特集 —— 低温と高圧力下物性研究の未来 ——

小型 GM 冷凍機を用いた 1 K 以下の
極低温環境の実現Realization of Temperature Environment below
1 K Using a Compact GM Refrigerator

西岡 孝

Takashi NISHIOKA

In this article, we describe the method attaining low temperatures below 1 K using a commercial compact GM refrigerator. The main part of this system consists of 4 K plate attached to the second cooling stage of GM refrigerator, 1 K pot and ^3He pot, which are covered with three radiation shields attached to the first stage of GM refrigerator, 4 K pot and 1 K pot. The required time to reach temperatures below 1 K is within 6 hours, and temperatures below 0.5 K can be maintained for more than one day by one-shot operation. This system can be applied to terahertz industry as well as low temperature physics.

[GM refrigerator, heavy fermion, low temperature physics, pressure cell, Kochi University style]

1. はじめに

重い電子系[1]の研究は旧帝大をはじめとする大きな大学・研究機関を中心に進められている。重い電子系の研究には、純良単結晶の育成、多重極限（極低温、高圧、強磁場）環境下での巨視的・微視的測定などの厳しい実験環境が必要とされ、地方大学のみでこれらの研究を行うことは大変難しいという現状がある。これらの中で特に極低温の実現は困難である。液体ヘリウムを用いれば 1 K 以下の極低温環境はいくらかの低温技術があれば比較的簡単に実現できる。ヘリウムは希少資源であり高価であるために、ヘリウム液化機でリサイクルして極低温研究を行なっているのが現状であるが、これにはいくつかの問題点がある。一つ目は、液化機は高価であり維持に手間がかかるので、低温を利用する研究者が多い研究機関しか導入することはできないことである。このため液化機の有無で研究が左右され、大学間に大きな格差を生んでいる。二つ目は、リサイクルしているとはいえ、希少資源であるヘリウムを

浪費するということである。ヘリウムが枯渇してしまうと低温研究はできなくなる。三つ目は、現状では極低温環境は実験室でしか利用できないということである。極低温環境が必要なのは物理の基礎研究だけではない。電波天文学におけるミリ波・サブミリ波検出による暗い星の観測や次世代の巨大産業と言われるテラヘルツ産業に必要な技術である。極低温は特殊な環境であると思われていたために積極的な応用を考えてこなかっただけで、さらに広い活用範囲があるかもしれない。これらの問題を一気に解決するのが高知大学方式 GM 冷凍機である[2,3]。

2. 従来の冷凍機の問題点

4 K GM 冷凍機[4]はボタン一つで容易に 4 K 程度の低温を実現できるので、MRI やリニアモーターカーなどに利用されているが、物性研究ではあまり多くは利用されていない。これは物性研究に必要な 1 K 以下の温度を実現することが容易でないことに加えて、冷凍機の温度振動は 4 K 付近で絶対温

度の 10% 近くにもなり、そのままでは精密な物性実験には利用するのが困難なためである。しかし、液体ヘリウムを浪費せずに低温を実現できるということは魅力的なことであり、1990 年代から冷凍機を用いた 1 K 以下の極低温環境の開発は行われてきた[5,6]。しかしそれらの装置にはジュール=トムソン効果が使われており、確かにヘリウムを浪費せずに安定に 1 K 以下を実現できるもののシステムが大規模で高価になり誰もが安易に利用できるものではなかった。現在では、冷凍機を利用した 1 K 以下の開発の重要性が強く認識され、その開発は活発になってきているが、研究利用に重点がおかれた性能重視のものであり小型化は意識されていない。高知大学方式 GM 冷凍機は、GM 冷凍機をそのまま用いたカスケード方式の単純な構造で、その長さは全長 100 mm 程度の小型なものであり、製作費は 100 万円を超えることはない。単純な構造であるがゆえに安価であり屋外へ持ち出すことも可能である。高知大学方式 GM 冷凍機により、上に挙げた三つの問題は全て解決され、さらに開発を進めることでヘリウム液化機は不要となるであろう。

