage Gifford-McMahon cycle cryogenic refrigerator with condensing chamber.

まで下がるときの勾配が急であるのは GdRh の比熱が 20 K で大きくなるためと考えられる。この後第3段冷凍ステージ温度はさらに下がり続け、約 200 分で 4.2 K になる。4.2 K になると第3段冷凍ステージの温度は一定になる。これは液化容器でヘリウムの液化が始まったことを示す。このときの液化速度は 10 cm^3/h であった。

第3段冷凍ステージの温度は、displacer の動きに同期して振動していた。この振動の振幅は液化容器に液体ヘリウムがない場合には 50 mK であったが、液体ヘリウムが溜まると 5 mK 以下になった。これは液体ヘリウムの熱容量が均熱の作用をしたためと考えられる。

ヘリウムガスの供給を止めると、ステージの温度は下がりはじめ、そして到達温度 3.3 K を記録した。このときの液化容器の圧力は 0.036 MPa であった。この圧力は 3.3 K でのヘリウムの飽和圧力に等しい。この最低到達温度はヘリウムを液化しないときに得られた記録 3.9 K より 0.6 K 低い。これは液体ヘリウムの熱容量が膨張過程を等温変化に近づけ冷凍能力を増大する働きをしたためと考えられる。

次にヘリウムガスの供給を止めた状態で液化容器に取り付けたヒーターを用いて冷凍能力を測定した。Fig. 7 に冷凍能力特性を示す。第3段冷凍ステージの冷凍能力は 4.2 K では 20 mW, 5.0 K では 50 mW であった。このとき圧縮機への電気入力 は 約 2.5 kW

Fig. 7 Refrigeration capacity performance of 3rd refrigeration stage of three-stage Gifford-McMahon cycle cryogenic refrigerator.

であったので、4.2 Kでの COP は 8×10^{-6} (20 mW/2.5 kW) となる。

5. ま と め

3段膨張式 Gifford-McMahon 冷凍機を試作し、こ

の冷凍機の第3段階蓄冷器の蓄冷材に GdRh と $\text{Gd}_{0.5}\text{Er}_{0.5}\text{Rh}$ を用いることによって到達温度の記録 3.3 K を達成するとともに、ヘリウムの液化に成功した。冷凍能力は 4.2 K で 20 mW であり、ヘリウムの液化能力は、 $10 \text{ cm}^3/\text{h}$ であった。補助冷凍機を用いない単体の蓄冷型冷凍機でヘリウムの液化に成功したのは、これが世界で初めてであろう。

参 考 文 献

- 1) H. O. McMahon and W. E. Gifford: Adv. Cryog. Eng. **5** (1960) 354
- 2) 低温工学協会関西支部低温工学ハンドブック編集委員会編：低温工学ハンドブック，内田老鶴園新社 (1982) 370
- 3) Ray Radebaugh: Proc. of ICEC-9 (1982) 761
- 4) R. W. Stuart and B. M. Cohen: Adv. Cryog. Eng. **15** (1970) 428
- 5) J. E. Zimmerman and D. B. Sullivan: Cryogenics **19** (1979) 170
- 6) Y. Matsubara and M. Kaneko: Refrigeration for Cryogenic Sensors NASA CP-2287 (1983) 157
- 7) H. Nakashima, K. Ishibashi and Y. Ishizaki: Proc. of ICEC-10 (1984) 54
- 8) K. H. J. Buschow, J. F. Olijhoek, and A. R. Miedema: Cryogenics **15** (1975) 261