



Title	無冷媒冷凍技術と低温物性測定技術を融合した新しい装置開発
Author(s)	西岡, 颯太郎; 西岡, 孝; 八木, 雄輔 他
Citation	大阪大学低温センターだより. 2020, 170, p. 8-13
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/76747
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

無冷媒冷凍技術と低温物性測定技術を融合した新しい装置開発

阪大院基礎工¹, 高知大院理² 西岡颯太郎^{1,2}, 西岡孝^{2*}, 八木雄輔¹, 棕田秀和^{1**}

*E-mail: nisioka@kochi-u.ac.jp

**E-mail: mukuda@mp.es.osaka-u.ac.jp

1. はじめに

「ヘリウム一滴は血の一滴」～低温センターだよりにたびたび登場するこのフレーズは、かつて貴重なヘリウムを無駄なく研究に使うことを説いた「昭和」の戒めであった[1]。いつかヘリウムは枯渇する、という危機感をもって研究に励んでいたことを諸先輩方から伝え聞いてきた。ヘリウムは現在も100%輸入に頼っており、主にアメリカやカタールから輸入されている。低温実験に液体ヘリウムは欠かせないが、日本国内においてMRIや半導体製造など研究用途以外でも様々な分野でヘリウムが使用されており、近年中国をはじめとするアジア諸国で半導体用途での需要も急激に増してきた。「平成」「令和」へ至る間、ヘリウムガスの供給不安の波が幾度も押し寄せ、その都度この戒めが脳裏に蘇ってきた。さらに最近追い打ちをかけるようにヘリウムの世界生産量6割を占めるアメリカが国外への販売を2021年に停止することを決め、ヘリウムの入手困難や価格高騰の混乱を招いている。そのような中であっても液体ヘリウムを安定供給してくださっている阪大低温センターの存在はとても心強い限りであるが、低温寒剤が不要となる無冷媒冷凍機の話近年様々な場で耳にするようになってきた。無冷媒冷凍技術と各種物性測定技術の融合によってどのような利点、欠点があるのか？ 今回本誌編集委員長より依頼を受け、現在基礎工の博士課程に所属する西岡（颯）が高知大の西岡研時代に行った無冷媒比熱測定装置の開発 (§2)、および棕田が中心となり基礎工で行ってきた固体NMR実験に最適化した無冷媒超伝導磁石NMR装置の開発 (§3)の経過を紹介する。

2. 小型GM冷凍機を用いた無冷媒式断熱法比熱測定装置の開発

液体ヘリウムが利用できない高知大では、以前から無冷媒冷凍機を用いた様々な測定装置の開発やクライオスタットの小型化を行ってきた。小型化は単に省スペースであるだけでなく、冷却部分が小さくなるため0.1 Wのような低出力の冷凍機でも十分冷やすことが可能となる。これにより導入コストやランニングコストを抑えることができ、経済的で環境に優しい装置が出来上がった。GM冷凍機には本体内部にガスを輸送するためのクランク機構を有しているため、機械的、温度的振動が大きいという欠点がある。電気抵抗や磁化測定などではそれほど問題とはならないが、比熱や熱伝導測定では測定手法上、温度変化に非常に敏感なため温度振動を抑える必要がある。本章では、GM冷凍機により発生する温度振動を抑える対策をした比熱測定装置の開発について報告を行う。

最初に開発した装置の外観図を図1に示す。上部のメタリックな部分が冷凍機本体の冷却ヘッドであり、ここが4 K以下まで冷える。その下にはステンレスパイプを挟んでHe potが設置されている。

さらにその下に比熱測定の主となるアデンダ***とその支持部がある。冷却ヘッドのそばにはヘリウムガス導入管が設けられており、ここから入ってきたガスを冷却ヘッドで液化させてHe pot内に貯蔵する。ワンショットタイプになるが、液化させたヘリウムを真空引きすることで1 K台にまで冷却できる。また、我々はHe potの下にもう一段potを取り付け、 ^3He を用いることで1 K以下の極低温環境を得ることに成功している。