3. 高知大学方式 GM 冷凍機の概要

3.1 使用する冷凍機

使用する冷凍機は標準的な二段式 4 K GM 冷凍機である。適切な輻射シールドを使用すれば、一段目は 40 K 程度、二段目は 3 K 程度まで冷却できる。高知大学方式冷凍機では、3.5 K まで温度が下がることを必要とする。4 K GM 冷凍機は 4.2 K における冷却能力で分類されている。一番小型のものは 0.1 W であり、0.4 W、0.5 W、1.0 W、1.5 W がこれに続く。冷却能力が大きな冷凍機はそれに応じた価格、大きさ、消費電力である。できるだけ小さな冷凍機を使うことが望ましいが 0.1 W 冷凍機は冷却に時間を要するために筆者たちは 0.5 W のものを用いている。住友重機械工業が圧倒的なシェアを誇るが、岩谷産業、アルバッククライオなどの冷凍機も、大きさ、性能ともにほぼ同等である。GM 冷凍機の性能は購入したロットによって若干のばらつきはあるものの、運転を繰り返してもその性能は安定している。筆者の経験では数千時間運転しても初期運転とほとんど性能は変化しない。

Fig. 1. Cross sectional view drawn to equal scale of three kinds of Kochi University style GM refrigerators. The part indicated by the hatch is a GM refrigerator body. The indicated numbers are as follows: ① 4 K plate, ② 1 K plate, ③ ^3He pot, ④ 50 K shield, ⑤ 4 K shield, ⑥ 1 K shield ⑦ upper flange, ⑧ lower flange, ⑨ vacuum jacket, ⑩ 1 K line, ⑪ ^3He line, ⑫ 4 K shield line.

3.2 構成概要

Fig. 1 は高知大学方式冷凍機の断面図を等縮尺で示したものである。高知大学方式冷凍機は様々な構成が可能であり、ここでは代表的な三つの例を示す。(a)は ^3He 冷凍機であり、(b)と(c)は 1 K 冷凍機である。(b)と(c)の違いは 4 K シールドの有無であり、(c)は一番単純な構成になっている。ハッチで示した部分は GM 冷凍機本体である。これらの構造に共通している部分は、GM 冷凍機のフランジに取り付けられた二つのアダプター⑦と⑧である。上部アダプター⑦にはいくつかのポートが設けられており、温度計や測定用の配線、断熱真空内の排気、安全弁、真空計などが取り付けられている。下部アダプターには 4 K plate, 1 K pot, ^3He pot の配管が取り付けられている。Fig. 2 に ^3He 冷凍機の場合の 4 K plate の設計図を示す。図からわかるように、これらの配管は NW カップリングを外すことで容易に取り外すことができる構造になっている。配管の曲がっている部分は薄肉ペローチューブ (swagelok 製 R321-4-X-4 長さ 100 mm, 内径 1/4 インチ, 肉厚 0.15 mm) が用いられている。これにより、熱伝導を小さくして管のコンダクタンスを大きくすることができる。

Fig. 1a は、現時点で最も完全な ^3He 冷凍機の構成である。二段冷却ステージに厚さ 8 mm 程度の① 4 K plate を取り付けその下に、② 1 K pot と③ ^3He

Fig. 2. Example of 4 K plate drawing.

pot が取り付けられている。輻射シールドは一段冷却ステージに取り付けられた④ 50 K シールド, 2 段冷却ステージに取り付けられた⑤ 4 K シールド, 1 K pot に取り付けられた⑥ 1 K シールドからなる。4 K シールドは断熱シールドになっており交換ガスが入れられるように配管が接続されている。各 pot をつなぐ管は ^3He line に関しては $\phi 3$, 1 K line に関しては $\phi 4$, それぞれの肉厚 0.2 mm の CuNi 管で接続されている。pot 間の距離は 50 mm あれば十分である。CuNi 管の代わりに, SUS 管を用いても構わない。肉厚が多少太くてもさほど問題にはならない。

