

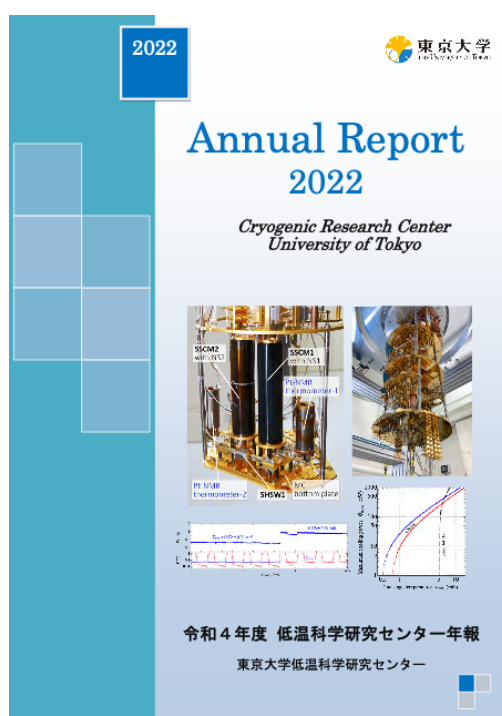
# Annual Report 2022 Cryogenic Research Center The University of Tokyo

技術ノート

## サブミリケルビン連続発生冷凍機の試作 (I)

pp. 115-120

東京大学 低温科学研究センター  
戸田 亮、瀧本翔平、村川 智、福山 寛



[CRC Annual Report 2022, Volume 14 \(October, 2023\)](#)  
Cryogenic Research Center, The University of Tokyo

## サブミリケルビン連続発生冷凍機の試作(I)

低温科学研究センター・共同利用部門<sup>1</sup>、研究開発部門<sup>2</sup>

戸田 亮<sup>1</sup>、瀧本翔平<sup>2</sup>、村川 智<sup>2</sup>、福山 寛<sup>2</sup>

### さらなる低温を目指して

近年、10 mK（ミリケルビン）の極低温を連続発生するヘリウム3-ヘリウム4希釈冷凍機が、物性研究だけでなく、超伝導式量子コンピューター開発や高感度粒子検出器をはじめとする量子センサー開発など最先端の量子科学技術分野に広く普及してきた。ある調査結果[1]をもとに概算してみると、2021年時点で年間400台以上の無冷媒希釈冷凍機が世界で販売されたようで、その市場規模は今後も増え続けると予想されている。mKという極限的な低温を作り出す高価な基礎実験装置としては、これは相当な規模と言える。半世紀以上前の1966年に、ヘリウム3やヘリウム4の量子液体相の研究をしていた英国のグループ[2]と偏極核による原子核実験を行っていた旧ソ連のグループ[3]がほぼ同時に希釈冷凍機を初めて作り出したとき、今日の活況をどれだけの人が予想できたろう。

極低温を必要とする理由には、その温度域ではじめて発現する特異な量子現象を研究したいという物質科学的興味や、その量子現象を精密測定手段（例えば、超伝導量子干渉磁束計）として利用したい、などが従来からある。それらに加えて最近では、暗黒物質探索やX線観測衛星などのようにできる限り小さいエネルギー変化を検出したい、そのために熱雑音のできるだけ少ない静寂な環境つまり「極めて低い絶対温度」自体への需要が高まり、これが市場規模を拡大させている。こうした新たな分野では、原理的に温度は低ければ低いほど有利だし、連続観測時間は数ヶ月から数年のオーダーになることも多く、衛星搭載用途に限らずできるだけ軽量かつ小型である方が望ましい。

こうした背景のもと我々は、近未来の基礎研究の温度フロンティアを10 mKから1桁以上低温に拡張したサブmK温度（ $T < 1$  mK）を連続発生し、既存の希釈冷凍機に後付けできるほど小型で取り扱いも簡便な連続核断熱消磁冷凍機（CNDR：Continuous Nuclear adiabatic Demagnetization Refrigerator）の開発を進めてきた。この技術ノートでは、CNDRの着想、概要、動作原理を詳しく解説し、続いて最近完成した試作機による実証テストの第一報を紹介する。テスト結果は良好で、 $T = 0.72 \pm 0.01$  mKを連続発生することに成功した。これは、レーザー冷却のように研究対象そのもの（希薄原子気体など）を冷却する直接冷却法や微小チップだけを冷却できるマイクロ冷凍ではなく、ほとんどのような試料でも、あるいはマイクロ波キャビティなどbulkyな装置でも冷却できる間接冷却（以下、冷凍と記す）装置として、サブmK温度を制限なく連続的に維持できることを実証した初めての冷凍機である。

