

令和元年6月5日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2018

課題番号：15K13398

研究課題名(和文)超小型サブミリケルビン連続冷凍システムの開発

研究課題名(英文)Development of a compact and continuous sub-millikelvin refrigerator

研究代表者

福山 寛 (FUKUYAMA, Hiroshi)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・教授

研究者番号：00181298

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：絶対零度まで1/1000度の超低温度を連続的に発生できる新設計の断熱消磁型の冷凍機が実現可能であることを、詳細な熱および磁場計算を行うことで示した。磁気作業物質には、印可した外部磁場が原子核の位置で実効的に大きく増強されるPrNi5を使う。これを1テスラまでの比較的低い磁場を発生する小型の磁気シールド付超伝導電磁石に納めた二つの冷却ユニットを、二つの超伝導熱スイッチを介して、予冷用の希釈冷凍機と試料の間で直列接続する構成となっている。両ユニットの消磁と励磁を交互に繰り返すことで超低温度を連続的に維持できる。これらの主要部品を開発し、設計通りの性能をもつことを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

絶対零度まで1/1000度の超低温度環境を連続的に発生できる小型の新型冷凍機が実現できることを数値計算で示し、そのための主要な要素技術の開発に成功した。この冷凍機が最終的に完成すれば、物質の新現象や新機能を探る温度範囲を大きく広げ、熱雑音を減らして観測機器の感度を著しく向上できるので、物質科学や宇宙・素粒子研究などさまざまな基礎研究の分野で新たな発見につながると期待される。本研究でその技術革新が大きく現実に近づいた。

研究成果の概要(英文)：Through detailed thermal and magnetic simulations, we have shown that a newly-designed adiabatic demagnetization refrigerator can produce and hold continuously ultra-low temperatures as low as one thousandth of a degree above absolute zero. As a magnetic working material, we use PrNi5 in which an applied magnetic field is effectively enhanced at the location of Pr nuclei. Relatively low magnetic fields up to one Tesla are applied to PrNi5 by a compact shielded superconducting magnet. Two such cooling units are connected in series via two superconducting heat switches in between a dilution refrigerator, a precooling stage, and a sample. By demagnetizing and magnetizing the two units alternately and cyclically, the system can keep ultra-low temperatures continuously. We have developed these main parts and confirmed that their performances are as planned.

研究分野：低温物理学

キーワード：磁気冷凍 断熱消磁冷凍 超低温 熱スイッチ 熱接触 磁気シールド

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

今日、物質科学の広い分野で、 ^3He - ^4He 希釈冷凍機で実現する 20~30 mK の極低温環境の利用が日常化している。また、衛星を使った初期宇宙マイクロ波背景輻射や X 線星の精密測定、さらには暗黒物質の検出など宇宙・素粒子実験でも、希釈冷凍は必要不可欠な実験技術となっている。こうした分野で、これより 1 桁以上低い 1 mK 前後の超低温環境が容易に得られるようになれば、測定の新感覚向上や新奇な物性が見出されることが期待でき、基礎研究の発展に資するところ大であろう。

現在のところ、1 mK 以下の超低温を発生するには、8 T 近い最大磁場と 70 mm 以上のボア径をもつ大型の超伝導マグネットに 100 mK で 200 μW 以上の冷却能力をもつ希釈冷凍機を組み合わせた銅の核断熱消磁冷凍機を用いる必要がある（文献①）。そのため装置は大型となり、実験ピットなど特殊仕様の実験室でなければ設置が難しく、衛星搭載などはまったく不可能である。さらに断熱消磁法は単発式の冷却法なので超低温を連続発生することはできない。

こうした中で、増強核磁性体とよばれる PrNi_5 を磁気作業物質として使った比較的コンパクトな核断熱消磁冷凍機がこれまでいくつかのグループによって開発されてきた（文献②~⑤）。しかし、これらは依然として単発式冷却である。もっと小型軽量で、しかも連続的に 1 mK 以下の超低温を発生できる新型の冷凍機の開発が待たれている。

