

氏名・(本籍)	さ 佐	とう 藤	なお 直	き 記
学位の種類	理	学	博	士
学位記番号	理博第	846	号	
学位授与年月日	昭和59年3月27日			
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当			
研究科専攻	東北大学大学院理学研究科 (博士課程)物理学第二専攻			
学位論文題目	$^4\text{He}$ 循環型希釈冷凍機による超低温生成の研究			
論文審査委員	(主査)			
	教	授	大塚泰一郎	教
				授
				武藤芳雄
				教
				授
				信貴豊一郎
				助
				教授
				佐藤武郎

## 論 文 目 次

第1章	序 論
第2章	歴史的背景
第3章	$^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈溶液の性質
第4章	境界熱抵抗
第5章	希釈冷却法
第6章	実験装置
第7章	実験結果
第8章	考 察
第9章	総 括
	図 面
	謝 辞

# 論文内容要旨

## 第1章 序 論

本研究の目的と意義。本論文は、 $^4\text{He}$  循環型希釈冷凍機の考察に基く機構の究明を目的とし、最低到達温度の新記録達成を目差して超低温生成の研究を行ったところ、 $^4\text{He}$  循環量に臨界値が存在する事、熱交換器が異常な温度分布を呈する事、及び理論値以上の冷却能力を有する事などの新しい事実が発見されるに至ったので、それを論じたものである。

## 第2章 歴史的背景

本研究の歴史的経緯。希釈冷却法とは、1951年、1962年の二度に渡り、H.Londonによって提唱された。しかし、実際の冷凍機として成功し、10mK以下の温度を生成できるようになったのは、1968年以降のことである。而も、それは、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  希釈冷凍機(以下D. Rと略す)のうち、 $^3\text{He}$  循環型( $^3\text{He}-\text{D. R}$ )と呼ばれる冷凍機において達成された。本研究で基礎実験を行った $^4\text{He}$  循環型( $^4\text{He}-\text{D. R}$ )の方は、1976年になって、Leiden大グループにより初めて報告された<sup>1)</sup>。だが $^4\text{He}-\text{D. R}$ の実験報告はこれ以外になく、冷凍機の基礎的な実験は殆んど行われていないのが現状である。本研究はこの様な経緯に基づき、 $^4\text{He}-\text{D. R}$ の基礎実験を進めて来たところ、1981年以降新しい事実が発見される様になった<sup>2)</sup>。

## 第3章 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈溶液の性質

希釈冷却を行う上で必要な、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  混合溶液の熱力学的性質についてまとめる。 $^3\text{He}/^4\text{He}$  混合溶液は三重点( $\sim 0.86\text{K}$ )以下の温度では $^3\text{He}$  希薄相(d相と略す)と濃厚相(c相と略す)とに相分離を起こす。0.6K以下のd相では、超流動 $^4\text{He}$ は、もはやエントロピーを殆んど持たず、 $^3\text{He}$ 原子に対しては、熱的に不活性な機械的真空と呼ばれる単なる背景にすぎない。従って $^3\text{He}$ 原子を同数の $^3\text{He}$ 準粒子に置きかえて考えると濃度( $=n_3/n_3+n_4$ , ここで $n_3, n_4$ は $^3\text{He}, ^4\text{He}$ のモル数)の小さい所では、準粒子より成る系は、超流動 $^4\text{He}$ の中に閉じ込められた理想フェルミ気体と近似される。故にd相の比熱、エントロピーは、理想フェルミ気体のそれとして、温度Tに比例する。又、超流動 $^4\text{He}$ の中では、絶対零度であってもフェルミ圧力として知られる有限の値を示す。

## 第4章 境界熱抵抗

低温における熱伝達の上で大きな問題は境界熱抵抗の存在である。一般に密度の異なる物質間を熱流が過ぎる時、境界面で温度の不連続を生じる。それは熱伝達の担い手がフォノンであるとする、温度Tの $1/T^3$ に比例する境界熱抵抗が存在し、低温になるほど熱伝達が難しくなるからである。その原因は、音響子不整合の理論で説明される。

## 第5章 希釈冷却法

(5.1節) 古典的熱学手法による低温生成の限界について。

(5.2節) 古典的限界を超えるものとして、量子論的物理学を踏まえた希釈冷却法の原理について。即ち、希釈冷却法とは、超流動 $^4\text{He}$ の中に閉じ込められた理想フェルミ気体に等エントロピー過程を適用したものである。その方法には二つあり、第一は、断熱膨張型希釈冷却法、第二は断熱蒸発型希釈冷却法である。

