

希釈冷凍機の原理としくみ — ミリケルビン温度の獲得

東京大学大学院理学系研究科 (物理学教室)

福山 寛

まえがき

ヘリウム3-ヘリウム4希釈冷凍機は、10 ミリケルビン (mK) つまり1ケルビンの百分の1までの温度を連続的に作り出す冷凍機として、今日、基礎学問から応用研究まで幅広い分野で活躍している。希釈冷凍技術が完成したことで mK 温度という極限温度環境が比較的容易に手に入るようになり、量子ホール効果、メソスコピック系の物理、アンダーソン局在、量子液体・固体、重い電子系の超伝導と磁性などさまざまな物性物理学の研究分野が新しく展開した。近年では、原子スケールの情報を検出・操作するナノテクノロジー、宇宙・天文分野では X 線、マイクロ波、ミリ波など衛星搭載する検出器の冷却にも用いられその高感度化に欠かせない手段となっている。暗黒物質や重力波の検出など宇宙・素粒子研究の分野でも利用が進んでいる。そして、ごく最近の顕著な応用例は、超伝導量子ビットを 10 mK 近くまで冷却する量子コンピュータであろう。

希釈冷凍機の原理は 1952 年に H.ロンドンが提唱したのが最初で、1965 年に最初の実用機が完成した。その数年後には 5 mK という温度が連続して発生できるようになった。1970 年代からは本格的な市販品が作られるようになり、今日に至るまでさまざまな技術改良が続いている。その冷却原理は、量子液体としてそれ自身が研究対象である液体ヘリウム3の低温物性、とくに量子統計性を巧みに利用している。希釈冷凍機はまさに“量子冷凍機 (Quantum refrigerator)”とよぶのが相応しく、低温技術が低温物理学の進歩に支えられて発展することを示す好例である。

量子コンピュータ実用化にむけた期待が急速に高まる今日、理系の技術者や研究者が希釈冷凍機の原理を知りたいと思ったとき、適当な解説書が少ないように思う。もともと大学1~2年生レベルを対象に超低温の物理学と実験技術を平易に解説する出版物を書き進めていたので、そのうち希釈冷凍機に関する章のみを独立した読み物となるよう手を加えたのが本稿である。次の4章からなる。

1. 粒子の統計性
2. ヘリウム3-ヘリウム4混合液の相分離と希釈冷却の原理
3. 希釈冷凍機のしくみ
4. 希釈冷凍機の進歩

できるだけ数式を使わず説明することを心がけたが、量子統計力学から得られる表式をいくつか天下りの用いた。これらを本格的に勉強したい場合、

長岡洋介著「統計力学」(岩波基礎物理学シリーズ7、岩波書店 1994)

が優れた教科書であると思う。また、大学院レベルの専門的な低温技術については、

F. Pobell, *Matter and Methods at Low Temperatures*, 3rd. edition (Springer-Verlag, Berlin 2007)

が原著の参考論文リストも完備しており決定版である。

1. 粒子の統計性

希釈冷凍機の原理を紹介するまえに、粒子の統計性についてふれておく必要がある。この世の中のすべての物質は素粒子とよばれる基本粒子から成り立っている。素粒子は何種類も存在することが知られているが、それらは**フェルミ粒子**とよばれるグループと**ボース粒子**とよばれるグループの2種類に大別できる。フェルミ粒子の代表は電子、陽子、中性子である。フェルミ粒子で構成される多粒子系の特徴は、一つの量子状態（粒子が占めることのできるミクロな量子状態のこと）を占有できる粒子数が最大1個までと制限されていることである。これを**パウリの排他律**（あるいはパウリ原理）といい、フェルミ粒子が従う統計則を**フェルミ統計**という。一方、ボース粒子系ではその制限がなく、粒子が一つの量子状態を何個でも占めることができる。ボース粒子の例は光子、パイ中間子などである（図1参照）。

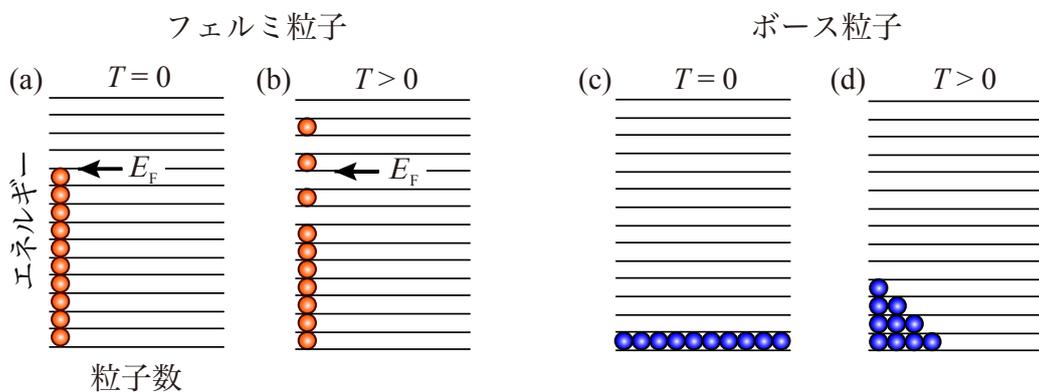


図1 フェルミ粒子とボース粒子のエネルギー分布の様子。(a)(c)が絶対零度の場合で、(b)(d)が十分低温かつ有限温度の場合である。

ところで、複数の素粒子からなる原子もその内部自由度が問題にならないような低温では（室温でこの条件がすでに十分満たされている）、一つの素粒子のように考えることができ、やはりフェルミ粒子かボース粒子のどちらかに分類することができる。例えば、ヘリウム4 (^4He) は2個の陽子と2個の中性子が原子核を構成し、そのまわりを2個の電子がまわっている（図2(a)）。つまり、合計が偶数個のフェルミ粒子でできていて、原子全体としてはボース粒子としてふるまう。一方、原子核の中性子数が一つ少ない安定同位体であるヘリウム3 (^3He) は合計が奇数個のフェルミ粒子でできているので（図2(b)）、 ^3He 原子はフェルミ粒子として考えることができる。このような考え方を**複合粒子描像**という。

絶対零度では、フェルミ粒子系の場合、図1(a)に示すように一番エネルギーの低い状態から順に粒子が1個ずつ占有した状態が実現する。このとき粒子が占める一番高いエネルギーを**フェルミエ**