2. 研究の目的

標準的な冷却力をもつ市販の希釈冷凍機の混合器プレート上に搭載できるほど小型でありながら比較的大きな冷却力もち、1 mK の超低温を連続的に発生できる新設計の超小型サブミリケルビン連続冷凍システムを開発する。このシステムの開発に成功すれば、物質科学の広い分野で容易に物性測定温度域を従来の 1/20 の超低温まで拡張できるようになり、衛星実験などの粒子線検出器の冷却に応用すれば、従来の 1/50 の超低温環境を実現できる。

3. 研究の方法

磁気作業物質には増強核磁性体 PrNi_5 を採用し、これをアクティブシールド付小型超伝導マグネットが発生する最大 1.2 T までの印加磁場を制御して消磁冷却する。2 つの核ステージを並列又は直列接続することで、最低温度の 1 mK から 20 mK までの任意の温度を一定に保持できるはずで、そのための制御プログラムの開発も目指す。

PrNi_5 の特徴は、磁場誘起した電子磁気モーメントが超微細相互作用を通じて約 12 倍に増強した大きな有効磁場として Pr^{3+} の核スピンのために、印加磁場が 1 T 程度と低くても有効なスピンエントロピー減少（すなわち冷却力）が得られる点である。しかし、単発式の場合、一定の熱リーク下で超低温の保持時間を確保しようとすると、かなりの分量の PrNi_5 を使い、かつ高い初期磁場も必要となる。そのため、装置はあまり小型化せず、せつかくの増強核磁性体の特性を活かせない。

本研究では、最高発生磁場を 1 T と低く押さえることでマグネットをまず小型化し、小型化することで熱スイッチを介して二つの核ステージを設置することが可能となり、それらを並列又は直列接続して交互に励磁消磁することで（エントロピーポンピング）、実用的な冷却力を確保しつつ、連続冷凍性能と小型化の二つの要求を同時に実現することを目指した。

4. 研究成果

(1) 超小型サブミリケルビン連続冷凍システムの詳細な熱計算を行い、その性能を評価予想した。以下に説明するシステム構成で、研究目的に合致する冷凍システムが実現可能であることを定量的に示した（発表論文⑤）。 PrNi_5 の量は 1 ステージ当たり 0.2 mol とし、これを最大発生磁場 1.2 T の磁気シールド付超伝導マグネットに収めた核ステージを 2 セット用意する。二つの核ステージは超伝導 Zn 熱スイッチを介して直列接続し、一方の核ステージを試料に直接接続し、もう一方の核ステージを別の超伝導 Zn 熱スイッチを介して希釈冷凍機の混合器に接続する。接続方式には並列と直列の二通りがあるが、製作の容易さ、熱流入量の低減、ステージ切り替え時の温度安定性などの点で直列方式を採用することにした（図 1）。数値計算の結果、両ステージの励磁と消磁を交互に 4 時間強のサイクルで繰り返せば、0.8 mK で 10 nW 前後の冷却力をもつ連続冷却が実現できることが分かった。冷却力は PrNi_5 と試料間の熱抵抗で決まり、特に熱スイッチ「閉」時の熱抵抗低減が重要であることが判明した。その目安は残留電気抵抗値に換算して 100~150 n Ω 以下である。

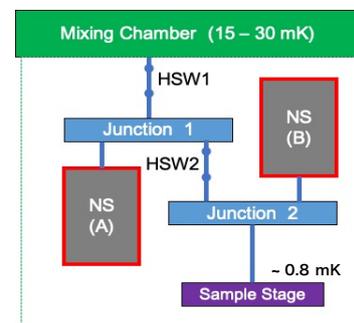


図 1. 超小型サブミリケルビン連続冷凍システムの構成

(2) 熱スイッチは、超伝導 Zn フォイルと Ag フォイルを熱拡散融着し、Ag フォイルとその後の

Ag 熱リンク棒の間は電子ビーム溶接することで、小型化と高熱伝導化の両立を図った。熱伝導性を高めるため、実機は最適熱処理条件をテスト実験で調べた上で製作した。その結果、スイッチ「閉」時の残留電気抵抗値は 114 nΩ に押さえることができた。また、「開」時の熱伝導度も希釈冷凍機に搭載して $70 \leq T \leq 900$ mK で実測し、十分な熱絶縁性を有することを確認した (図 2 左)。