(5.3節) 冷凍機の種類。実際の連続運転には $^3\text{He}$ を循環させるか( $^3\text{He-D. R.}$ )、 $^4\text{He}$ を循環させるか( $^4\text{He-D. R.}$ )によって冷凍機が分類され各々独特の特徴をもつ。

(5.4節)  $^3\text{He-D. R.}$ と $^4\text{He-D. R.}$ の機能と熱力学的解析の要点及び $^4\text{He-D. R.}$ の特徴と検討すべき点の整理。 $^4\text{He-D. R.}$ の熱交換器内では、d相とc相とが互に相平衡状態であるので、 $^3\text{He-D. R.}$ の熱交換器の様に壁の介在を必要とせず、液体同志で直接熱交換の出来る理想的な機構をもつ。この点が $^4\text{He-D. R.}$ の最も特徴とする点である。又、気相が存在しないので $^4\text{He-D. R.}$ は25気圧の高圧下まで希釈冷却が可能である点も特筆すべき点である。しかし、此の様な理想的な機構をもつにもかかわらず、最低到達温度を $^3\text{He-D. R.}$ の場合(=2mK)と比較すると、8mK近傍と比較的高い温度に止まり、その原因は明らかでない。従って、実際に稼働している $^4\text{He-D. R.}$ では、本当に理想的な熱交換が実現されているものなのか検討する必要がある。そこで次の二点について検討した。

第一は、量子流体での境界熱抵抗( $R_q$ )の理論的評価を試みた。

即ち、d相とc相間の熱伝達の担い手は、充分な低温では、d相とc相の界面を透過する励起された準粒子であると考え、境界熱抵抗( $R_q$ )の大きさを試算した。その結果を実際の $^3\text{He-D. R.}$ での銅とd相間の境界熱抵抗( $R_K$ )の測定値(J.C. Wheatly et. al.<sup>3)</sup>)と比較したところ、10mKでは $R_q/R_K \sim 10^{-8}$ と極めて小さい。

第二の点は、 $^4\text{He-D. R.}$ の熱交換器内でd相が液滴状となってc相と熱交換をする場合、液滴の直径だけ落下するうちには十分に熱平衡に達しうることを示した。 $^4\text{He-D. R.}$ の直接熱交換では、上記の二点より理想的な熱交換が理論的に充分期待される。同時に(5.4節)では、境界熱抵抗( $R_q$ )が極めて小さいなら、与えられた条件のもとで $^4\text{He-D. R.}$ 混合室の最低到達温度の可能性を試算してみたところ、現在の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 希釈冷凍機での最低記録である2 mK( $^3\text{He-D. R.}$ )より更に1桁低い温度の達成の可能性も秘めている。

(5.5節)  $^4\text{He-D. R.}$ の問題点と、それに基づく本研究での実験指針。

## 第6章 実験装置

従来の $^4\text{He-D. R.}$ の問題点を考慮し、それらを克服する試みとして、本研究では独自の工夫を凝らした $^4\text{He-D. R.}$ について述べる。主な点は次の様に集約される。第一に混合室(希釈冷却が行なわれる所)を overflow 型とした点である。これによってd相の落下に伴う位置エネルギーの損失分が混合室内での発熱とならぬ様に考慮した。第二は熱交換器の測温を改良した。

即ち C.M.N 温度計を用いたことと、c 相の温度を直接測温できる様に工夫した点である。第三は<sup>3</sup>He evaporator の power up をはかり<sup>4</sup>He 循環量  $\dot{n}_4$  を大きく出来る様にした点である。その他<sup>4</sup>He-D. R の各部について詳述した。模式的な<sup>4</sup>He-D. R の図を Fig ①に示す。

## 第 7 章 実験結果

(7.1節)<sup>4</sup>He-D. R の基礎実験の結果、本研究で初めて発見された幾つかの新事実について。

まず第一に、<sup>4</sup>He 循環  $\dot{n}_4$  のある値に臨界値 " $\dot{n}_{4c}$ " が存在し、 $\dot{n}_4$  が  $\dot{n}_{4c}$  を超えると混合室の温度が急激に降温する現象が発見された<sup>2)</sup>。(Fig ②)これは本研究で初めて出現したものである。而も  $\dot{n}_4 = 3.53 \times 10^{-3}$  mole/sec のとき混合室の温度は 3.4mK に達し、従来の限界とされた 8 mK を越え、<sup>4</sup>He-D. R として新記録を達成した<sup>2)</sup>。(Fig ②)に示す)