### サブmK連続発生冷凍機（CNDR）の着想

断熱消磁冷凍には、電子スピンの自由度を利用するADR（Adiabatic Demagnetization Refrigerator）とモーメントが3桁小さい核スピン自由度を利用するNDR（核断熱消磁冷凍機）がある。ADRは製品化されており、その最低発生温度は100 mK前後である。一方、NDRは製品化されていないが研究室レベルでは多数製作例があり、Cuを磁気作業物質として0.1~0.6 mKを発生できるものが多い[4]。断熱消磁型の冷凍機は単発式であり、外来の熱リークや測定発熱のためにいつかは予冷段の温度まで昇温してしまう。これを利用した経験のある研究者なら一度は、2つの磁気ステージ（磁気作業物質とこれに直結し

た熱リンクの総称。NDR の場合は核ステージ) を使えば最低発生温度を連続的に維持できるのではないかと考えるに違いない。実際、ADR にはそうした連続冷凍機が実例は少ないが存在し[5]、ごく最近製品も現れた。しかし、NDR の場合、使用する超伝導マグネットが最大発生磁場 7~9 テスラ (T)・ボア径 70~100 mm と大型であり、その磁場補償空間 (実験空間) も含めれば、予冷段の希釈冷凍機の下にすでに 1 m 近い空間を占有している。これを 2 段にすれば、装置全体の長さ (高さ) は 3 m 以上と長大にならざるを得ず、なかなかハードルが高い。そのため、連続型 NDR がこれまで建設されたことはない。

これに対して我々は、磁気作業物質として印加磁場が実効的に 12 倍に増強される特殊な増強核磁性体 PrNi<sub>5</sub> [6] を少量小型超伝導マグネットに納めて全体を磁気シールドで覆えば、核ステージが相当小型化できるので、これを 2 つ隣接して設置すればコンパクトな CNDR を作れるのではないかと発想した[7]。ただ、増強核磁性体とは言え少量 (10 cm<sup>3</sup> 程度) であり、マグネット直近で磁気シールドできるほど低い磁場 ( $B \approx 1$  T) からの断熱消磁で本当に実用的な冷却力が得られるか必ずしも自明ではない。そこで熱モデルを立ててシミュレーションしたところ、100 mK での冷却力が 100  $\mu$ W で最低維持温度 (ベース温度) が 15 mK の比較的小型の希釈冷凍機を予冷段として使っても、外部からの熱リークが 10 nW のもとでベース温度 0.8 mK のコンパクトで実用的な CNDR が実現可能だと分かった[8]。

10 nW という小さな冷却力で本当に実用性があるのか疑問に思うかも知れないが、そもそも冷凍機とは、対象とする温度域で自由度の温度変化が大きい物質を選んでそのエントロピーを外部制御し低温を得る仕掛けなので、仮に同程度のエントロピー変化  $\Delta S$  を制御すると考えれば、低温になるほど冷却力が小さくなるのは当然である ( $\because \Delta Q = T\Delta S$ )。そして冷凍機は通常、それぞれ適切な作業物質を使った複数の冷却段が 300 K  $\rightarrow$  4 K  $\rightarrow$  0.7 K  $\rightarrow$  0.01 K  $\rightarrow$  0.0008 K のように 1~2 桁の温度比でカスケード接続されている (ウェットタイプの希釈冷凍機の例)。各冷却段は、次の低温段を予冷するとともに低温側への外来熱リークを遮断する役目も果たす。熱絶縁体の熱伝導率 ( $\kappa_T$ ) は  $T \leq 1$  K の極低温下で  $\kappa_T \propto T^\alpha$  ( $\alpha = 2 \sim 3$ ) のように温度の冪乗で急低下するので、注意して設計すればサブ mK 段への熱リークを 10 nW まで落とすのはそれ程難しくない。このように、低温になるほど冷凍機の冷却力は減少するが、そもそもより小さい (熱) エネルギー変化の検出を求めて低温にするのであればそれは問題ではなく、その環境を維持できる断熱性も自然に得られるので、さらなる低温を目指すことは本質的に有意義である[9]。