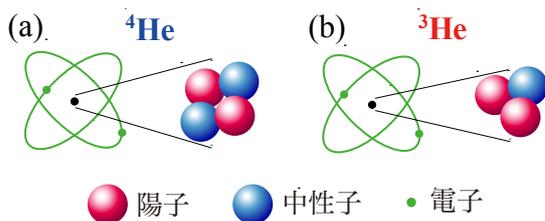


図2 (a) ^4He 原子と(b) ^3He 原子。それぞれ複合粒子としてのボース粒子とフェルミ粒子と考えることができる。

エネルギー (E_F) といい、これを温度の単位であらわすときは**フェルミ温度** ($T_F = E_F/k_B$) という。ここで、 $k_B (= 1.380649 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1})$ はボルツマン定数である。 T_F は粒子の質量を m 、密度を n としたとき、以下のように与えられる。

$$T_F = \frac{\hbar^2 (3\pi^2 n)^{2/3}}{2mk_B} \quad (1)$$

粒子の量子状態を識別するには運動量の他にスピンという別の内部自由度が存在していて、上式はスピン自由度の数が 2 の場合に対応する。電子も ^3He もスピン自由度の数は 2 である。個々のスピンの小さな磁気モーメントが伴うので、例えば電子スピンは物質の磁性の起源となる。これに対して図 1(c)には、ボース粒子系の基底状態を示した。すべての粒子が最低エネルギー状態を占めており、フェルミ粒子系とは低温の性質がまったく異なるであろうことは容易に想像がつく。

温度を絶対零度から徐々に上げてゆくと、熱エネルギーのために基底状態に比べてエネルギーのより高い状態が占められるようになる (図 1(b)(d))。しかし、フェルミ粒子系の場合、 T_F より十分低温であるかぎり図 1(b)のように基底状態からのずれは E_F 近くの状態に限られる。このような状態を**フェルミ縮退**した状態という。これに対してボース粒子系では、ある温度 (T_{BEC}) 以下でマクロな数の粒子が最低エネルギー状態を占有している。これは粒子間に相互作用がない場合でも起こる相転移で、この現象を**ボース・アインシュタイン凝縮 (BEC)** という (注 1)。転移温度 T_{BEC} は

$$T_{\text{BEC}} = \frac{2\pi\hbar^2}{mk_B} \left(\frac{n}{2.612} \right)^{2/3} \quad (2)$$

で与えられる。

式 (2) は T_F の表式 (1) と数係数がわずかに違うだけでよく似ている。これには本質的な理由がある。量子力学によれば、物質には粒子性と波動性の 2 面性があり、質量をもつ粒子としてだけでなく、波長をもつ波としても振る舞う。その振る舞いはシュレーディンガーの波動方程式で表され、**波動関数の 2 乗**が粒子をそこに見出す確率を示す。波としての側面である**熱的ド・ブロイ波 (物質波)** の波長 λ_T は

$$\lambda_T = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_B T}} \quad (3)$$

と書けるので、低温になるにつれ長くなり、ついにそれが平均粒子間距離 $a (\approx n^{-1/3})$ くらいに達すると、隣りの粒子がフェルミ粒子かボース粒子かという統計性が問題になってくる。同種粒子は区別できないので、隣り同士の粒子の波動関数が重なりはじめると、粒子を入れ換えた場合も考えなければならなくなる。粒子の統計性の違いとは、じつは 2 粒子を入れ替えたときに系全体を表す波動関数の符号が変わる (フェルミ統計) か、変わらない (ボース統計) かの違いなのである。これを**量子統計性**という。 $\lambda_T = a$ となる温度を求めてみると、数係数のわずかな違いをのぞいて式

(1) や式 (2) と一致することが分かる。隣接粒子の熱的ド・ブロイ波が重なり始める低温になると、量子統計性の違いが顕著に表れることがこれで説明できる。

図 3(a)は ^4He の低温での状態相図である。その中の**ラムダ転移** (図中赤線) とは、その温度以下で超流動状態という特別な液体状態となる相転移のことである。常圧 (1 atm) でのラムダ転移温度は 2.17 K である。この超流動相はヘリウム II とよばれることもあり、1908 年のカマリン・オネ

スによるヘリウムの液化の成功以来、30年の歳月をへてその特異な性質の全容が明らかにされた。ヘリウムIIは、通常の液体では粘性のためにとっても通り抜けられないような細管や細孔を簡単にすり抜れたり（粘性ゼロ）、容器壁を伝わって液体が容器からこぼれ落ちたり（フィルムフロー）、容器を回転するとはじめは静止状態を保ち（非回転性）一度回転し始めると永久に流れ続ける（永久流）、など常識を越えた多くの不思議な振る舞いを示す。じつは ^4He の超流動相はボース・アインシュタイン凝縮が実現した状態である。ただし、液体なので粒子間の相互作用の効果が非常に強く、相互作用を無視した理想ボース気体とは振る舞いが少し異なる。例えば、粒子密度 n を増したとき、式(2)からは n の $2/3$ 乗に比例した転移温度の上昇が期待されるが、図3(a)から分かるように、ラムダ転移温度は圧力の増加（密度の増加）とともに逆に低下する。しかし、転移温度以下でマクロな数の粒子が最低エネルギー状態を占有するという基本的な性質は、ボース・アインシュタイン凝縮そのものである。この最低エネルギー状態にある粒子のことをボース・アインシュタイン凝縮体とよぶ。このような極低温下でも安定的に液体状態に止まることができるのはヘリウムだけなので、超流動研究の対象として液体ヘリウムは大変興味深い量子物質である。

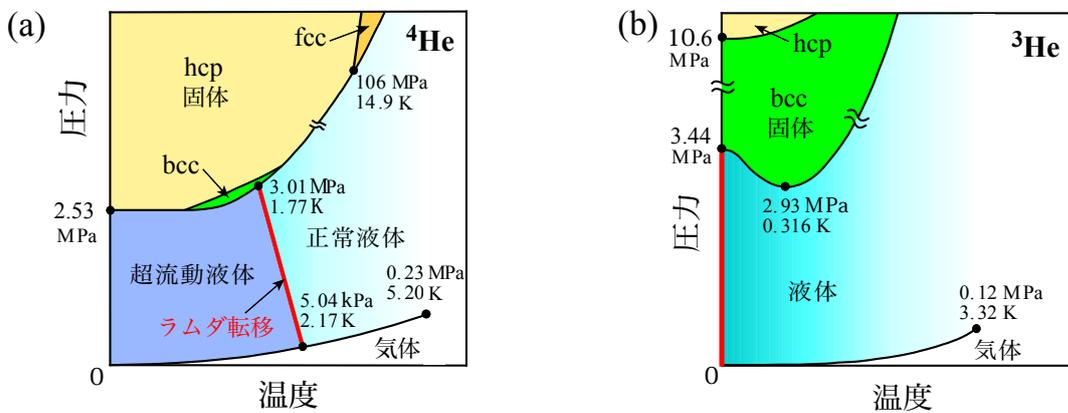


図3 (a) ^4He と(b) ^3He の低温での状態相図。どちらも低圧下では絶対零度まで液相が安定に存在する。液体 ^4He は 2.17 K 以下で超流動状態に相転移する。一方、液体 ^3He は百分の3 K (3 mK) という超低温で超流動転移するので、この図では縦軸に張り付いて見えない (赤線部)。