(3) 超伝導マグネットの磁気シールドは、従来のアクティブシールドマグネットと超伝導シールドを併用する方式ではなく、高透磁率材の FeCoV で囲む方式を採用することにした (図 2 中)。中心磁場を 30% 大きくできるからである。詳細な磁場分布計算を行い、その形状 (特に厚み) を決めた。また、マグネットの超伝導線材は、磁束トラップ由来の磁気ヒステリシス効果のため磁場掃引時に発熱する。この発熱量を押さえるため、できるだけフィラメント径の小さい外径 0.14 mm、54 フィラメントの銅クラッド付 NbTi 線で巻いた。4.2 K の断熱真空中で発生磁場分布を実測したところ、最大 1.4 T まで発生し、中心軸上の磁場分布も数値計算とよく一致した (図 2 右)。一方、実測した総発熱量は約 100 mJ で、線材の磁気ヒステリシスデータからの予測とよく一致する。この発熱は、マグネットボビン希釈冷凍機の分留器に熱アンカーすれば吸収できる大きさなので、シミュレーションから要求される 1 mT/s の掃引速度は実現可能である。

(4) PrNi₅ 核ステージと金属熱リンク (直径 1 mm の Ag 線) の間の熱接触の良し悪しも、熱スイッチと同様、装置性能を大きく左右する。従来は、有害な Cd ハンダ付けで接触させていたが、Zn ハンダ付けをテストし、良好な残留電気抵抗値が得られることを確認した。

以上のように、一番技術的な困難が予測された超伝導 Zn 熱スイッチと磁気シールド付超伝導マグネットの開発に成功し、期待通りの性能をもつことを実証できた。現在は、システム全体の組み立て段階である。研究期間内に、当初目指した連続冷却性能テストまでは至らなかったが、今後、速やかに組み立てを終了し、これを実施したい。

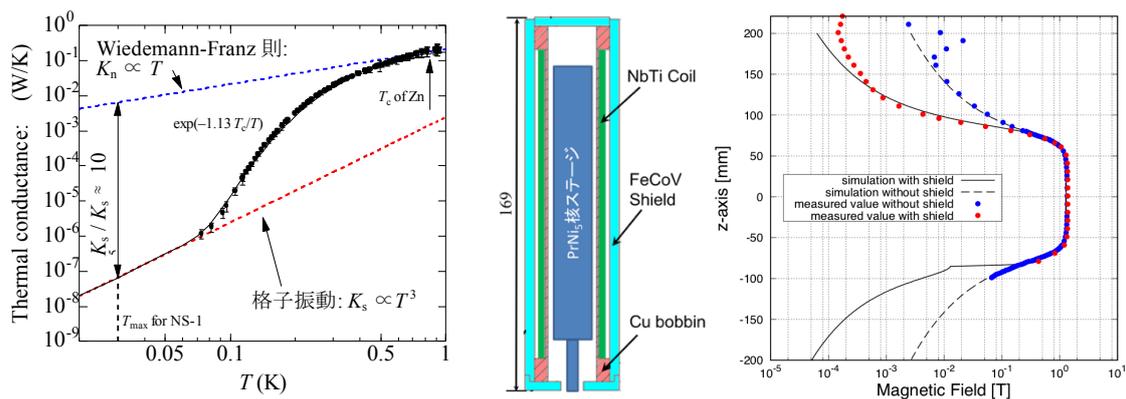


図 2. (左) Zn 熱スイッチの熱伝導度測定。超伝導転移温度 (0.87 K) 以下で常伝導成分の減少に伴って熱伝導度は指数関数的に減少し、80 mK 以下で格子振動からの寄与に漸近する。(中) 磁気シールド付小型超伝導マグネットの模式図と、(右) $I = 6$ A 時の中心軸上で発生する磁場分布の計算値 (実線) と実測値 (青点: シールドなし、赤点: シールドあり)。