このような方式で極低温を容易に得ることができるが、GM冷凍機には先に述べたように機械的、温度的振動が大きいという欠点がある。温度振動については、冷凍機によるがおよそ100 mK以上の振動が冷却ヘッドで観測されている(図2:左)。この振動を熱伝導の悪いステンレスパイプによって減衰させ、He pot内に蓄えた液体ヘリウムの熱容量で吸収させることにより、数mKにまで抑えることができています(図2:左)。ステンレスパイプをより伸ばすなどすることでより振動を抑えることもできるが、He potの冷却にかかる時間が延びてしまうので調節が必要である。

通常の比熱測定装置では、アデンダは熱浴でもある支持部から熱伝導の悪い材質の糸で吊るされて断熱状態におかれる。しかし、機械的振動も大きいGM冷凍機でこの手法を用いると、アデンダと支持部が異なる周期で振動し、糸が伸び縮みすることで温度振動が発生してしまう。いくら上で述べた方法でGM冷凍機の温度振動を抑えても、従来のアデンダでは機械振動が温度振動へと変換されてしまうのである(図2:右)。我々はこれに対処するため、熱伝導の悪い薄いパイプでアデンダを支える方式にした。こうすることでアデンダと支持部が同じタイミングで振動し、機械振動が温

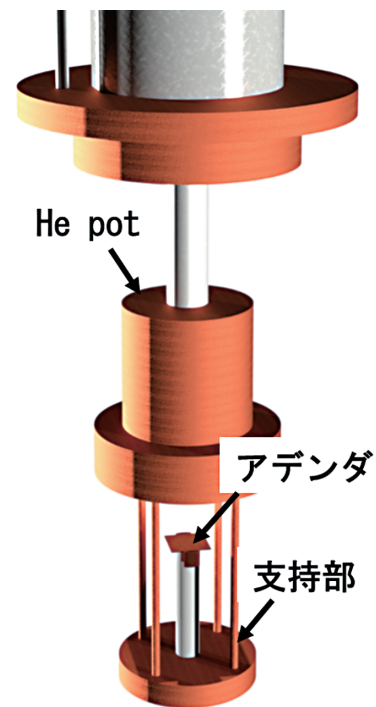


図1.GM冷凍機を用いて開発した比熱測定装置の外観図

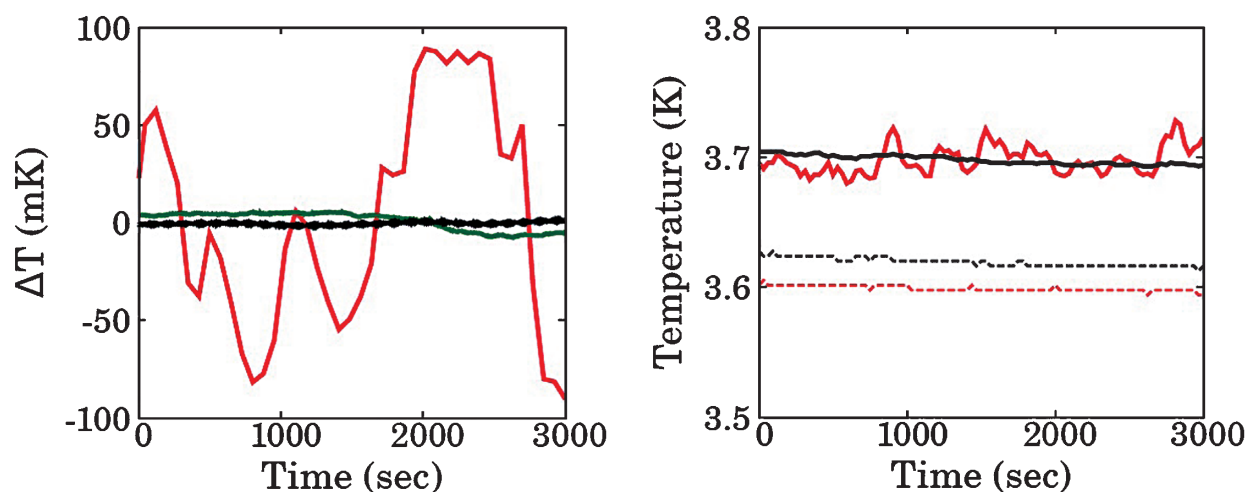


図2. (左) 支持部(熱浴)の温度振動。それぞれ、赤：冷却ヘッド部分、緑：ヘリウムの液化なし、黒：ヘリウムの液化ありの温度振動。対策を重ねるごとに温度振動が収まってゆく。(右) アデンダの温度振動。それぞれ、赤：従来の吊り下げ型、黒：新しいパイプ型のアデンダ。点線はその時の支持部(熱浴)の温度振動。従来型では熱浴が安定していてもアデンダは振動し続けている。

度振動へと変換されることはなく、安定した温度を得られるようになった(図2:右)。結局のところアデンドは機械的には振動してしまっているが、温度振動さえなければ比熱測定を行う上では問題とならない。パイプの材質についてはいくつか試したが、最終的にパラフィン紙を用いた。

