

希釈冷凍(I)

矢山, 英樹
九州大学大学院理学研究院物理学部門

<https://doi.org/10.15017/14775>

出版情報 : 九州大学低温センターだより. 2, pp.26-30, 2008-03. 九州大学低温センター
バージョン :
権利関係 :

本稿は希釈冷凍についての紹介であるが、全体の分量が多いので本号以降に分割して掲載する予定である。全体の構成は、次のとおりである。

- (I) 1. 希釈冷凍の物理的原理
- (II) 2. 混合器 3. スティル 4. 熱交換器 5. 1K ポット
- (III) 6. 希釈冷凍機の種類 7. 液体ヘリウムを用いない希釈冷凍機

本号では、(I)として希釈冷凍方式の物理的原理について述べる。

1962年に H. London, G. R. Clarke and E. Mendoza [1]らによって $^3\text{He}-^4\text{He}$ 希釈冷凍の原理が提案されて以来、今日ではさまざまな希釈冷凍機が存在している。この希釈冷凍方式は、B. S. Neganov, N. S. Borisov and M. Yu. Liburg [2]らによって 1966年に初めて実現され、最低温度 0.025K が得られた。希釈冷凍機は、低温を生成し、その温度を長時間維持する能力を有しているため、 10^{-2} K 以下の温度を得るための手段として、今日ではこの方法が非常に一般的になっている。

1. 希釈冷凍の物理的原理

希釈冷凍機の主要な構成

ヘリウムの同位元素を用いた新しい希釈冷凍法が実現されたのは、 $^3\text{He}-^4\text{He}$ 溶液が多くの特徴的な性質をもっているためである。これらの性質は、液体 $^3\text{He}-^4\text{He}$ 溶液の相図を用いて説明される。この温度対 ^3He 濃度の関係で表わされる相図を、図 1 に示す。超流動状態への転移の境界は曲線 1 (λラインと呼ばれる) によって表わされる。この超流動転移温度は、表 1 に示されており、 ^3He 濃度が増加するにしたがって低下していく。

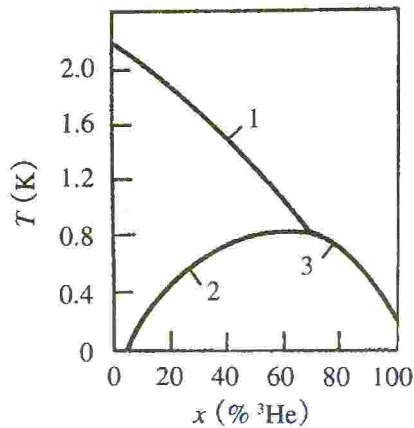


図1 $^3\text{He}-^4\text{He}$ 溶液の相図
1はλ線, 2と3は希薄相と濃厚相の相分離曲線。

本稿は、ウクライナ科学アカデミー低温物理工学研究所編、矢山英樹、I.B.ベルクトフ訳「超低温の実験技術」九州大学出版会、2000年、からの抜粋である。

表1 飽和蒸気圧での ^3He - ^4He 混合液の超流動転移温度 [6]

x (% ^3He)	T_λ (K)						
	0	10	20	30	40	50	60
0	2.172	2.027	1.872	1.702	1.511	1.294	1.055
1	2.158	2.012	1.855	1.684	1.491	1.271	1.030
2	2.144	1.997	1.839	1.666	1.470	1.248	1.005
3	2.129	1.981	1.823	1.648	1.448	1.224	0.980
4	2.115	1.966	1.806	1.629	1.427	1.201	0.954
5	2.101	1.951	1.789	1.610	1.405	1.177	0.929
6	2.086	1.935	1.772	1.590	1.383	1.153	0.903
7	2.071	1.919	1.754	1.570	1.361	1.129	0.877
8	2.057	1.904	1.737	1.551	1.339	1.104	
9	2.042	1.888	1.719	1.531	1.317	1.080	