Fig. 1b は 1 K 冷凍機である。(a) から ^3He pot とその line と 1 K シールドが外されている構造である。(b) では (a) で省略されていた 4 K シールドの排気 line ⑫ が描かれている。(c) は最も簡単な 1 K 冷凍機である。ここでは (b) の状態からさらに 4 K シールドとその排気 line が外されている。この構成は 4 K plate と 1 K pot に加えて 1 つの排気 line だけであるので, 冷凍機を購入してとりあえず 1 K まで冷却したいというときは最適な構造である。

冷凍機を利用する場合に避けて通れないのは保守点検であるが, 高知大学方式冷凍機は NW カップリングとねじ止めだけであるので, 1 時間もあればすべてを取り外し元の状態に戻すことが可能である。

3.3 運転方法

Fig. 3 に最も単純なシステム全体のブロックダイヤグラムを示す。冷凍機のはかに必要なものは, (d) ロータリーポンプ, (a) ^4He コンテナ, (b)

Fig. 3. Schematic block diagram of Kochi University style GM refrigerator system. The symbols are as follows. V1~V6: valve, P1~P3: pressure gauge, a: ^4He container (45 L), b: ^4He cylinder (7 m³), c: ^3He gas handling system, d: rotary pump (200 L/min.), (1) vacuum jacket line, (2) 1 K line, (3) 4 K shield line, (4) ^3He line.

^4He ポンペ, (c) ^3He ガスハンドリングシステム (GHS) に加えて, いくつかのバルブと圧力計である。クライオスタットからは 4 つのポートが出ている。(1)は断熱真空, (2)は 1 K pot, (3)は 4 K シールド, (4)は ^3He pot の排気に用いる。1 K クライオスタットとして用いる場合は ^3He line は不要である。具体的な運転手順は次のようになる。

Fig. 1c の場合は, ^4He ボンベから約 1 atm の ^4He gas を ^4He コンテナに入れて, バルブ V8 を閉じる。次にロータリーポンプで断熱真空と 1 K pot を真空引きする。室温で 30 分も引けば十分である, 次にバルブ V4 と V7 を開けて 1 K pot に ^4He ガスを導入し, 冷凍機のスイッチを入れる。2 時間程度で液化が始まり, 10 L 程度液化したところで V4 バルブを閉じ, 3.5 K 以下になるまで 1 時間ほど待つ。3.5 K 以下になればバルブ V7 を閉じバルブ V6 を開いて 1 K pot をロータリーポンプで排気する。200 L/min のポンプで容易に 1.2 K 以下までに到達する。冷凍機のスイッチを入れてから 1.2 K に到達する時間は約 3 時間となる。

Fig. 1b は構造が単純であるという利点はあるが, 冷却は配管を通しただけであるために圧力セルのように熱容量の大きなものを冷却する場合は長時間を

要する。Fig. 1c は Fig. 1b に 4 K シールドが付け加えられたものである。4 K シールドの役割は ^4He ガスで熱交換し pot を冷却することである。運転操作としては Fig. 1c と同様であるが、1 K pot の上部に charcoal を 1 g 程度置き、室温で ^4He ガスを 0.01 気圧程度入れておく。charcoal は交換ガスとして入れた ^4He ガスを自動的に排気するためのものである。charcoal は事前に室温でビーカーに入れて 600 W の電子レンジで 1 分程度熱すればよい。4 K シールドがある程度大きな熱容量を持っているので、冷却に至る時間は約 3 時間となるが、配管の太さや熱容量にはほとんど関係ない。1 K に到達する時間は 4 時間程度である。4 K シールドの利点はかなり熱容量が大きくなっても冷却時間がほとんど変わらないことである。次節で述べる 4 K plate と 1 K pot の管の太さや 1 K pot の熱容量にもよるが、数時間で 4 K 程度に到達し液化が始まる。電気抵抗測定のように小型の測定の場合は室温で 10 L 程度のヘリウムを液化したら、バルブを閉じて液化を中止し、30 分程度待ち、1.2 K 以下に到達する。最低温度は Fig. 1c に比べて 0.1 K 以上低くなる。