1995年に、ボース複合粒子であるアルカリ原子の希薄気体をマイクロケルビン温度域までレーザー冷却することで、理想ボース気体に近いボース・アインシュタイン凝縮が実現できるようになった。その状態もまた超流動性を示す(注2)。

(注1) $T > T_{\text{BEC}}$ では個々の粒子の物質波の位相はばらばらであるが、 $T < T_{\text{BEC}}$ では全ての粒子の位相が揃い、巨視的なスケールにまたがる一つの波動関数で表されるようになる。このような状態を巨視的量子状態とか巨視的コヒーレンスがあるという。例えば、一辺1mの箱の中に入れたボース粒子系がBEC状態に入ったとすると、箱全体に広がる一つの波動関数を考えることができる。本来、素粒子のような極微の粒子の振る舞いを記述する量子力学でしか表れない波動関数が、このように巨視的なスケールで姿を現すのが巨視的量子状態である。BECは同じく巨視的コヒーレンスをもつ超流動状態と密接な関係がある。しかし、両者を同一視するのは厳密には正しくない。超流動現象は、流れがあるときの粘性のような動的な応答に表れる特異性だからである(粘性が消失する)。例えば、粒子間に相互作用のない理想気体のBEC状態は超流動性を示さないが、有限の粒子間相互作用をもつボース気体や液体を十分低温まで冷却すれば、超流動現象を示す。

(注2) 希薄アルカリ原子気体は液体 ^4He に比べて7~9桁も粒子密度が低いごく希薄な気体なので、実験的には安定状態としての固体に凝集するまでの短時間、準安定状態として量子気体状態を実現することができる。

2. ヘリウム 3-ヘリウム 4 混合液の相分離と希釈冷却の原理

前章で紹介した粒子の量子統計性を理解したうえで、ここでは希釈冷凍の原理を説明する。図 4 はボース粒子系である液体 ^4He にフェルミ粒子の ^3He を混ぜたときの状態相図である。この相図には多くの興味深い物理が含まれている。まず目につくのが、禁制領域とした白色の範囲で ^3He と ^4He は一様に混合できない、つまり相分離することである。例えば、図中の A 点 ($T=1\text{ K}$ 、 $X=30\%$) から出発して太線に沿って冷却すると、B 点で相分離がはじまり、 ^3He の成分比が大きな濃

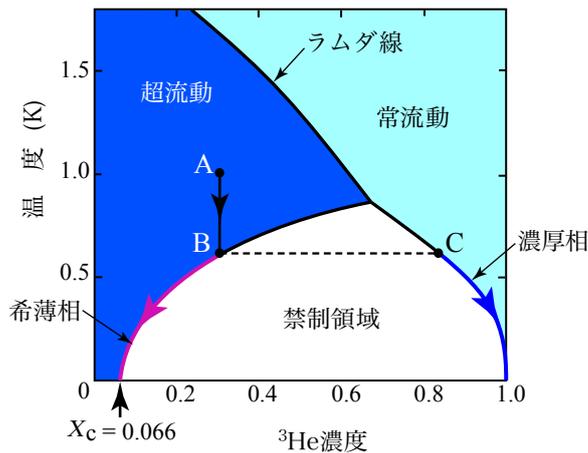


図 4 ^3He - ^4He 混合液の状態相図。

厚相 (C 点) と小さな希薄相 (B 点) とに分離する。ここで、 X は ^3He 成分のモル分率である。濃厚相の方がモル体積が大きく比重が小さいので、容器の中では濃厚相が希薄相の上に浮かんだ 2 相共存状態となる。 $T=0$ で濃厚相の X は 100% すなわち純粋液体 ^3He となるが、希薄相の X は 6.6% である (注 3)。このように、絶対零度でも希薄相の ^3He 濃度がゼロではなく有限値にとどまることは希釈冷凍の大きなポイントの一つである。

このことをもう少し詳しく見てみよう。図 4 のラムダ線は ^4He 成分が前節で述べたボース・アインシュタイン凝縮を伴う超流動状態へ相転移する温度を示していて、1 K のオーダーである。これに対して、mK という十分低温になれば超流動 ^4He の基底状態からの熱的なずれ (これを素励起とよぶ) はごくわずかである。希薄相の ^4He 成分は、その中に混入した ^3He 原子の自由な運動を多少邪魔するだけで、熱的にはほとんど存在しないようなものである。これを“力学的真空

(mechanical vacuum)” という。逆に ^3He 原子の側から見れば、実効的な粒子質量が少し増加したフェルミ縮退状態にあるということが出来る。図 5 に希薄相における ^3He 成分の化学ポテンシャル (μ_d) の X 依存性を示す。ここでは簡単のため $T=0$ のときを考えている。化学ポテンシャルとは、系に十分遠方から粒子を 1 つ付け加えたり、逆に系から粒子を 1 つ取り去るときの系のエネルギー変化分のことである。超流動 ^4He の中にただ 1 個の ^3He 原子があるとき ($X=0$ のとき) の μ_d は、濃厚相での化学ポテンシャル (μ_c) に比べて低い。その理由は、 ^3He 原子にとっては、密度の高い液体 ^4He の中にいる方が密度の低い液体 ^3He の中にいるよりも、周囲から受けるファン・デル・ワールス引力をより強く受けるからである (図 6)。原子質量がより小さい ^3He 原子はハイゼンベルクの不確定性関係から零点振動エネルギー (あるいは零点エネルギー) をより下げるため、自分自身の周りにより大きな自由空間を必要とする。だから、液体 ^3He は液体 ^4He より密度が低いのである。次に希薄相の ^3He 濃度をゼロからゆっくり増してゆくことを考える。 ^3He 成分はフェル

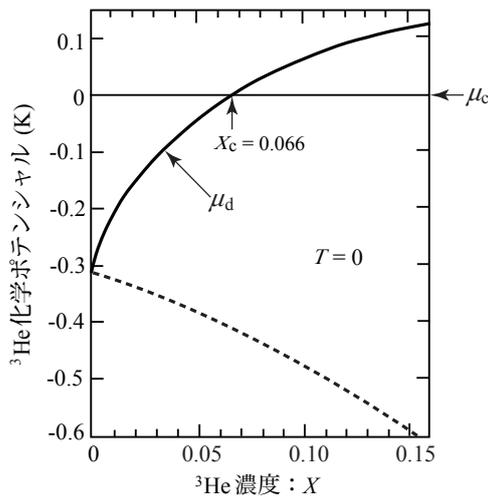


図5 $T = 0$ における、 ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ 混合液の希薄相の ${}^3\text{He}$ 化学ポテンシャル (μ_d) とその ${}^3\text{He}$ 濃度依存性。化学ポテンシャルの原点は、純粋液体 ${}^3\text{He}$ の化学ポテンシャル (μ_c) にとってある。点線は、 ${}^3\text{He}$ 原子間の引力相互作用のために内部エネルギーが下がる様子を示す (注4 参照)。P. Seligmann, D. O. Edwards, R. E. Sarwinski, and J. T. Tough, Phys. Rev. **181**, 415 (1969) より一部変更の上転載。