表2 相分離した希薄溶液の温度 [7]

x_D	T (K)	x_D	T (K)	x_D	T (K)
0.06400	0.0	0.070	0.0970	0.13	0.3166
0.06404	0.00946	0.072	0.1102	0.14	0.3412
0.0641	0.01486	0.074	0.1223	0.15	0.3644
0.0642	0.0208	0.078	0.1436	0.16	0.3863
0.0643	0.0253	0.082	0.1618	0.17	0.4072
0.0645	0.0323	0.086	0.1789	0.18	0.4272
0.0647	0.0377	0.090	0.1946	0.20	0.4647
0.065	0.0445	0.095	0.2129	0.225	0.5075
0.066	0.0606	0.10	0.2301	0.25	0.5460
0.067	0.0721	0.11	0.2616	0.275	0.5809
0.068	0.0817	0.12	0.2902	0.30	0.6099

表3 相分離した濃厚溶液の温度 [7]

T (K)	x_C	T (K)	x_C	T (K)	x_C
0.10	1.0	0.30	0.982	0.50	0.904
0.15	0.99934	0.35	0.968	0.55	0.876
0.20	0.9965	0.40	0.949	0.60	0.847
0.25	0.9905	0.45	0.928		

表4 ^3He と希薄相の特性の比較 [8]

物理量	単位	^3He	希薄相
エントロピー	J/Kmol ^3He	$25T$	$107T$
モル体積	$\text{cm}^3/\text{mol } ^3\text{He}$	36.86	$27.5x_D^{-1} + 7.6$
粘性係数	10^{-7}Ns/m^2	$2.2T^{-2}$	$0.3T^{-2}$
熱伝導度	10^{-5}W/mK	$33T^{-1}$	$24T^{-1}$

温度が 0.87K 以下では、溶液は 2 つの相に分離する。一つの相は ^3He の濃度が低い相であり超流動を示す。通常、この相は希薄相 (D 相) と呼ばれている。その濃度 x_D は図 1 中の曲線 1 によって表わされる。もう一つの相は ^3He 濃度が高い相であり、超流動を示さない濃厚相 (C 相) と呼ばれる相である。濃厚相中の ^3He 濃度 x_C は曲線 3 で表わされる。濃厚相の密度は希薄相の密度より小さいため液体の上の方に浮かび、明瞭な相境界を形成する。 x_D と x_C の温度依存性を表 2 と表 3 に示す。図 1 中の曲線 1, 2, 3 は図中の 1 点すなわち温度 0.872K, ^3He 濃度 66.9% の点で交わる。低温では、 ^3He が ^4He の中へ溶け込む溶解度に

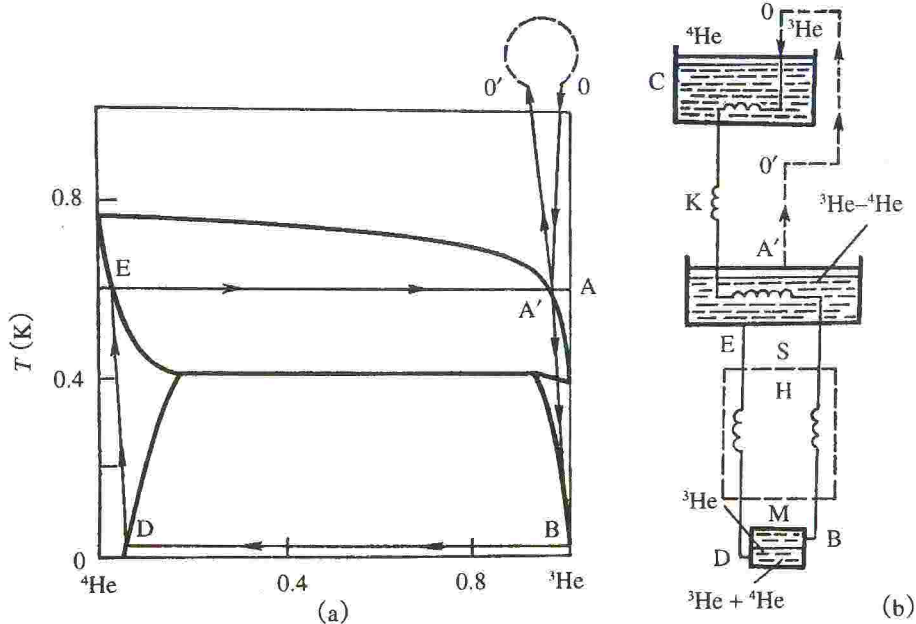


図2 希釈冷凍機の概略図 (b) と ^3He - ^4He 溶液の状態図 (a) [25]

Mは混合器, Sはスティール, Hは熱交換器, Kはインピーダンス, Cは1Kポット. 矢印を付した線は各循環ステージでの濃度の変化を表わす.