最後に、開発した装置を用いて行ったAgの測定結果と文献値[2] (NBS, 現NIST)の比較のデータを図3に示す。1.5 ~ 200 Kの温度範囲で測定を行っており、非常によく一致していることが分かる。これにより、温度振動に敏感な比熱の測定がGM冷凍機を用いた小型クライオスタットにおいても可能であることがわかった。この測定装置を用いて未解明の希土類磁性体の物性研究を行うことができた。他にも温度安定性が重要となる熱伝導のような測定も同じような構造で実現できると考えられ、様々な無冷媒式物性測定装置へも応用が期待される。

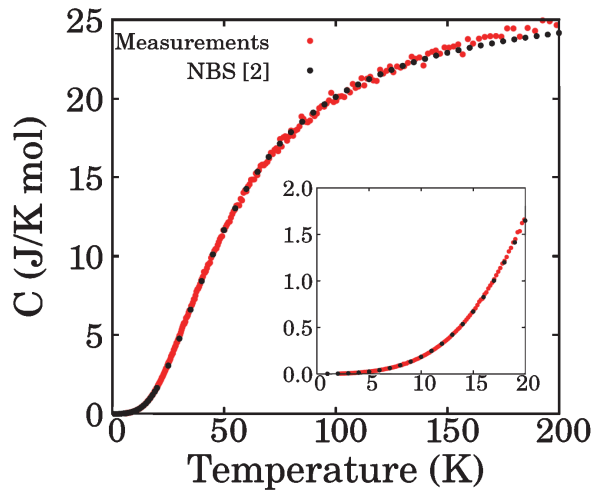


図3. 標準試料として測定したAgの比熱。文献データ[2] (NBS, 現NIST)を再現。

3. 極低温から超高温域まで可能な無冷媒超伝導磁石NMR装置の開発

ダイヤモンドアンビルを用いたNMR測定の開発過程において、微小信号の高感度検出の最適条件探しの実験で室温を保持すると、我々の所有する低温測定に最適化した超伝導磁石では液体ヘリウムが激しく蒸発し液面が急降下する。長時間積算で初めて観測できる微弱信号の測定には大問題であった。最近始めた熱電材料の研究でも今後室温をはるかに超えた高温域までの測定が必要となる日がくる。極低温(～100 mK)から超高温域まで一つの無冷媒超伝導磁石でNMR測定できるようにしたい。現在の我々のNMR装置は、超伝導磁石だけでなく、その傍の広帯域NMRプリアンプにも独立に寒剤を要する。室温動作のプリアンプが一般的であるが、より性能のよい液体窒素冷却タイプのものを使用している。これらをまとめて1台の無冷媒冷凍機で冷やせたらとてもコンパクトになりかつ独自装置となる。最大磁場9テスラの高均一超伝導コイルと無冷媒GM冷凍機を個別に購入し、真空チャンバーを町工場で作ってもらい、昨年度から研究室で自作している。初めての試みであるため、次のように慎重にステップを踏んで製作および性能テストを行っている。