<引用文献>

- ① F. Pobell, Matter and Methods at Low Temperatures (Belrin: Springer-Verlag, 3rd. edition, 2007).
- ② K. Andres and S. Darack, Physica B+C **86**, 1071 (1977).
- ③ J. M. Parpia, W. P. Kirk, P. S. Kobiela, T. L. Rhodes, Z. Olejniczak, and G. N. Parker, Rev. Sci. Instrum. **56**, 437 (1985).
- ④ D. S. Greywall, Phys. Rev. B **31**, 2675 (1985).
- ⑤ G. Batey, A. Casey, M. N. Cuthbert, A. J. Matthews, J. Saunders, and A. Shibahara, New J. Phys. **15**, 113034 (2013).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 7 件)

- ① Jun Usami, Nobuyuki Kato, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama: The Role of Substrate Roughness in Superfluid Film Flow Velocity, Journal of Low Temperature Physics, published online on Dec. 2018. DOI: 10.1007/s10909-018-02119-w
- ② Sachiko Nakamura, Takenori Fujii, Shoji Matsukawa, Masayuki Katagiri, and Hiroshi Fukuyama: Specific heat, thermal conductivity, and magnetic

susceptibility of cyanate ester resins - An alternative to commonly used epoxy resins, *Cryogenics*, **95**, 76-81 (2018).

<https://doi.org/10.1016/j.cryogenics.2018.09.001>

- ③ Sachiko Nakamura, Daisuke Miyafuji, Ryo Toda, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama: Characterization of Pyrolytic Graphite Sheet: A New Type of Adsorption Substrate for Studies of Superfluid Thin Films, *Journal of Low Temperature Physics*, **192**, 330-345 (2018).
<https://doi.org/10.1007/s10909-018-1983-3>
- ④ Sachiko Nakamura, Takenori Fujii, Shouji Matsukawa, Masayuki Katagiri, and Hiroshi Fukuyama: ⁴He permeation and H₂O uptake of cyanate ester resins - an alternative to commonly used epoxy resins at low temperature, *Journal of Physics: Conference Series*, **969**, 012080-1-6 (2018).
DOI: 10.1088/1742-6596/969/1/012080
- ⑤ Ryo Toda, Satoshi Murakawa, and Hiroshi Fukuyama: Design and expected performance of a compact and continuous nuclear demagnetization refrigerator for sub-mK applications, *Journal of Physics: Conference Series*, **969**, 012093-1-6 (2018).
DOI: 10.1088/1742-6596/969/1/012093
- ⑥ Sachiko Nakamura, Daisuke Miyafuji, Takenori Fujii, Tomohiro Matsui, and Hiroshi Fukuyama: Low temperature transport properties of pyrolytic graphite sheet, *Cryogenics* **86**, 118-122 (2017).
<http://dx.doi.org/10.1016/j.cryogenics.2017.08.004>
- ⑦ S. Nakamura, K. Matsui, T. Matsui, and H. Fukuyama, Possible quantum liquid crystal phases of helium monolayer, *Physical Review B* **94**, 180501(R) (2016).
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.180501>

[学会発表] (計 13 件)