第二は、熱交換器に沿った温度分布を測定したところ、 $\dot{n}_{4c} < \dot{n}_4$  の領域では、理想的な熱交換が実現された場合に示す温度分布の理論式と、極めて良く一致することが確認された。(Fig ③)に示す)この点は Leiden 大グループでは、確認されなかったことである<sup>3)</sup>。

第三、ところが、これに反して  $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$  の領域では熱交換器の途中に温度の極大をもつ異常な温度分布が出現した<sup>2)</sup>。即ち、混合室内の相分離面より 6 cm 下近傍が昇温し、10cm 下近傍では再び降温する異常である。(Fig ④)に示す。)又、混合室の温度は約 20~30mK が限度である。

(7.2節)発見された新事実を踏えての実験について。本研究で初めて見いだされた事柄は<sup>4</sup>He-D. R の中では、何が、どの様なことで起きていると考えられるのかを調べるために実験を行った。

第一に  $\dot{n}_{4c} < \dot{n}_4$  の領域で  $\dot{n}_4$  を一定とし、混合室の温度を昇温させ熱交換器の温度分布を測定したところ、理想的な熱交換が実現されている場合の温度分布から、次第に 6 cm 下近傍に温度極大を示す異常な分布へと移行していくことが分かった。それも、混合室の温度が 30mK 近傍を境目としている。即ち、異常な温度分布も混合室の温度に依存している。(Fig ⑤)に示す)

第二に、熱交換器に外部より局所的に熱を加えた場合の温度分布の変化を測定した。その結果  $\dot{n}_{4c} < \dot{n}_4$  の領域では、理想的な熱交換が実現されていることが示され、又、 $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$  の領域では熱交換が不完全であるうえ、何んらかの熱発生機構が存在している可能性があることが分かった。(Fig ⑥と Fig ⑦)

第三には、熱交換器を、相分離面に対して傾けたところ  $\dot{n}_{4c}$  が  $\dot{n}_4$  のより大きい方へとずれることが見出された。(Fig ⑧) 以上のことから本研究で発見された新事実は、<sup>4</sup>He-D. R の熱交換器における d 相の流れの状態に少なからず起因していると考えられる。

(7.3節)冷却能力の測定結果。可逆的冷却能力以上の異常な能力が発見された。

## 第 8 章 考 察

本研究で発見された点について、d 相の流れの様相及び熱交換を中心に考察する。

(8.1節)流れの様相について。<sup>4</sup>He-D. R での d 相の流れの状態を正確に掴むのは、困難であ

る。殊に“ $\dot{n}_{4c}$ ”が出現した機構については、極めて興味をそそるものであるが、測定できる物理量は温度だけであるのでなかなかむずかしい。そこで我々のグループでは、手掛りを得る1つの方法として準備したガラス製の<sup>4</sup>He-D. R で、直接観測を試みた<sup>4)</sup>。観測可能な温度は、室温から熱輻射のため0.2Kが限度であり、本研究で発見された点(例えば“ $\dot{n}_{4c}$ ”)でのd相の流れの様子を直視することは不可能である。が、それでも幾つかの重要な手掛りが得られた。熱交換器内でのd相の流れを、古典的流体(粘性流)の流れを参考にして考える。最初は、d相は熱交換器入口の縁から溢れて壁に沿って落下するものと考えられる。古典的粘性流体では、鉛直な壁に沿って流れ落ちる場合には、重力が復元力として働かぬため、表面波の存在によって、流体の表面は絶えず不安定な状態となっている。殊に流量が流体の厚みに依存している場合には、Continuity Wave(略してC波と呼ぶ)と呼ばれる準安定的な表面波が存在する。

実際の直接観測によれば、d相は熱交換器入口の縁では、脈流、或はそれに近い状態で溢れ落ちていた。従ってd相は、厚みの不均一な壁に沿った流れと推測される。それ故古典流体を参考にすれば、壁に沿って落下するd相の表面にもC波による乱れが存在し絶えず不安定になっているものと思われる。