- (1) 真空チャンバーに超伝導磁石だけを組み込んでの冷却試験
 - (2) 超伝導磁石に電流を流して最大 9 テスラまでの磁場発生試験
 - (3) 広帯域 NMR プリアンプを組み込んで再度の冷却試験および磁場発生試験
 - (4) 通常の寒剤冷却型メタルデュアーを組み合わせ「半無冷媒」での NMR 試験運転
 - (5) 測定試料も同じ冷凍機で冷却させる「完全無冷媒型」に改造，ガス循環で長期運転
 - (6) 小型希釈冷凍機を組み合わせ、100 mK までの極低温 NMR 測定と長期運転試験
 - (7) 超高温用 (<1,000 K) までに対応した高断熱デュアーと組み合わせた超高温域 NMR 開発
 - (8) 超伝導線材を変えて最大 15 テスラ高均一磁場 NMR 装置に改造．
- 目標最終形（完全無冷媒，高均一 15 テスラ，温度域 0.1 ～ 1,000 K, NMR プリアンプ付）

超伝導磁石だけを冷やした(1)では、冷凍機だけが先に冷え、30 kg 近い金属の塊であるコイル本体は取り残されながらもじわじわ追いかける形で冷える。12時間を越え50 Kを切ったあたりで一気に3 Kまで冷えるのは壮観である。超伝導磁石へ電流を流した(2)では、磁場掃引速度が速いほど渦電流によるジュール熱でマグネット本体の温度が上がるのが明瞭に観測できる。温度が上がりすぎると超伝導磁石がクエンチ（磁場が一瞬でゼロに落ちる現象）するため、どこまで速く掃引できるか、安全な最高掃引速度を確認する。おそろおそろ最大9テスラに達すると、しばらく放置して安定度確かめ、祝杯を上げた。

ここまでは順調に一発クリアできたが、NMR プリアンプを組み込んだ(3)はやや手間取った。最大磁場9テスラの直前約8.9テスラで超伝導磁石が毎度クエンチするようになった。クエンチすると磁場は一気にゼロに落ち、30 kg 近いマグネット本体の温度は3 Kから瞬く間に60 K程度まで上がる。原因は、結論から言うとこの過程で初めて導入したNMR プリアンプの細いセミリジッドケーブルからの輻射熱であった。室温部から1st stage（50 K程度）に入るこのケーブルは、途中で曲がりくねりながら磁石の傍を通っていた。室温に近いこの部分からの輻射熱が怪しいということで、ケーブルの熱アンカーをしっかりとったところ、クエンチせず毎度9テスラまで往復できるようになった。ほんの僅かな輻射熱と軽視していたが、最大磁場ぎりぎりの超伝導線にとっては非常に大きな影響があることを実感した。ちなみに液体ヘリウムが急激に吹き出す「通常のクエンチ」の衝撃を知る者にとっては、すべてが静寂の中で起こる無冷媒磁石のクエンチは別な意味で衝撃的である。

現在(4)まで成功したところで、従来の寒剤（液体ヘリウムと液体窒素）を用いる既存のメタルデュアーを差して試料冷却をする「半無冷媒」でNMR実験の試験運転をしている。この装置でのNMR実験がこれまでと同精度でできるのか、試料空間での磁場の安定度と均一度、機械振動の影響、使い勝手の善し悪しなどに注意を払いながら運用しているが、今のところ問題はない。当初、冷凍機の機械振動がNMR測定に影響しないか懸念し、高価なパルスチューブ型冷凍機（振動が比較的少ない）にするか迷ったが、我々の「固体NMR実験」に関しては、従来の液体ヘリウムの超伝導磁石の実験と同様の高精度NMRデータが得られ、安価なGM型冷凍機でも何ら問題ないこともわかった。

次のステップとして、超伝導磁石を冷やしている無冷媒冷凍機でポンベのヘリウムガスを液化して試料冷却も行う(5)「完全無冷媒化」を目指す。冷却ガスを吹き付けるだけなら簡単にできそうで