ただし、2 つの核ステージ間のエントロピーの受け渡し (ポンピング) は熱伝導の形で行われるので、両者の間の熱伝導性が十分良くないとステージ間の温度差を大きくする必要があり、CNDR の性能は劣化してしまう。熱伝導は不可逆過程であり、温度差が大きくなると準静的変化からのずれ (不可逆性) によるエントロピー増大が大きくなり、ポンピングできるエントロピー量が減ってしまうのである。具体的には、両ステージ間の全熱抵抗 ( $K_T$ ) は  $T = 4$  K での残留電気抵抗 ( $R_0$ ) で表して 200 n $\Omega$  以下とする必要がある (後述する熱スイッチ 2 が閉状態の時) [10]。もう一つ、低温になればそれだけ測定に付随した発熱も押さえる必要がある。ただ、現状でもサブ mK 実験環境に適合した測定手段は多数ある。

## CNDR の概要と動作サイクル

図 1 は、実際に試作した CNDR の構成を横方向に展開した模式図である。CNDR には 2 つの核ステージを並列接続するタイプと直列接続するタイプの 2 種類あるが、試作機では、冷却力は劣るが熱スイッチの数が少なく構造がより単純な直列型をまずは採用した。磁気シールドされた小型超伝導マグネットに収

めた 2 つの  $\text{PrNi}_5$  核ステージ (NS1、NS2) のうち、NS2 は常時試料と熱接触しており、エントロピーポンピング過程を除き常にゆっくりと消磁することで外来熱リークや測定発熱を吸熱し(吸熱によって核スピン系のエントロピーは上昇する) 試料温度を一定に保つ役割を担う。これに対して、NS1 は NS2 に蓄積したエントロピーを自身に移しこれを予冷段の希釈冷凍機に吐き出すサイクルを担う。希釈冷凍機と NS1、NS1 と NS2 の間にはそれぞれ Zn の超伝導熱スイッチ (HSW1、HSW2) を設け、各過程での熱のやり取りを遮断 (開)・導通 (閉) する。実際には、主要構成要素の核ステージ、磁気シールド付き小型超伝導マグネット、Zn 超伝導熱スイッチを図 2(a)のように U 字型に配置し、装置全体ができるだけコンパクト (156W×84D×240H : 単位は mm) になるよう工夫してある。図 2(b)の写真にあるように、実験空間を広く取れる最近の無冷媒希釈冷凍機であれば、十分後付けできるサイズである (この写真には冷却テストで暫定的に使った 2 つの Pt-NMR 温度計[4]も CNDR の両端に写っている)。試作機の全重量は約 5 kg であるが、1 kg は減量できそうな余地がある。

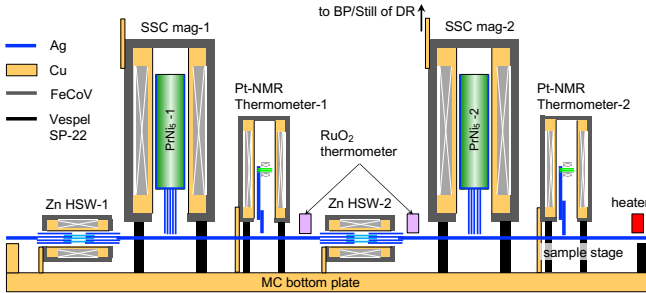


図 1 CNDRの概念図。中央の第2熱スイッチの右が第2核ステージ (NS2 : 試料ステージ) 側で、左が第1核ステージ (NS1) 側。最底部は希釈冷凍機の混合器温度で、断熱消磁用超伝導マグネットは断熱支持棒 (黒色) で最底部に固定されている。