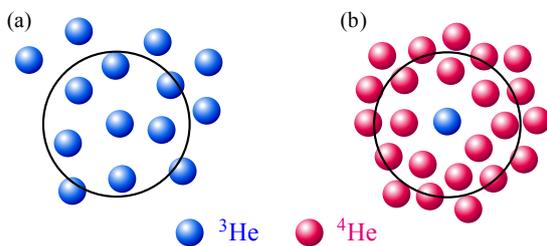


図6 (a) 純粋な液体 ${}^3\text{He}$ と、(b) 液体 ${}^4\text{He}$ に溶け込んだ ${}^3\text{He}$ 原子の様子。

ミ縮退しているのです、式 (1) から μ_d は X の $2/3$ 乗に比例して大きくなるはずである。その結果、 $X \geq 6.6\%$ では $\mu_d \geq \mu_c$ となって、 ${}^3\text{He}$ にとっては濃厚相の方がより安定な居場所となる (図5 で実線と水平線との交点より右側の領域) (注4)。したがって、希薄相の ${}^3\text{He}$ 濃度は 6.6% が上限でそれ以上増えることはなく、新たに足された ${}^3\text{He}$ 原子は濃厚相として相分離してしまう。以上が、絶対零度でも希薄相の ${}^3\text{He}$ 濃度が有限の 6.6% にとどまる量子統計的な説明である。

よく知られるように、断熱状態で液体を強制蒸発させると潜熱が奪われるので液体を冷却できる (断熱減圧冷却法)。単位時間あたり n モルの分子を蒸発させるときの冷却力 \dot{Q} は、真空ポンプの排気速度 (単位時間あたりに排気する体積) が圧力にあまり依らないとすれば、

$$\dot{Q} = \dot{n} L_0 \propto P(T) L_0 \quad (4)$$

で与えられる。ここで L_0 は蒸発の潜熱で、低温ではほぼ一定と考えて良い。 $P(T)$ は飽和蒸気圧曲線で、

$$P \propto \exp\left(-\frac{L_0}{k_B T}\right) \quad (5)$$

のように温度の低下とともに指数関数的に急速に減少する。これは気相を理想気体とみなして熱力学のクラウジウス-クラペイロンの関係式を使うと説明できる。式 (5) を式 (4) に代入すれば、冷却力 \dot{Q} も温度の低下とともに指数関数的に急速にゼロに近づくことがわかる。純粋な液体 ${}^4\text{He}$ や液体 ${}^3\text{He}$ をそれぞれの沸点 4.2 K と 3.2 K から減圧冷却する冷凍装置をヘリウム4クライオスタットとヘリウム3クライオスタットとよぶ。到達できる最低温度は、系への熱流入 (ヒートリーク) 量にもよるが、それぞれおおむね 1.5 K と 0.3 K である。

話を ^3He - ^4He 混合液にもどそう。希薄相中の ^3He 原子も液体 ^4He という力学的真空の中を比較的自由に動き回る“気体”と見なすことができる。このとき濃厚相は“液体”の役回りである。何らかの方法で希薄相中の ^3He 成分だけを選択的に取り除く、すなわち“減圧”できれば、 ^3He の“蒸発”に伴う潜熱の吸収によって冷却効果が期待できる。このように希釈冷凍の原理も断熱蒸発冷却と本質的には同じである。しかし、絶対零度でも X すなわち“飽和蒸気圧”がゼロではなく有限値にとどまること、そして、次に見るように X が温度の指数関数ではなく 2 乗に比例してゆっくり減少することの二つが、希釈冷凍機がミリケルビン温度域でも大きな冷却力をもつ秘密である。

希釈冷凍機の冷却力を具体的に考えてみる。図 7 は十分縮退した低温域 ($T \ll T_F$) での希薄相と濃厚相のエントロピーの温度変化を示す。一般に縮退したフェルミ気体の 1 粒子あたりのエントロピーは

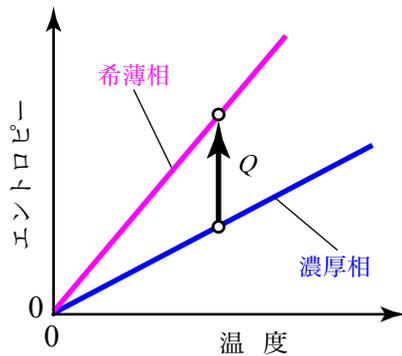


図 7 十分縮退した低温域における ^3He - ^4He 混合液の希薄相と濃厚相のエントロピー。等温過程の場合、矢印にそって希釈熱が奪われる。

$$S = \frac{\pi^2 k_B}{2T_F} T = \frac{\pi^2 k_B^2 m}{\hbar^2 (3\pi^2 n)^{2/3}} T \quad (6)$$

と温度に比例し、粒子密度の $2/3$ 乗に逆比例する。したがって同じ温度では希薄相の方が濃厚相よりもエントロピーが大きい。これは上記の希薄相=気体、濃厚相=液体というアナロジーに対応している。“蒸発”時に外界から奪うことのできる潜熱は $L = T(S_d - S_c)$ なので、単位時間当たり ^3He が希薄相に溶け込む量を \dot{n}_3 (mol/s) とすると、

$$\dot{Q} = 84\dot{n}_3 T^2 \quad (7)$$

となり、希釈冷凍機の冷却力 \dot{Q} (W) は温度 T (K) の 2 乗に比例することが分かる。図 8 から一目瞭

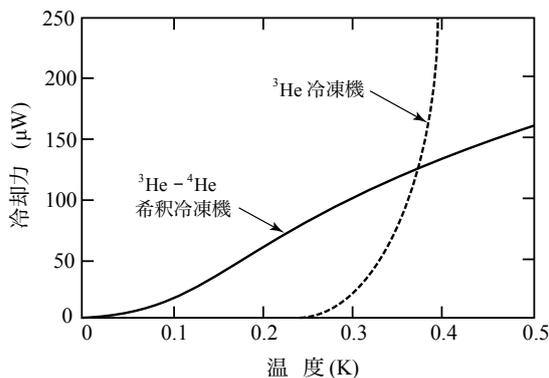


図 8 排気速度が 5 リットル/s の ^3He 排気ポンプを使用したときの、 ^3He 冷凍機と ^3He - ^4He 希釈冷凍機の冷却力の比較。O. V. Lounasmaa, Experimental Principles and Methods Below 1 K (Academic Press, London 1974) より一部変更の上転載。