Fig. 1a は ^3He クライオスタットとして使う場合である。4 K シールドがなくても ^3He 温度を実現することは可能であるが、そうすると冷却に 1 日以上要するので、4 K シールドを使ったほうがよい。 ^3He クライオスタットとして使う場合は、室温で ^3He pot にヘリウムガスを室温で入れておく。 ^3He を入れるのは液化が始まってからでも構わない。charcoal は ^3He pot の上に置いておく。また、 ^4He コンテナに充てんする ^4He の圧力は 2 atm 程度にしておく。これにより、液化速度が速くなる。この場合も Fig. 1b と同様で、3 時間程度で液化が始まるが、1 K pot で ^3He を液化する必要があるので 20 L 程度の ^4He を液化する必要があるために 3.5 K に到達するのにさらに 2 時間要する。3.5 K 以下になったら、1 K pot を働かせるとただちに液化が始まり、3 L 程度の ^3He であれば 15 分後には液化は終了し、 ^3He GHS を働かすことでただちに 0.4 K 程度に到達する。 ^3He 温度に到達する時間は大体 5 時間であり、これは圧力セルを冷却する場合でも変わらない。

3.4 輻射シールド

高知大学方式冷凍機において、輻射シールドは非常に重要である。Fig. 1a では 3 つの輻射シールド

Fig. 4. (Color online) Difference between the cooling process of 50 K radiation shield by the presence of superinsulation. The shield is made of (a) Cu (3×200 mm in length, 1 mm in thickness) and (b) Al (300 mm in length, 2 mm in thickness).

が描かれているが、この中で輻射シールドとして重要なのは 50 K シールドのみである。

Fig. 4 はスーパー・インシュレーション (SI) の有無による 50 K シールドの冷却過程の様子を示している。SI は 5 重に巻いてあり、SI 間にはキムワイプあるいはキムタオルが挟まれている。Fig. 4a は約 1 mm の肉厚、長さ 20 cm 程度の銅製のシールドを 3 段接続した場合の 50 K シールドの底から 5 cm 程度の位置における冷却の様子を示したものである。輻射シールドがない場合は 130 K にもなるが、輻射シールドを取り付けると 60 K 程度まで下がる。輻射シールドを取り付けたときの外側の温度は約 200 K であり、輻射シールドの有効性がわかる。この実験の場合は輻射シールドの外側の温度計は中央付近に取り付けたために、初期の冷却は早くなっている。輻射シールドの温度が 100 K 以上では ^3He

温度の実現は不可能であるので、SI の使用は不可欠である。しかし、輻射シールドとして肉厚の Al を使用した場合は必ずしも SI は必要ない。

Fig. 4b は肉厚 2 mm、長さ 30 cm 程度の Al 製の 50 K シールドのス SI の効果を調べたものである。この場合は SI がなくても 60 K 程度まで下がっており、輻射シールドを巻くとさらに 10 K 程度下がる。Al の利点は輻射率が銅に比べて小さいことと密度が小さいために肉厚にしても重くならないということである。また、1 段冷却ステージと輻射シールドの接触は面が平らであればそのままねじ止めすればよい。アピエゾン等の熱伝導のためのグリースは不要である。

3.5 冷却時間

実際に実験を行う場合、どの程度の時間で冷却できるかは非常に大きな問題である。冷却時間は 4 K シールドの有無に大きく影響する。4 K シールドがない場合の冷却は主にパイプ内のヘリウムガスによる熱伝導である。パイプの材料による熱伝導は CuNi 管や SUS 管を使っている限りガスの熱伝導に比べて無視できる。したがって冷却時間はパイプの太さと pot の熱容量に依存する。Fig. 5 は 1 K クライオスタットの冷却の様子を示したものであり、1 K pot としては圧力セル用の大きなものを利用している。4 K シールドがない場合は、 $\phi 15$ の管を使った場合は 7 時間程度で冷えるが、 $\phi 10$ の管の場合は 1 日以上かかり、 $\phi 5$ の場合は 4 日たっても液化が始まらない。 $\phi 15$ の場合は適度な時間で冷えるものの、最低温度は 1.3 K 程度に留まる。 $\phi 10$ の場合は 1.2 K 程度まで下がるので、配管の太さは細いほうがいいことになる。パイプは pot を支える役割も担っているのである程度の強度も重要であり、その場合は $\phi 4$ 程度が望ましいことになるが、4 K シールドがない状態では液化できない。