限界があり, それは約 6.4% ^3He である [3, 4]. この濃度は絶対零度まで同じである.

そのため, 絶対零度では, 下の相では ^3He 濃度が 6.4% であり, 上の相ではほとんど純粋な ^3He である. これらの相の物理的性質は幾分異なっている (表 4 参照). 上の相は低いエントロピー $S_3(x_C, T) = 25 T \text{ J/mol K}$ をもつ強相関の常流動フェルミ液体である. 下の相は ^3He が ^4He に溶け込んだ希薄溶液である. これは, 超流動の ^4He をバックグラウンドとする力学的真空中に置かれた ^3He 準粒子として記述できる. この状態にある 1 モルあたりの ^3He ガスのエントロピーは $S_3(x_D, T) = 107 T \text{ J/mol K}$ と計算される. この値は, 純粋な ^3He のエントロピーよりずっと大きい. 従って, ^3He が上の相から下の相へ移るときには, この 2 つの相の間の大きなエントロピー差に基づく熱の吸収が生じることになる.

この移動による熱の吸収は, 通常エンタルピーを用いて説明できる. 1 モルの ^3He に対して計算される溶液のエンタルピーは $H_3(x, T) = H(x, T)/x$ であり, ^3He 濃度の減少とともに増加する. したがって, 希釈後と前のエンタルピーの差 $H_3(x_D, T) - H_3(x_C, T)$ は正になる. すなわち, 等温状態を維持するために, ^3He が濃厚相から希薄相へ移動するときに熱が吸収される. ^3He の循環速度を $\dot{n}_3 \text{ mol/s}$ とすると, この吸収される熱量は次の式で表わされる.

$$\dot{Q} = \dot{n}_3 [H_3(x_D) - H_3(x_C)] = \dot{n}_3 T [S_3(x_D) - S_3(x_C)]$$

ここで, $S_3(x_D)$ と $S_3(x_C)$ はそれぞれ D 相と C 相における ^3He の 1 モルあたりのエントロピーである. \dot{Q} は冷却パワーを表わしており, 希釈冷凍機では大きな値になる. 図 2(b) は希釈冷凍機の低温部分を模式的に表わしたものである. 図 2(a) で表わされる相図の各部分は, 図 2(b) 中のそれぞれの冷却過程の同じ記号に対応している.

希釈冷凍機は以下に示すような主な部分から構成されている. ここで, 各部について簡単に説明する.

混合器 (Mixing chamber)

これは冷凍機の中で最も低温になる部分である。この中に、相分離した溶液があり、 ^3He が濃厚相から希薄相へ移動する。混合器の入り口から入ってきたほとんど純粋な ^3He は濃厚相から希薄相へ移動した後で出口から取り除かれる。

熱交換器 (Heat exchanger)

混合器へ入っていく濃厚相溶液は、混合器から出てくる希薄相溶液によって熱交換器を通して冷却される。

スティル (Still, または分留器)

ここでは、ポンピングによって希薄溶液から ^3He が取り除かれる。スティルの中には熱交換器があって、混合器へ戻る濃厚溶液を冷却する。

インピーダンス (Flow impedance)

これは、戻っていく ^3He を 1K ポットの部分で液化 (凝縮) するために必要である。すなわち、インピーダンス直前の ^3He の圧力が、1K ポットの温度での ^3He ガス圧よりも大きくなるようにしなければならない。

1K ポット (1K pot)

ここでは、 ^4He の蒸発によって 1 ~ 1.3 K の温度を作り出している。これは、 ^3He が液化 (凝縮) する際の熱を吸収し、混合器へ戻っていく ^3He を冷却する働きがある。

希釈冷凍機は以下の様にして動作する。まず、1K ポットの温度が 1 K 近くになると ^3He - ^4He 混合液の液化が始まり、混合器とスティルに溶液が溜まり始める。ポンピングと循環を開始すると、温度が下がり始める。この状態は希釈冷凍が始まるまで続き、スティルと混合器の温度はほぼ同じ速度で低下していく。このとき希釈冷凍機は、蒸発冷凍機として動作しており、リターンラインを通して戻ってくる溶液も同時に冷却している。相分離した ^3He - ^4He 溶液の温度は ^3He と ^4He のモル比に依存する。定常運転状態では、希薄相と濃厚相の相境界が混合器の中にあることが重要である。この段階で、 ^3He のリターンによる希釈冷凍が始まる。