然なように、希釈冷凍機は ^3He クライオスタットに比べて0.3 K以下で圧倒的に大きな冷却力をもつ。熱流入の大きさが同じとすれば、ずっと低い温度を実現することができる。

(注3) 低温物理学の教科書では飽和蒸気圧下・絶対零度での希薄相の ^3He 最大溶解度(飽和溶解度とよぶ)について、古い測定値を引用して6.4%あるいは四捨五入して6%と記されていることが多い。しかし、その後の複数の高精度実験によれば、この値は $6.61 \pm 0.07\%$ であり、6.6%あるいは四捨五入して7%とすべきであろう。例えば、S. Yorozu, M. Hiroi, H. Fukuyama, H. Akimoto, H. Ishimoto and S. Ogawa, Phys. Rev. B **45**, 12942 (1992).

(注4) 実際には、 X の増加とともにエネルギーの原点(図1(a)の最低エネルギー準位に相当)は図5の点線のように0.1 Kほど減少するので、単純に $\mu_d \propto X^{2/3}$ として評価した場合より現実の飽和濃度は大きい。これは、 ^3He 原子間に有効的な引力相互作用が働くことを示している。 ^3He 原子は背景となる超流動 ^4He の中で運動するため、式(1)に代入すべき粒子質量は裸の ^3He 原子質量(m)ではなく、 ^3He - ^4He 相互作用をくり込んで少し重くなった粒子としての有効質量($m^* \approx 2.3m$)である。このような粒子を準粒子といい、もとの粒子と質量だけが異なり他の属性(たとえば個々のスピンの向きとか総粒子数)は変わらないと仮定する。また、2つの準粒子間には超流動 ^4He 中の密度の揺らぎを媒介とした有効相互作用も働くことが知られている。そのため希薄混合液中の ^3He 成分は、純粋液体 ^3He と同様、2個の ^3He 準粒子が対を組んでボース・アインシュタイン凝縮するような機構(BCS機構という)で、超流動転移すると予測されている。この対をクーパー対という。この超流動転移温度はマイクロケルビン(μK)温度域と考えられており、まだ実験的に観測されていない。

3. 希釈冷凍機のしくみ

ここまで、 ^3He - ^4He 混合液の濃厚相から希薄相へ ^3He 成分が溶け込むことで大きな冷却力が生まれる原理を説明してきた。本章では、その原理にもとづき、実際の ^3He - ^4He 希釈冷凍機ではどのような巧妙なしくみで mK 温度を連続的に実現しているのか見てゆこう。

混合器と分留器

図9は希釈冷凍機の具体的なしくみを示した概念図である。この心臓部をインサートとよぶことが多い。**混合器**とよばれる最下部の容器の中で ^3He - ^4He 混合液が相分離している。混合器内の希薄相は比較的大きな断面積の管（Still line とよぶ）で**分留器**とよばれる上方の容器と接続されており、混合液の液面は常に分留器内に存在している。分留器を設ける目的は、ヒーターでその温度を 0.7 K 程度に一定に保ちながら（注5）排気ポンプで混合蒸気を排気して ^3He を選択的に排気することである。平衡状態ならば ^3He 成分の分圧つまり浸透圧 π_3 は希薄相で結ばれた管内どこでも一定のはずである。 π_3 は X と T の増加関数なので（図10）、混合器内の希薄相（ $T \approx 10$ mK、 $X \approx 6.6\%$ ）と浸透圧が等しい、つまり平衡となる分留器（ $T \approx 0.7$ K）内の X の値は1%弱と低い。もちろん、両室の間の温度差が保てるよう、Still line はそれぞれ温度の異なる何段階かの熱交換器によって注意深く熱的に絶縁されている（図9参照）。このように分留器内の ^3He 濃度は1%未満しかない。しかし、 $T \approx 0.7$ K で ^3He は ^4He より3桁も蒸気圧が高いので（図11）（注6）、結果としてそこで排気される混合蒸気の ^3He 濃度は約90%に達する。つまり、ほぼ選択的に ^3He を排気できる。 ^3He の選択排気によって分留器内の X が減少して浸透圧に差圧ができると、それに比例した流量で混合器内では濃厚相から希薄相へ ^3He が溶けだし希釈冷却がおこる。

式(7)にあるように、大きな冷却力を得るには ^3He 流量 \dot{n}_3 を大きくする必要がある。そのため

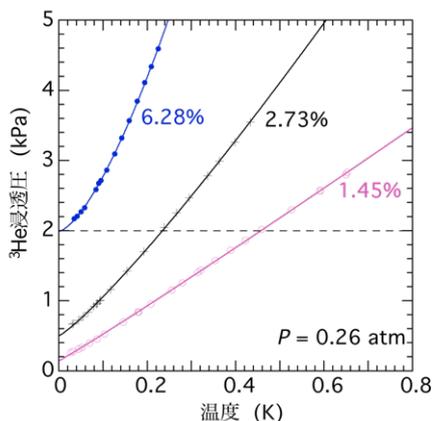


図10 さまざまな ^3He 濃度(X)の ^3He - ^4He 混合液の浸透圧の温度変化。データ点はJ. Landau, J. T. Tough, H. Brubaker, and D. O. Edwards, Phys. Rev. A 2, 2472 (1970)より。