ところで古典流体では鉛直に流れる場合にC波が存在すれば、落下する程に“乱れ”の振幅が増大して行くことが示されている<sup>5)</sup>。而も乱れの振幅がある値以上となれば流体は千切れて崩壊していく過程(Atomization)が存在する<sup>6)</sup>。これらの点を参考にしてd相を考えると、「最初は壁にそって流れてもC波によって“乱れ”が増大し、やがて壁から剥離し、液滴を形成する」と説明付けられる。その上、<sup>4</sup>He循環量 $\dot{n}_4$ が増大し、降温にすればそれだけd相の剥離する位置が熱交換器入口に近い方へと移る。

この点は確かにガラスの<sup>4</sup>He-D. Rの直接観測において、 $\dot{n}_4$ を増大させれば overflow 型であっても、次第に熱交換器の上の方から、数は少ないものの液滴が落下しているのが観測され、定性的に裏付けられている。

従って本研究で初めて発見された“ $\dot{n}_{4c}$ ”の出現した機構とは、「<sup>4</sup>He循環量 $\dot{n}_4$ の増大と共に壁に沿って流れ落ちるd相が剥離してくる効果に加えて、形成された液滴の数が増大し、より液滴状の流れを促す効果とが相乗され、最終的には、熱交換器入口から、直ちに液滴状に形成されたd相の流れが出現し、理想的な熱交換を実現しているもの」と思われる。(Fig ③)

(8.2節)  $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$  領域での熱交換とd相の流れの可能性。

$\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$  での異常温度分布は、単にc相の熱伝導や、d相の失う位置エネルギーだけでは説明がつかない。即ち相分離面より6cm下で昇温し、10cm下近くで降温するには(Fig ④)何らかの冷却の機構が存在せねばならない。この点については、例えば非平衡状態のまま落下したd相が再び平衡状態となる様に、回りのc相から<sup>3</sup>Heが希釈されて降温する様な過程が存在するのではなかろうかと考えられる。

(8.3節)測定した冷却能力について、可逆的な冷却能力との比較検討。

$\dot{n}_{4c} < \dot{n}_4$  領域では、約2.3~2.8erg/secの不明な熱流入は存在するが大むね可逆的な冷却能

力に一致する。所が  $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$  領域では全く一致せず改めて熱交換の不完全と、何んらかの熱発生存在の可能性が裏付けるものと思われる。

又、本研究の<sup>4</sup>He-D.R では、可逆的な冷却能力以上の冷能も測定され、それについては一つの可能性として、<sup>3</sup>He 準粒子の拡散のエントロピーに帰着させて測定結果を論じた。今後更に検討を要する課題である。

## 第9章 総括

本研究において初めて発見された点、即ち、“ $\dot{n}_{4c}$ ”の出現、理想的熱交換の実現、又、熱交換器の異常な温度分布などは、<sup>4</sup>He-D.R における d 相の流れの状態(二相対抗流)に起因している。特に熱交換器内では、最初壁に沿って流れた d 相が、壁から剝離し、液滴を形成し始め、それらが<sup>4</sup>He 循環量の増大と共に液滴の数が増し剝離する効果と相乗的に働き、最終的に熱交換器の入口から、理想的な熱交換をもたらしているものと考えられる。その結果3.4mKの最低到達温度の新記録となった。

Appendix I …<sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 希釈冷凍機の発展の歴史。

Appendix II …本研究で用いた、物理的諸量。

### 文献

- 1) N.H. Pennings et al. *physica* 81B(1976) 101, 84B (1976) 102, 84B (1976) 249
- 2) N. Satoh et al. Proc. Int. Cryogenic Engineering Conf. Kobe (Butterworths, 1982) p.621
- 3) J.C. Wheatly et al. *J.Low Temp. phys.* 4 (1971) 1
- 4) 福沢延正, 東北大学修士論文(1984)
- 5) G.B. Wallis, One-dimensional Two-phase Flow (McGraw-Hill, New York, 1969)
- 6) N. Dombrowski and W.R. Johns, *Chem. Eng. Sci.* 18 (1963) 203