各構成要素の製法と性能評価の結果は文献[11-13]で詳述したので割愛するが、いくつかのポイントを挙げておく。磁気作業物質 ( $\text{PrNi}_5$ ) と熱リンク (アニールした高純度 Ag 線) は Zn ハンダで接続した。その接触熱抵抗 (4 nΩ) は Ag 線や  $\text{PrNi}_5$  自身の抵抗より 1 桁小さくできた[11]。超伝導マグネットの磁気シールドは、逆巻き超伝導コイルで囲うアクティブシールド方式ではなく、飽和磁束密度の高い高透磁率材  $\text{Fe}_{0.49}\text{Co}_{0.49}\text{V}_{0.02}$  で囲う方式とした。この方が中心磁場の大きさや均一度を高くできる[12]。超伝導マグネットの線材 (NbTi) は第 II 種超伝導体なので、磁場掃引するとき磁束量子の不可逆運動に伴って発熱する。単位体積当たりの発熱量はマルチフィラメント線材のフィラメント径にほぼ比例して増加することが分かったので、細いフィラメント径 (10 μm φ) の線材を使った[12]。超伝導熱スイッチは閉から開への切替時に発生する磁気潜熱が臨界磁場の 2 乗に比例する一方、転移温度の 1/10 以上の温度になると閉時の熱漏れが顕著になる。Zn を超伝導エレメントに使うことで、これら相反する要求を十分満たす設計ができる[13]。

CNDR の動作サイクルは次の 4 つの熱過程からなり [8]、これらを図 3 のエントロピー図で説明する。

- ① 1.2 T の磁場中で NS1 (体積 10 cm<sup>3</sup> の  $\text{PrNi}_5$ ) を 24 mK から 17 mK まで予冷し、NS1 の核スピン系がもつエントロピーを希釈冷凍機に吐き出す過程。この間、HSW1 は閉、HSW2 は開。
- ② NS1 を 0.7 mK ( $T_f$ )・30 mT まで断熱消磁する過程で、最終温度  $T_f$  は、維持したい試料温度  $T_s$  (0.8

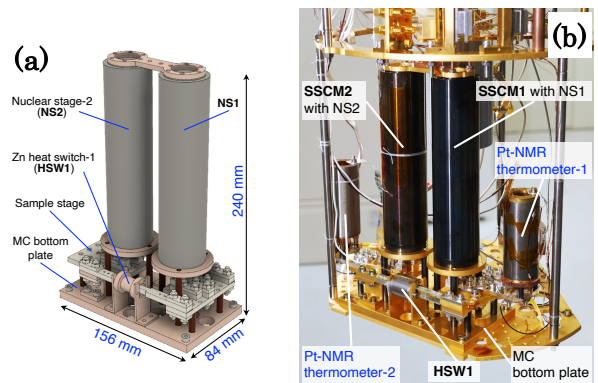


図 2 CNDRの(a)組立図と(b)希釈冷凍機に搭載した写真(暫定的に両ステージには2つのPt-NMR温度計が取付けられている)。

mK：図中緑点線）より若干低い温度とする。この間、HSW1もHSW2も開。

①②そして④の間、NS2はゆっくり消磁して $T_S$ より若干低い温度に保ち、外来熱リークや測定発熱を吸熱して試料温度を $T_S$ に保つ（上向き青矢印はこの間のNS2の核スピントロピーの増加）。

③ NS2からNS1へのエントロピーポンピングの過程で、NS2は等温励磁（下向き青矢印）しNS1は6 mTまで等温消磁（上向き赤矢印）する。この間、HSW1は開、HSW2は閉で、エントロピーを熱流として移行するため、NS2の温度は逆に $T_S$ より若干高く保つ。

④ NS1を24 mK・1.2 Tまで断熱励磁する過程。この間、HSW1もHSW2も開。なお、NS1の温度が希釈冷凍機のベース温度に到達した時点でHSW1は閉じるので、そこから先は断熱過程ではない。

①～④のサイクルを繰り返すことで（この例では4.5時間/サイクル）、無制限に長時間 $T_S$ を一定に保つことができる。なお、図中橙色点線は同体積のCu核スピンス系に8 Tを印加したときのエントロピー変化で（核スピン $I$ が異なるため高温極限でPrNi<sub>5</sub>の値と合わせた）、1.2 T中の増強核磁性体PrNi<sub>5</sub>と同じエントロピー変化を得るには8 Tを印加しなければならないが分かる。