あるが、我々は4 K以下の極低温域はヘリウム液体中に試料を浸して熱接触を密にとり、循環させて長期に渡って極低温を保ちたい。冷却ガスを液化して循環させ、既存の小型希釈冷凍機を組み合わせ、100 mK程度までの極低温NMR測定(6)までこの1台の装置で可能にしたい。さらに(7)超高温域1,000 Kまで対応する無冷媒磁石用デュアーに改造したい。最後に、パーツとして販売してくれるメーカーが現在見当たらないが(8)最大磁場15テスラが出せる超伝導線材のコイルを入手して置き換えたい。将来の最終目標(最大15テスラ、均一度 $<10^{-4}$ 、完全無冷媒、試料可変温度域0.1~1,000 K、NMRプリアンプ付)へ向け、外部資金が得られる毎にパーツを購入しグレードアップする、自称「デアゴスティーニ方式」(?)で最終号の完成形(8)に近づくのを楽しんでいる。一筋縄では行かないであろうが、最終的にメーカー品を遙かに凌ぐ固体NMR測定に特化した独自装置に仕上げ、手元に残る無冷媒活用技術を駆使して次世代の物性研究装置開発へつなげていきたい。

4. おわりに

本稿では無冷媒冷凍技術と各種物性測定技術を組み合わせ、目的とする物性測定に最適化させる新しい工夫を施し、世界唯一の装置開発の過程を紹介した。それらの技術融合によって生じる利点、欠点を知り、難所を乗り越えながらノウハウを確立し独自装置に育てていくことは低温物理屋にとって大きな喜びである。そのノウハウは広範な物性測定開発にも応用できるだろう。この装置でどのような新しい自然の真理を見出したかは別な機会に誌面を変えてご報告したい。

昨今のヘリウムガス事情を見ると将来に渡って低温実験環境が維持されるか見通せない。液体ヘリウムを使った低温実験はごく限られた一部の大学や研究機関でしかできないという「選択と集中」に拍車がかかると、日本の低温物理学が先細る。低温物理の研究室を巣立つ若い研究者が、どのような研究環境でも自由な発想でやりたい実験ができるように、この技術開発を若手と共に行っている。いつかこのような地道な開発が種となり、ヘリウムの有無に左右されず日本各地から新しい低温現象の研究が「しぶとく」発信される未来がくれば素晴らしいと思う。

謝辞

筆者の一人(棕田)は超伝導磁石の開発において、兵庫医科大学の福田昭氏、低温技術研究所の矢山英樹氏に多くのアドバイスを頂いた。福田氏には自作の無冷媒磁石の実物を見せて頂き、参考にさせて頂いた。矢山氏からクエンチのトラブルのときに様々な過去の経験やノウハウを教えて頂いた。設計から工作、組み立て段階では、かつて私が所属していた超低温実験研究室でご指導いただいた河野公俊先生をはじめ、当時研究室のメンバー新井氏、椎野氏、斎藤氏、隣の当時石本研のメンバー柄木氏、山口氏、小原氏、枡富氏らに教わった低温技術のノウハウが至る所で活用された。現在の研究室の若手研究者八島氏、小内氏らにも製作に協力いただいた。皆様にこの場を借りて深く感謝申し上げます。

参考文献

- [1] 大塚頼三「ヘリウム一滴,血の一滴 昭和は遠くになりけり」, 大阪大学低温センターだより **81**, 1 (1993).
- [2] George T. Furukawa et al. Critical Analysis of the Heat-Capacity Data of the Literature and Evaluation of Thermodynamic Properties of Copper, Silver, and Gold from 0 to 300 K, National Bureau of Standards (1968).

用語説明

アデнда

実際に比熱測定を行う部分であり, 基板の上に試料や温度計, ヒーターが取り付けられる. アデндаは基本的に断熱状態におかれる. また, 基盤にはサファイアや銅などの熱伝導の良いものが用いられる.