図 2 から分かるように、スティル中の ^4He 濃度は、液体状態と気体状態では幾分異なる。スティル中の ^3He ガスの濃度は液体の濃度よりもはるかに高く、ポンピングを始めるとスティルの中にある液体中の ^3He 濃度は低下する。このため、混合器からスティルへそれらの間をつなぐ熱交換器を通して ^3He が移動する。それに伴い、混合器内の希薄相中の ^3He 濃度は減少し、 ^3He は上の (濃厚) 相から下の (希薄) 相へ移動する。ここで、スティルからポンピングされた ^3He が、インピーダンスや熱交換器を通して混合器へ戻ってくると、 ^3He の循環が連続的に行われることになる。

上の相から下の相への ^3He の移動による冷却パワーが混合器への熱流入を補償するようになると、混合器の温度は最低温度になり、定常運転になる。この段階で、スティル中の ^3He 濃度は図 2(a) で表わされ、熱交換器の中にある希薄相中の濃度変化は、次の超流動相における熱力学的平衡条件から求められる。

$$\mu_4(x_D, T) = \text{const.} \quad (1)$$

条件式(1)は浸透圧と噴水圧の和が一定であるということと等価である[5]。それは、低温で $x_D T = \text{const}$ であることを意味し、希薄相中の ^3He 濃度が温度の増加とともに $1/T$ で減少す

ることを示している。従って、 ^3He 濃度はスティルで最低になるため、希薄相の密度はスティルの付近で最大になり、上の方の液体と下の方の液体が重力によって交じり合うという不安定性が生じる。この不安定性は ^3He の粘性によって避けることができる。実際には、小さい直径のパイプを用いればよいわけであるが、その場合、粘性によって発生する熱量が増加することになる。従って、この相反する特性を満足するために、適当な太さのパイプを用いる必要がある。

^3He のリターンをストップすることによって、希釈冷凍機をワンショット冷凍機のようにして用いることも可能である。この場合、 ^3He は下の相からスティルに取り除かれていき、上の相には供給されない。このようにして、冷凍は上の相がなくなるまで続くことになる。

参考文献

- [1] London H., Clarke G.R., Mendoza E., Osmotic pressure of ^3He in liquid ^4He with proposal for a refrigerator to work below 1 K, Phys. Rev. 1962, Vol. 128, No. 5, pp. 1992-2005.
- [2] Neganov B.S., Borisov N.S., Liburg M.Yu., Metod polucheniya nizkikh temperatur, osnobbanniy na rastvorenii ^3He v ^4He , Zhurnal Eksperimental'noi i Teoreticheskoi Fiziki [Soviet Physics-JETP] 1966, Vol. 50, No. 6, pp. 1445-1454.
- [3] Edwards D.O., Brewer D.F., Seligman P., *et al.*, Solubility of ^3He in liquid ^4He at 0 K, Phys. Rev. Lett., 1965, Vol. 15, No. 20, pp. 773-775.
- [4] Edwards D.O., Ifft E.M., Jarwinski R.E., Number density and phase diagram of dilute ^3He - ^4He mixtures at low temperatures, Phys. Rev., 1969, Vol. 177, No. 1, pp. 380-391.
- [5] Eselison B.N., Grigorev V.N., Ivantsov V.G., *et al.*, Svoistva gidkogo i tvyordogo geliya. – M.: Izd-vo standartov, 1978, p. 128.
- [6] Rubets T.R., Sydoriak S.G., Sound velocity, phase separation and lambda transition of ^3He - ^4He mixtures, Phys. Fluids, 1960, Vol. 3, No. 6, pp. 895-902.
- [7] Raudebaugh R., Thermodynamic properties of ^3He - ^4He solutions with applications to the ^3He - ^4He dilution refrigerator, Nat. Bur. Stand. Techn., 1967, Notes 362, pp. 1-137.
- [8] Frossati G., Obtaining ultralow temperatures by dilution of ^3He into ^4He , J. Phys. (France), Colloq. C6, 1978, Vol. 39, Suppl. 8, pp. 1578-1589.