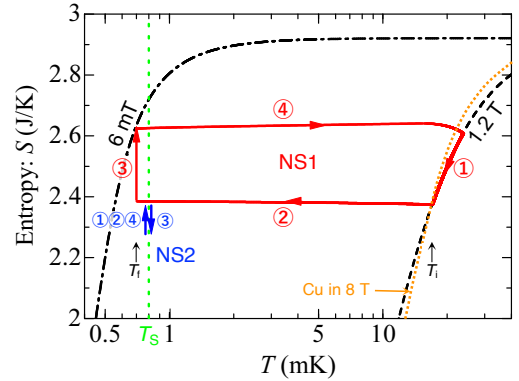


図3 CNDRの熱サイクルのシミュレーション結果[8]。赤線と青矢印はそれぞれNS1とNS2のエントロピー変化。橙色点線は同体積のCu核スピンス系に8 Tを印加したときのエントロピー変化。

## テスト冷却の結果

図4に試作機の冷却テスト結果の一例を示す。ここでは1.5日間・9サイクルにわたり、前半 $T \approx 0.7$  mK、後半 $T \approx 1.0$  mKを連続発生させたときのNS2ステージ（試料ステージ）に固定したPt-NMR温度計の読み（ $T_{ST2}$ ）とNS1とNS2に印加した磁場（ $B_{NS1}$ と $B_{NS2}$ ）の時間推移を示した[14]。テスト冷却では、各構成要素間の熱抵抗や各要素への熱流入を実測すること、そして複数回の一定熱サイクルのもとで温度がどのように時間推移するかの実測が目的だったので、必ずしも $T_S$ を正確に一定に保つ努力（例えば電気ヒーターによる試料ステージへの入熱）はしていない。それでも $T_{ST2} = 0.72 \pm 0.01$  mKそして $0.96 \pm 0.01$  mKと高い精度で試料ステージの温度を固定できている。希釈冷凍機のヘリウム3循環経路の閉塞や停電など外的要因がない限り、無制限にサブ mK 温度を発生・維持できることが実証できた。なお、この冷却テストは当低温科学研究センターのミリケルビン量子プラットフォームに設置された希釈冷凍機[15]（公称値でベース温度10 mK、100 mKでの冷却力400  $\mu$ W）を共同利用して実施した。

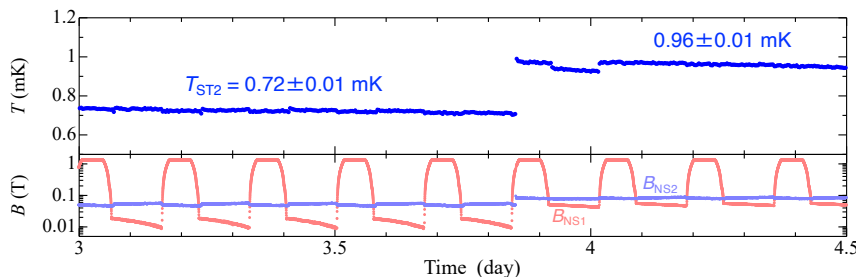


図4 CNDR試作機の冷却テストの一例[14]。図が煩雑になるのを避けるため $T_{ST1}$ のデータは省略した。

図5は、上記冷却テストで決定した熱抵抗値や熱流入値を使い、熱シミュレーションで予測した最大冷

却力 ( $\dot{Q}_{\max}$ ) の温度変化である (赤点)。ここで  $\dot{Q}_{\max}(T_{ST2})$  とは、ある  $T_{ST2}$  を維持するとき持ち得る最大の冷却力のことで、このとき熱サイクルのパターン (NS1 の予冷時間、NS2 から NS1 へのエントロピーポンピングの際の  $T_{ST1}$  と  $T_{ST2}$  の値そしてポンピングにかかる時間) はユニークに定まる (最適サイクル)。あるいは単純化して言えば、 $T_{ST2}$  を所望の温度に固定したいときは、最適サイクルで運転した上でこの図で決まる一定の熱量をヒーターで与えれば良い。 $T=1, 2, 3$  mK における最大冷却力は 9, 50, 100 nW となるはずである。