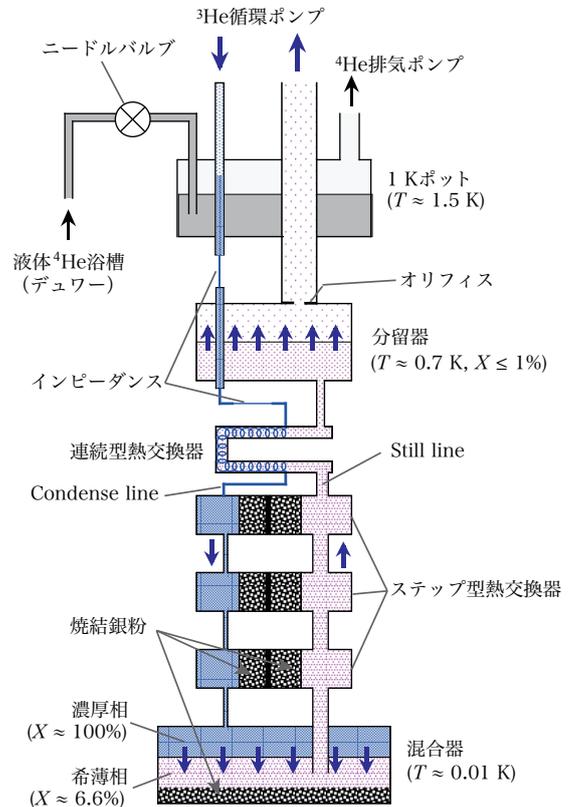


図9 希釈冷凍機のしくみ。

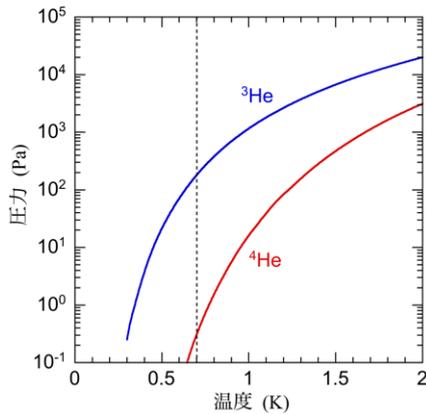


図 11 純粋 ^3He と純粋 ^4He の蒸気圧の温度変化。分留器の温度は通常 $T \approx 0.7 \text{ K}$ (点

にも、希釈冷凍原理で mK を作りだす場所 (混合器) と高温で高い蒸気圧を確保できる場所 (分留器) を別々に用意し、両者を熱的に隔離しつつ ^3He 浸透圧で連結して分業させるのが希釈冷凍機のしくみのポイントである。

熱交換器とカピッツァ抵抗

さて、分留器から ^3He 蒸気を排気し続けるだけでは、いつか混合器内の濃厚相が枯渇して冷却は終わってしまう。そこで、室温で作動させる ^3He 排気ポンプに密閉性の高いタイプのものを使用して、排気した ^3He ガスを濃厚相に戻してやれば連続冷却が可能となる。戻る方の経路 (Condense line) を図 9 にしたがって説明すると、最初に ^3He ガスは 1 K ポットとよばれる $T \approx 1.5 \text{ K}$ の小さな液体 ^4He 減圧冷却室で再液化される。つぎに分留器に熱接触して 0.7 K まで冷却されたあと、連続型熱交換器と数段のステップ型熱交換器を通過する。いずれも金属壁で隔てられた希薄相の ^3He - ^4He 混合液と熱交換し、最後に混合器内の濃厚相に戻る。希釈冷凍機の到達最低温度は、これら熱交換器の性能で決まるといっても過言ではない。混合器に入る熱流入の大半は、Condense line を通じて室温から戻ってくる ^3He によってもたらされるからである。

一般に、液体寒剤の中に試料を直接浸せば、広い接触面積のため高い冷却効率が得られることが知られている。しかし、温度が 1 K 以下になると、液体ヘリウムと金属など固体との間に存在する界面熱抵抗が大きな問題となってくる。これをカピッツァ抵抗といい、温度の 3 乗に比例して大き

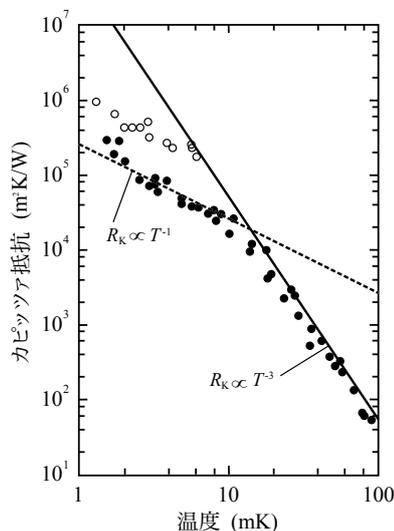


図 12 金属 (焼結銀粉) と純粋な液体 ^3He の間の界面熱抵抗 (カピッツァ抵抗)。黒丸は K. Andres and W.O. Sprenger, Proc. 14th Int. Conf. on Low Temp. Phys. **1**, 123 (1975) より、白丸は A.I. Ahonen *et al.*, J. de Physique **39** suppl. 8, C6-265 (1978) より一部変更の上転載。

くなることが知られている（図 12）。液体 ^3He や $^3\text{He}-^4\text{He}$ 混合液そして純度の高い金属は、それぞれ mK 温度域でもそれ自体は高い熱伝導率をもつ。熱の主な担い手である ^3He と伝導電子（正確にいうと、注 4 に記したように周囲との相互作用を繰り込んだ“準粒子”）が不純物に散乱されず長い距離進むことができること（その距離を平均自由行程といい、実質的には準粒子同士が衝突するまでの距離）、そして、熱励起されている粒子数（図 2(c)の E_F より高いエネルギーに熱励起された粒子数）がどちらも T に比例するので極低温でも比較的多いからである。しかし、両者の界面の熱伝導率（単位接触面積あたりの熱伝導度）は低温でもっと急速に低くなる。そもそも熱媒体である ^3He と電子は界面を超えることができないし、界面で中性希ガス原子である ^3He と荷電粒子の電子との間に直接的な熱エネルギーの受け渡し（相互作用）があることも期待できないからである。熱抵抗が T^{-3} に比例する（つまり熱伝導度が T^3 に比例する）という温度依存性は、界面での熱エネルギーのやり取りが主役の ^3He や伝導電子ではなく、密度波（音波）によって担われていることを示している。さまざまな制約はあるものの音波同士は界面で直接熱エネルギーをやりとりできる。波動性と粒子性の 2 面性をもつ量子力学では、密度波をフォノンとよぶ粒子（音響量子）に見立てる。あるエネルギー準位のフォノン数とは、そのエネルギーをもつ波の振幅のことである。振幅は一定の範囲で自由な値を取ることができるのでパウリの排他律は働かない、つまりフォノンはボース統計に従う粒子である。すると、光子の場合もそうであるがフォノンの全エネルギーも T^4 に比例し、その温度微分である比熱は T^3 に比例する。こうしてカピッツァ抵抗の温度依存性が説明される。

カピッツァ抵抗を低減するため、熱交換の表面積はできるだけ大きくする必要がある。分留器の直下にある連続型熱交換器（図 9 参照）では、希薄相が流れる Still line の内部に濃厚相が通るコイル状に巻かれた細管が収まっている。別名、tube in tube 型熱交換器ともいう。一方、その下にある 1~5 段のステップ型熱交換器では、この方法では接触面積が足りないので、銀や銅の微粒子を焼結したスポンジ状のものを隔壁にプレスする。これには日本製の銀微粒子がもっぱら使われている。粒径 100 ナノメートル（100 nm）ほどで、1 g あたり 2 m^2 という大きな表面積をもつので、1 段あたりの表面積は 100 m^2 のオーダーである。