4 K シールドを付けた場合に冷却時間は大きく改善される。Fig. 5 からわかるように $\phi 4$ のパイプを使った場合でも冷却時間は 3 時間程度であり、これは圧力セルを入れても、 ^3He pot を入れてもほとんど関係しない。しかし、断熱真空にしなければならないために、リード線の導入や配管の工夫などかなり面倒になる。対して、4 K シールドを使う場合は室温で入れた ^4He ガスを排気する必要がある。これは、油拡散ポンプやターボ分子ポンプで排気してもいいが、1 K pot あるいは ^3He pot の上に 1 g 程

Fig. 5. (Color online) Cooling process of 1 K pot for several dimensions of pipe between 4 K plate and 1 K pot.

度の charcoal を載せておけば十分である。charcoal は実験が始まる前に電子レンジを用いて 600 W で 1 分ほど熱すればよい。また、1 K pot に入れる ^4He ガスの圧力は 4 K までの冷却時間にはほとんど依存しない。

3.6 液化時間

1 K pot にはあらかじめ ^4He ガスを入れておく必要があるが、4 K 程度までの冷却時間は ^4He ガスの圧力にはほとんど依存しない。しかし、4 K 付近に到達してからの液化時間は ^4He ガスの圧力に大きく依存する。1 K を 2 時間程度維持するには室温で 10 L 程度の ^4He ガスを用いなければならないが、1 atm の場合は約 90 分要するのに対し、2 atm の場合は 30 分以内で済む。これは加圧により ^4He の沸点が上がるためである。さらに圧力を上げればもう少し短くなると考えられるが、配管の接続に使用している NW カップリングが 3 気圧以上では確実に漏れてくるので、高圧の液化速度は調べていない。新たに作る場合は、10 atm 程度の高圧に耐えられるような配管にした方がいいであろう。

3.7 低温保持時間

液体ヘリウムの実験を経験した研究者であれば、ガラスデュワーを用いた場合に液体ヘリウム 1 L で約 1 日、という感覚を持っていることと思う。液体 1 L といえば室温の ^4He ガスにすると 700 L にもなり、これでは上述のように 20 L 程度の液化ではただちにヘリウムが枯れてしまうと思われるかもしれない。筆者も当初そのように考えており、したがっ

て小型冷凍機で 1 K を長時間維持するのは難しいと考えていた。しかし実際には注意深く製作すると、20 L の液化で 12 時間程度 1.2 K を維持することができる。これは通常の物性実験ではほとんど問題はなく、さらに長時間実験したい場合は、より多くの ^4He を液化すればよい。液化したい量に応じて 1 K pot の大きさは決まるが、筆者たちのグループでは 50 cc 程度の容積にしている。

3.8 温度振動

GM 冷凍機の大きな問題点の一つは温度振動である。これは 4 K 付近で 0.3 K にもなるが、高知大学方式は低温で熱容量の大きなヘリウムガスを液化するので、温度振動は 1 mK 以下になる。これは液体ヘリウムを用いた通常の実験とほとんど変わらない。なお、4 K 程度の実験でいいが温度振動を抑えたい場合は、肉厚の銅容器に室温で 100 atm 程度のヘリウムガスを充てんした He pot を二段冷却ステージの下に取り付ければ、約 4.5 K 以下で温度振動を 10 mK 以下に低減することができる[7]。これには配管は必要ない。

3.9 測定例

高知大学方式冷凍機は様々なアレンジが可能である。 ^3He pot の入りを In で開閉できるようにしておけば、試料を pot の中にジャブ漬けにした状態で測定ができる。また、比熱や熱伝導のように断熱条件下で測定したい場合は、pot の底面を利用すればよい。Fig. 6 は交流磁化率の測定結果を示したも

Fig. 6. (Color online) Temperature dependence of ac magnetic susceptibility of several superconducting materials using Kochi University style GM refrigerator.