一般に希釈冷凍機は温度の二乗に比例する大きな冷却力をもつが、10 mK 以下では液体ヘリウム 3 循環に伴う粘性発熱のため冷却力が急減する。図 5 の黒破線は最もベース温度が低い製品の実測値である [4]。本機を追加すれば、サブ mK 温度を発生・維持できるだけでなく、市販の希釈冷凍機では到達不可能な  $1 \leq T \leq 5$  mK の温度域が簡単に手に入る事が分かる。なお、このシミュレーションは冷却テストに使った希釈冷凍機の場合について行った。

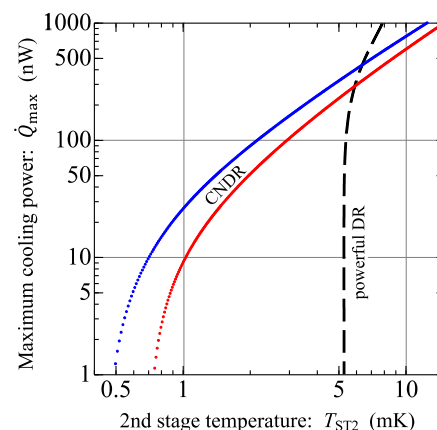


図5 CNDR試作機の最大冷却力のシミュレーション結果。赤丸は現状、青丸は本文に記した改良を施した場合。黒破線は最も高性能な市販の希釈冷凍機の冷却曲線 [4]。

## 今後の展望

今後はまず、図 5 のシミュレーション (赤点) と実測の一致を調べる実験を行いたい。続いて数々の装置改良の計画がある。まず、(i) 暫定使用している Pt-NMR 温度計は連続的な測温ができず (1 mK で約 100 秒の測温間隔をあける必要あり)、それなりの大きさ (32φ × 90L) があるので CNDR 本来のコンパクトさを損ねている。そのため、新しい小型連続測温サブ mK 温度計を開発したい。次に、(ii) 1 核ステージ当り 4 nW の残留熱リークを 1 桁減らしたい。冷却テストを通じて、熱リークの主成分が希釈冷凍機の予冷段に使われているパルス管冷凍機の機械振動由来だと分かったので、核ステージのより強固な断熱支持法を開発する。そして、(iii) 両核ステージ間の全熱抵抗を現行の 270 nΩ から 140 nΩ 以下に半減したい。いくつかの改善策の腹案がある。(ii) と (iii) を改良できれば、この CNDR 試作機は最終的にベース温度 0.5 mK、 $T=1, 2, 3$  mK における冷却力 26, 90, 150 nW の能力を発揮するはずである (図 5 青点)。また、より大きな冷却力が期待できる並列型 CNDR も将来試してみたい。とは言え、現状の試作機はベース温度 0.7 mK を発生維持しており、 $T=1, 2, 3$  mK での冷却力は 9, 50, 100 nW と評価できるので (図 5 赤点)、すでに実用機と呼んで差し支えない性能をもっている。元々、本開発に成功した暁には、これをミリケルビン量子プラットフォームの新たな共同利用装置として全国的な共同利用に供する計画を温めていたので、サブ mK 温度の実験にご興味のある研究者はご相談下さればと思う。

最後に、本開発はミリケルビン量子プラットフォームを共同利用できたことで、格段にスピードアップしました。同プラットフォームの開設をバックアップ下さった歴代低温科学研究センター長の大越慎一教授 (大学院理学系研究科)、鹿野田一司教授 (現 University of Stuttgart)、そして現センター長の島野亮教授に感謝いたします。装置部品の大部分は理学系技術部・装置試作室に、一部は生産技術研究所・試作工場に加工いただきました。本研究の一部は科学研究費補助金 (15K13398) の援助のもとで行いました。執筆者の一名 (瀧本) は本学リーディング大学院 MERIT の援助を受けて本研究に従事しました。