ところで 10 mK 以下の温度になると、純粋な液体 ^3He と焼結銀粉の間のカピッツァ抵抗の温度依存性は T^{-3} から T^{-1} に変化して温度依存性がゆるやかになることが知られている（図 12）。 $^3\text{He}-^4\text{He}$ 混合液の場合は、 T^{-2} に変化する。これは、 ^3He の原子核のスピンと金属中のおそらくは磁性不純物原子の電子スピンとの間に直接的な磁気相互作用を介した熱経路が存在することを示している。

その他の工夫

希釈冷凍機には、以上の他にも無数の技術的な工夫が凝らされているが、そのうちいくつかを紹介する。まず、分留器の設定温度、循環ポンプの排気速度、Still line および Condense line の配管コンダクタンスなどで決まる平衡状態での ^3He 循環量 \dot{n}_3 のもとで、Condense line の各所の平衡圧力が適切な値となるよう調整されている。具体的には、循環ポンプの吐出側圧力はポンプ自体も含めた耐圧以下（普通は大気圧以下）としないといけない。また、1 K ポットでは戻ってきた ^3He を確実に液化させたいし、分留器から連続熱交換器にかけては再蒸発しないよう飽和蒸気圧以上の圧力を保つ必要がある。もし再蒸発してしまうと密度の逆転が起こって各所の熱的絶縁が取れなくなり、希釈冷凍機はうまく作動しない。これらの調整のために 1 K ポットや分留器の直下に、適切な管径

と長さの細管からなるフローインピーダンスを設けている。

熱交換器に求められる性能はカピツァ抵抗の低減だけではない。自由空間の体積が必要以上に大きいと冷凍機全体としての熱緩和時間が長くなってしまい、高価な ^3He の使用量も増えてしまう。また、濃厚相や希薄相はそれぞれ無視できない粘性をもち、流れによる粘性発熱の問題がでてくる（注7）。フェルミ粒子系の粘性は準粒子の平均自由行程に比例するので、温度の2乗に反比例して低温で急速に大きくなる。また ^3He 循環量の2乗にも比例するので、大きな冷却力をもち最低到達温度も低い高性能な希釈冷凍機ほど深刻な問題となる。真空配管の粘性流領域におけるインピーダンスと同じように粘性発熱も管径の4乗に反比例するので、管径を上げればよいと思うかも知れないが、逆に上げすぎると混合器への熱流入量が増えてしまう。それぞれの仕様に合わせたパラメータの適正化が必要となる。

他にも、平衡状態での ^3He - ^4He 相分離界面が混合器内の焼結銀層と焼結銀層の間に設けた自由空間にちょうど位置するよう ^3He 総量を適切に調整しておく必要がある。 ^3He 総量が少なすぎると相分離界面が上昇しすぎて混合器の外に出てしまうし、逆に多すぎると焼結銀層中に相分離界面が入ってしまう。前者の場合、界面の面積が減少して ^3He 循環量が減少してしまうし、後者の場合は焼結銀というマイクロ多孔体中を ^3He 成分が流れることになって循環量も減り粘性発熱も増えて、本来の性能が発揮できない。

最後に、分留器から排気される ^3He に混入する ^4He 濃度をできるだけ低くする工夫について述べる。式(7)から明らかなように \dot{n}_3 が減少することで冷却力は減少してしまう。さらに Condense line 側の ^4He 濃度が上がると、式(6)にあるように ^3He のモルエントロピーが増加するので比熱も大きくなり、熱交換器内での予冷性能が落ちる。 ^4He 濃度が増えてしまう原因として、分留器直上の Still line の管内壁をフィルムフロー現象ではい上がる超流動 ^4He 薄膜の存在がある。蒸気圧の高い高温部まではい上がりそこで ^4He が蒸発すると排気ガス中の ^4He 濃度は必然的に上昇してしまう。フィルムフローを断ち切るには、Still line 内に鋭利なエッジをもつオリフィスを設けたり（図9参照）、フィルムをヒーターで加熱・蒸発させ局所的に再凝縮させるフィルムバーナー機構を取り付ける方法がある。

（注5）ヒーターで熱を加えて分留器温度を強制的に約 0.7 K に保つ理由は、そうしないと ^3He クライオスタットと同じ断熱蒸発冷却の原理で分留器の温度が 0.3 K 程度まで下がってしまい、十分な ^3He 蒸気圧つまり流量を確保できないからである。

（注6） ^3He と ^4He の蒸気圧の大きな違いは沸点の違い（それぞれ 3.2 K と 4.2 K）に由来するが、そもそも化学的な性質がまったく同じ同位体なのになぜこれほど沸点が異なるか不思議に思うかも知れない。これは両者の原子質量の差からくる量子効果のためである。前節で説明したように、零点振動エネルギーが大きい分、液体 ^3He の方が液体 ^4He より密度が小さく、周囲の原子から受けるファン・デル・ワールス引力が弱いので沸点も低くなる。 ^3He と ^4He の量子統計性の違いが原因ではないので、注意が必要である。

（注7）10 mK での純粋液体 ^3He の粘性は室温の水の3倍で、灯油と軽油の間である。希薄相の粘性は濃厚相と同じ温度依存性をもち、大きさはその1/10である。希釈冷凍機では Still line も Condense line も同じ ^3He 循環量なので、Still line（希薄相側）の方が粘性発熱の問題はより深刻である。

4. 希釈冷凍機の進歩

低温物理学の研究成果が生んだ希釈冷凍機という画期的な冷凍装置が誕生して半世紀以上が経つ。この間、多くの専門家が創意工夫を重ね性能や利便性の向上に努めた結果、まえがきにも述べたように、その応用範囲は飛躍的に広がった。希釈冷凍機ほど大きな冷却力を持ち mK 温度を連続的に発生できる装置は他にない。