のである。検出コイルと試料は pot の中に入れられている。

高知大学方式冷凍機が光学実験にも利用できる。筆者たちのグループでは、企業との共同研究においてテラヘルツ検出器 (STJ) に利用することができるかどうかを調べた。結果は良好で、 ^3He 温度の維持時間が約半分になるものの 3 L の ^3He ガスで 30 時間以上もち、しかも最低温度はほとんど変わらなかった。物性の光学実験に利用することもできるであろう。

4. 今後の課題

我々は冷凍機のみであらゆる物性実験ができるシステムを目指している。そのためにはいくつかの課題がある。一つ目は 1 K pot の永続運転が必要であり、そのためにはヘリウムを循環させる必要がある。これは希釈冷凍機で用いる技術をそのまま利用すればいいが、若干の構造の工夫は必要である。現在 1.8 K 程度の永続運転には成功しているがさらに低い温度にするためにはインピーダンスや 4 K plate の最適化を図る必要がある。二つ目の課題は携帯できる大きさにするのである。これを達成するためには charcoal をポンプの代わりに利用する必要がある。最低温度もさらに低くなる。これにより、中性子回折の実験などでも簡単に利用できるばかりでなく、電波天文学やテラヘルツ産業にも適用しやすくなる。しかし携帯するためには、0.5 W 冷凍機では若干大きい。では 0.1 W 冷凍機では ^3He 温度が実現できるだろうか。今までの筆者たちの試験結果から、配管による熱の流入は 0.01 W 以下であり、0.1 W 冷凍機でも十分に ^3He 温度が実現できるという見通しが立っている。ただし、低温に到達する時間はある程度長くなることが予測される。高知大学方式冷凍機の利点はヘリウムを液化するのでいったん冷却されれば、冷却能力の違いは冷凍機の冷却能力には依存しないということである。現在 0.1 W 冷凍機の開発を進めており、半年後にはその結果が出ていることであろう。また、希釈冷凍機への発展は相応の支援があれば可能である。

5. おわりに

液体ヘリウムを用いた今のような研究があと 100 年続くことはないというのは研究者であれば誰でも

認識していることと思う。冷凍機を用いた極低温の開発が必要であるにもかかわらず、それに最も精通している研究者がその開発を怠ってきた。これは研究に追われてその余裕がなかったためであろう。しかし筆者たちは必要に駆られてこの開発を行ってきた。物性研究は大型予算によるプロジェクト研究も必要であるが、それに加えて草の根的な研究が必要である。実際多くの物性分野で地方大学が多くの成果を挙げている。しかし、こと低温研究に関しては地方大学の活躍は芳しくない。筆者たちの開発により、極低温は特別な環境ではなくなり、どの研究機関でも利用できるようになった。ぜひ低温に興味のある多くの研究者に活用していただきたい。

謝 辞

本開発は歴代の研究室の学生の努力に負うところが多い。地道な仕事をコツコツとやってくれたことにはただただ感謝するばかりである。また、松村政博教授、加藤治一准教授、川村和夫教授からは絶えず励ましの言葉をいただいた。そして、数多くの資

金提供がなければこの開発は不可能であった。学長裁量経費、JST シーズ発掘試験、科学研究費補助金、国立天文台、企業との共同研究に深く感謝する。

参考文献

- [1] 上田和夫, 大貫淳睦: 重い電子系の物理 (裳華房, 東京, 1998).
- [2] 特願 2007-68981, 極低温冷凍機, 西岡孝, 国立大学法人高知大学.
- [3] T. Nishioka, T. Sumida, T. Takesaka, Y. Kawamura, H. Kato, M. Matsumura: J. Phys.: Conf. Ser., **150**, 012030 (2009).
- [4] 田沼静一, 馬宮孝好編: 近低温 (共立出版, 東京, 1998).
- [5] K. Uhlig, W. Hehn: Cryogenics, **34**, 587 (1994).
- [6] T. Shimazaki, K. Toyoda, O. Tamura: Rev. Sci. Inst., **77**, 034902 (2006).
- [7] K. Okidono, T. Oota, H. Kurihara, T. Sumida, T. Nishioka, H. Kato, M. Matsumura, O. Sasaki: LT26 proceedings (2012).

[2012 年 3 月 19 日受付, 2012 年 4 月 12 日受理]

© 2012 日本高圧力学会