## 参考文献

- [1] IndustryARC, “Cryogen Free Dilution Refrigerators Market – Forecast (2023–2028)” :  
<https://www.industryarc.com/Report/18092/cryogen-free-dilution-refrigerators-market.html>
- [2] H. E. Hall, P. J. Ford, and K. Thompson, *Cryogenics* **6**, 80 (1966) : ベース温度は 65 mK.
- [3] B. Neganov, N. Borisov, and M. Liburgu, *Sov. Phys. JETP* **23**, 959 (1966) : ベース温度は 56 mK.
- [4] F. Pobell, “Matter and Methods at Low Temperatures”, Third Edition, (Springer, Berlin, 2007).
- [5] P. J. Shirron et al., *Cryogenics* **74**, 2 (2016).
- [6] van Vleck 常磁性体である  $\text{PrNi}_5$  中  $\text{Pr}^{+3}$  イオンの電子スピン系の基底状態は一重項非磁性だが、外部磁場を印加すると非一重項励起状態と混合して有限のモーメントが現れ、それが超微細相互作用を通じて Pr 核スピン ( $I = 5/2$ ) 位置に外部磁場が 12.2 倍に増強された実効磁場として働く。こうした一連の増強核磁性体が NDR の有効な磁気作業物質となることや、中でも  $\text{PrNi}_5$  が 0.6 mK までは核磁気秩序しないなど最も優れた性質をもつことは、Bell 研の K. Andres による精力的な研究で明らかになった : K. Andres, S. Darack, and H. R. Ott, *Phys. Rev. B* **19**, 5475 (1979)。続いて、F. Pobell のグループが Pr 核スピン系が転移温度 0.40 mK で強磁性磁気秩序することを見出し : M. Kubota, et al., *Phys. Rev. Lett.* **45**, 1812 (1980)、転移温度直下の 0.3 mK 程度まで発生できる NDR が各地で製作された。こうした NDR 開発の歴史は Ref. [4] に詳しい。
- [7] 戸田亮, 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 I」、第 70 回日本物理学会年会 (2015 年 3 月、早稲田大学) 講演番号 22pAA.
- [8] R. Toda, S. Murakawa, and H. Fukuyama, *J. Phys. Conf. Ser.*, **969**, 012093 (2018).
- [9] 最後は、宇宙線や環境由来の  $\gamma$  線が冷凍機の構成物質と相互作用する際放つエネルギーが熱リーク量 ( $\sim 0.1$  nW) を決めるとされ、これが律則となる場合、NRD のベース温度の最下限は  $\mu\text{K}$  域になる。例えば、P. Schiffer et al., *Phys. Rev. Lett.* **69**, 120 (1992); E. Nazaretski et al., *J. Low Temp. Phys.* **137**, 609 (2004) を参照。
- [10] 極低温下での熱の良導体は Cu や Ag などの純金属であり、そこでは熱伝導度 ( $K_T$ ) と残留電気抵抗 ( $R_0$ ) の間に Wiedemann-Franz 則 :  $K_T = \mathcal{L}_0 T / R_0$  ( $\mathcal{L}_0 = 2.44 \times 10^{-8} \text{ W}\Omega\text{K}^{-2}$  は Lorenz 数) が成り立つ。極低温で温度をさまざまに変えて  $K_T$  測定するより、1 つの標準温度 ( $T = 4.2 \text{ K}$ ) で  $R_0$  を測定する方がずっと容易なので、通常この法則を利用して、測定した  $R_0$  値から  $K_T(T)$  を推定する方法が取られる。なお、有名な Ref. 4 の教科書には、数 K の温度域で Ag や Al で異常に低い  $\mathcal{L}_0$  値 (1/2 から 1/20 : つまり  $\mathcal{L}_0$  が定数でない) を示す研究が紹介されており混乱があるが、我々は最近、Ag と Zn に関しては少なくとも 1 K 以下では  $\mathcal{L}_0$  値に異常がないことを実測して確認した (Ref. 13 参照) .
- [11] S. Takimoto, R. Toda, S. Murakawa, and H. Fukuyama, *J. Low Temp. Phys.* **208**, 492 (2022).
- [12] S. Takimoto, R. Toda, S. Murakawa, and H. Fukuyama, *J. Low Temp. Phys.* **201**, 179 (2020).
- [13] R. Toda, S. Takimoto, Y. Uematsu, S. Murakawa, and H. Fukuyama, arXiv:2209.08260v1.
- [14] 瀧本翔平, “Development of Compact and Continuous Nuclear Demagnetization Refrigerator”, 博士論文、東京大学 (2023) .
- [15] 福山寛 「ミリケルビン量子プラットフォームの開設」、2021 年東京大学低温科学研究センター年報 (pp. 71) ; <http://www.crc.u-tokyo.ac.jp/FSI/index.html>