最高性能の追求

一般に希釈冷凍機の性能は、最低到達温度 T_{\min} と $T = 100$ mK における冷却力 $\dot{Q}_{100\text{mK}}$ の二つで比較する。前者は混合器への熱流入量で決まるので熱交換器の能力の目安であり、後者は ^3He 循環量で決まるので循環ポンプの排気速度と Still line のコンダクタンスの大きさが利く。現在までに開発された装置で最も低い到達温度を記録したのは、ライデン大学のグループによる 1.90 mK (1987 年：注 7) とランカスター大学のグループによる 1.75 mK である (1999 年：注 8)。これらは高圧下の液体 ^3He の超流動転移温度 ($T_c = 2.5$ mK) よりも低い。最低温度を記録したときの ^3He 循環量はそれぞれ $\dot{n}_3 = 1000$ $\mu\text{mol/s}$ (マイクロモル毎秒) と 300 $\mu\text{mol/s}$ である。ライデン大学の装置は大きな冷却力を重視して開発され、最大で 10 mmol/s まで循環できる。実測された冷却力は $\dot{n}_3 = 2600$ $\mu\text{mol/s}$ のとき $\dot{Q}_{100\text{mK}} \approx 2200$ μW である。一方、ランカスター大学の装置は T_{\min} をできるだけ下げることが主眼に開発された。 $\dot{Q}_{100\text{mK}}$ の情報は公表されていないが、最大循環量が $\dot{n}_3 = 1000$ $\mu\text{mol/s}$ であることから 800 μW 前後であろう。希釈冷凍機の性能向上の歴史はこれらの装置で一つの頂点を迎えたといつてよい。そうした技術開発に支えられ、この半世紀で市販品の性能も大きく向上した。現在、標準的な市販品の性能は、比較的大型で高性能のものが $T_{\min} = 5 \sim 10$ mK、 $\dot{Q}_{100\text{mK}} = 200 \sim 500$ μW 、小型あるいは普及型のもので $T_{\min} = 50 \sim 100$ mK、 $\dot{Q}_{100\text{mK}} = 1 \sim 20$ μW である。

利便性の追求

21 世紀に入り希釈冷凍機の技術開発の主眼は、操作の利便性や構造の簡略化に移った。例えば測定試料を頻繁に交換したいとき、そのつど冷凍機全体を室温まで戻すのでは効率が悪い。大型装置の場合、昇温して再び mK 温度に戻るのに 1 週間にかかる。そのため、装置本体は低温に保ったまま、試料だけを上方の室温部から真空槽に挿入して混合器に試料を装着する (あるいは逆に、古い試料を混合器から取り出す) **トップローディング型**希釈冷凍機が開発された。試料装着による発熱は ^3He - ^4He 混合液の大きな熱容量で吸収され、混合器の温度は数 K 以下に止まる。そのため、試料交換して半日程度で再び最低温度に戻ることができる。同時に寒剤の消費も押さえられる。このタイプには、試料を混合器内部の希薄混合液中に直接浸す方式と、混合器の外壁に熱接触させる方式とがある。逆に装置下方の室温部から試料を挿入する **ボトムローディング型**もあり、より短時間かつ短いアクセス機構で試料交換できるので、大型装置の場合こちらが主流となるかも知れない。

最低到達温度は 50 mK 程度でよく、大きな冷却力や実験空間も必要としない場合、試料を取り付けたインサートごと、あるいはインサートを収納して液体ヘリウム貯槽に浸す真空槽 (IVC: Inner Vacuum Can とよばれることが多い) ごと液体ヘリウム容器 (デュワーとよばれ、断熱真空槽をもつ) から抜き差しすることもできる。これを **ディップスティック型**とよび、抜き差しするインサートや IVC の直径は 50 mm 以下と小さい。

大きな冷却力を得るには大きい ^3He 循環量が必要である。そのため、大口径の Still line や排気速

度の大きい³He循環ポンプを使うことになり、装置の大型化は避けられずコストも上がる。その回避策として、低温で作動する吸着ポンプ（ソープションポンプ）を使うことで、室温につながるStill lineや³He循環ポンプを不要にした希釈冷凍機が開発されている。吸着剤には活性炭が用いられる。ソープションポンプを5 K冷却することで蒸留器から排気した³Heガスを吸着し、30 Kに加熱することで³Heガスを脱着して混合器へ戻す仕組みになっている。ソープションポンプを2台並列にして吸脱着を交互に行えば連続運転も可能である。加熱と冷却の切り替えは、ソープションポンプの断熱真空槽に熱交換用の³Heガスを出し入れすることで行う（ガス熱スイッチ）。

無冷媒希釈冷凍機の登場

利便性の追求という面では、最近、重要な技術革新があった。すなわち、液体ヘリウム寒剤を使わず数ケルビンの極低温を発生できるパルス管冷凍機の性能と信頼性が上がり、これを希釈冷凍機の予冷段に用いた製品が普及するようになった。無冷媒希釈冷凍機とかドライ希釈冷凍機などと呼ばれる。パルス管冷凍機の仕組みは、一端をバッファ体積とオリフィスで連結した管内に作業気体である圧縮⁴Heガスをもう一端から周期的に加え、そして抜き出すことで、管内に大きな圧力振動を発生させるという比較的単純なものである。詳しい原理の説明は割愛するが、気体の熱音響効果を利用することで低温部にピストンなど機械的作動部品がないのが特徴である。今日では単に「冷凍機」というとパルス管冷凍機を指すことが増えた。

無冷媒希釈冷凍機にはまず、液体ヘリウム寒剤を定期的に継ぎ足さなくてすむという利便性と継ぎ足し時の熱的・機械的擾乱が避けられる利点がある。それに加え、従来よりずっと大きな実験空間を確保できる。インサートをIVCの中に納める必要がないので、IVCにつきものの低温真空シール（インジウムO-リングを使う）が不要だけでなく、液体ヘリウム槽からIVC内ヘリド線を導入する部分の真空シールも必要ない。これは数百本ものマイクロ波同軸ケーブルを混合器まで配線する超伝導ビット式の量子コンピュータへの応用では決定的に有利な点である。従来タイプの希釈冷凍機でIVCを大口径にするとデュワーの開口部もそれに合わせて拡大せねばならず、室温からの熱流入が増え液体ヘリウム寒剤の蒸発率が急上昇してしまう。それを避けようと核磁気共鳴分析装置でよく見られる開口部だけ絞ったデュワーを使うと、今度は配線や試料も含めてIVC内のインサート部を全く調整・交換できなくなってしまう。

このように利点の多い無冷媒希釈冷凍機であるが、振動問題には注意が必要である。まず作業ガスの大きな圧力振動（1 MPa以上）でパルス管自体が変形するので低温部で機械振動が発生する。また、ガスの圧力振動を生成するためのロータリーバルブや圧縮機などが室温部で大きな機械振動を発生する（各部を連結する高圧ガス配管からは不快な低周波雑音も）。そのため振動に敏感な精密測定にはあまり向かない。また、圧縮機の使用電力が大きい、機械摺動部の定期的な部品交換や保守点検が欠かせないなど、ランニングコストが想像以上にかかることも注意が必要である。このようにさらなる改良の余地はあるものの、操作の自動化も進み、ボタン一つで室温からmK域まで2~3日で自動的に到達する利便性が希釈冷凍機の普及に果たした役割は大きい。

（注7） G. A. Vermeulen and G. Frossati, *Cryogenics* **27**, 139 (1987).

（注8） D. J. Cousins et al., *J. Low Temp. Phys.* **114**, 547 (1999).