- ① 瀧本翔平、戸田亮、村川智、福山寛：小型連続核断熱消磁冷凍機用超伝導マグネットの開発、日本物理学会第 74 回年次大会 (九州大学、2019 年 3 月 14-17 日)。
- ② 瀧本翔平、戸田亮、村川智、福山寛：小型超伝導マグネットの開発、第 10 回低温センター研究交流会 (東京大学、2019 年 2 月 22 日)。
- ③ Shohei Takimoto, Ryo Toda, Satoshi Murakawa, and Hiroshi Fukuyama: Development of a Compact and Low Heat-dissipation Shielded Superconducting Magnet Usable at Sub-mK Temperature, International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS2018), (The University of Tokyo, Tokyo, Japan, July 25-31, 2018).
- ④ 戸田亮、瀧本翔平、植松祐真、村川智、福山寛：小型超低温連続冷凍システムの開発 II、2018 年度春季 (第 96 回) 低温工学・超電導学会 (東京、タワーホール船堀、2018 年 5 月 28-30 日)。
- ⑤ 戸田亮、瀧本翔平、植松拓真、村川智、福山寛：超小型サブミリケルビン連続冷凍システムの開発 III、日本物理学会第 73 回年次大会 (東京理科大学、2018 年 3 月 22-25 日)。
- ⑥ 戸田亮、瀧本翔平、植松拓真、村川智、福山寛：小型超低温連続冷凍システムの開発 II、第 9 回低温センター研究交流会 (東京大学、2018 年 2 月 20-21 日)。
- ⑦ 戸田亮、植松拓真、瀧本翔平、村川智、福山寛：小型連続核断熱消磁冷凍機の開発、第 2 回東京大学技術発表会 (東京大学、2018 年 2 月 15-16 日)。
- ⑧ Satoshi Murakawa, Ryo Toda, and Hiroshi Fukuyama: Compact nuclear demagnetization refrigerator to keep a sub-mK temperature continuously - Design and expected performance, International Conference on Ultra Low Temperature Physics (ULT 2017): Frontiers of Low Temperature Physics (Heidelberg Germany, Aug. 17-21, 2017).
- ⑨ Ryo Toda, Satoshi Murakawa, and Hiroshi Fukuyama: Development of compact and continuous nuclear demagnetization refrigerator, 28th International Conference on Low Temperature Physics (LT28), (Gothenburg, Sweden, Aug. 9-16, 2017).
- ⑩ 戸田亮、村川智、福山寛：超小型サブミリケルビン連続冷凍システムの開発 II、日本物理学会第 72 回年次大会 (大阪大学、2017 年 3 月 17-20 日)。
- ⑪ 戸田亮、村川智、福山寛：小型超低温連続冷凍システムの開発、総合技術研究会 2017 (東京大学、2017 年 3 月 8-10 日)。
- ⑫ 戸田亮、村川智、福山寛：小型超低温連続冷凍システムの開発、第 8 回低温センター研究交流会 (東京大学、2017 年 2 月 23 日)。
- ⑬ 戸田亮、村川智、福山寛：小型超低温連続冷凍システムの開発 I、2016 年度春季第 93 回春季低温工学・超電導学会 (東京都、2016 年 5 月 30 日-6 月 1 日)。

[その他]

- ① 福山寛、松井朋裕、宇佐美潤、加藤伸行：NHK BS プレミアムの科学番組「コズミックフ

ロント☆NEXT」シリーズの「ミステリー 宇宙で一番寒い場所」にて、超流動ヘリウムの実験と解説を行う（2016年6月2日放送）。

- ② 福山寛：低温ブツリガクと医療、第115回日本外科学会定期学術集会（名古屋国際会議場、2015年4月16-17日）。

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名： 村川 智
ローマ字氏名：(MURAKAWA, Satoshi)
所属研究機関名： 東京大学
部局名： 低温センター
職名： 准教授
研究者番号(8桁)： 90432004

研究分担者氏名： 戸田 亮
ローマ字氏名：(TODA, Ryo)
所属研究機関名： 東京大学
部局名： 低温センター
職名： 技術専門職員
研究者番号(8桁)： 20452203
(2015～2016年度は連携研究者、2017～2018年度は研究分担者)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。