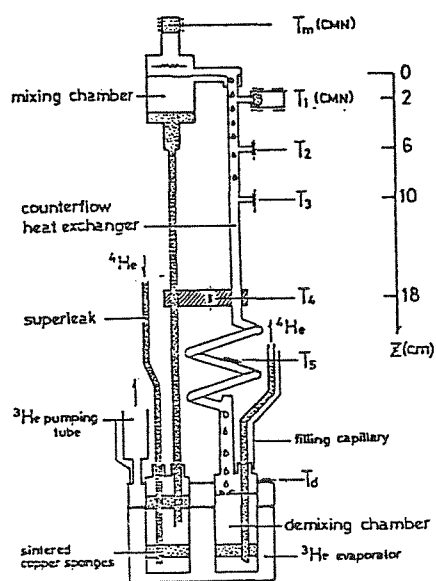


Fig ①  $^4\text{He}$ -D. R 模式図

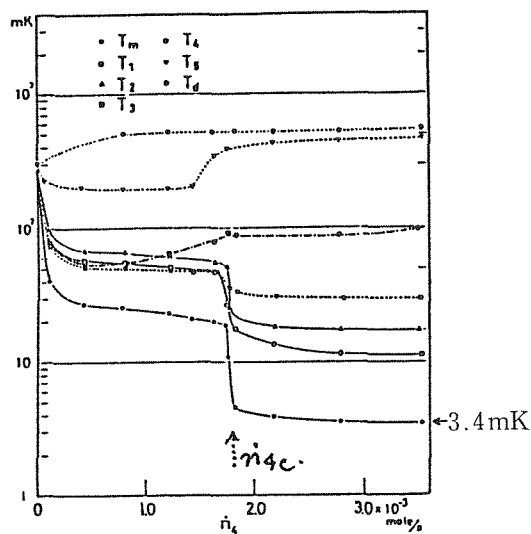


Fig ② 循環量 $\dot{n}_4$ に対する温度堆移

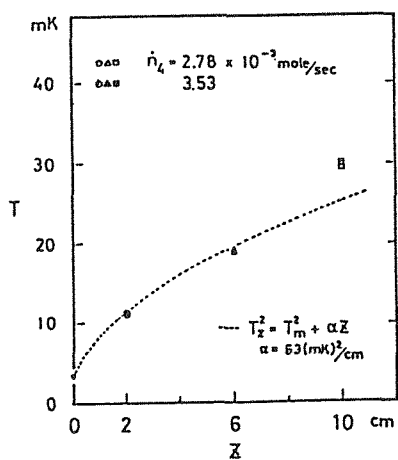


Fig ③  $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$  での熱交換器温度分布

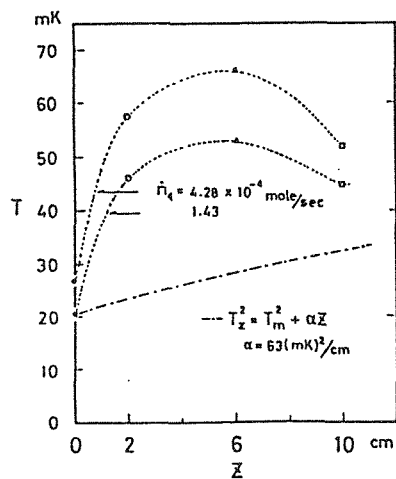


Fig ④  $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$  での熱交換器の温度分布

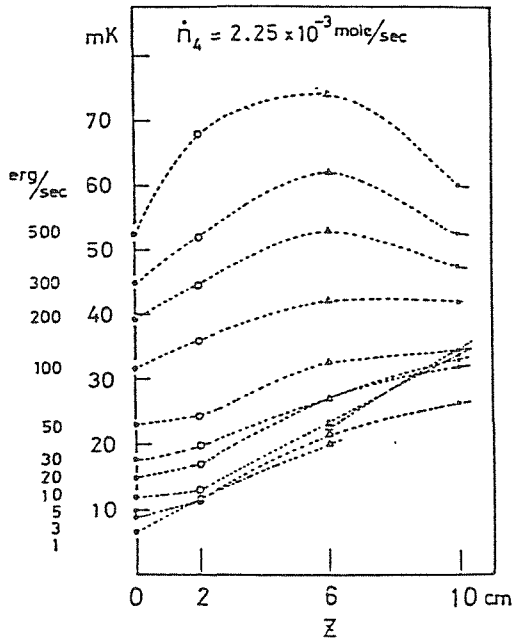


Fig ⑤  $\dot{n}_{4c} < \dot{n}_4$  の熱交換器, 温度分布の変化

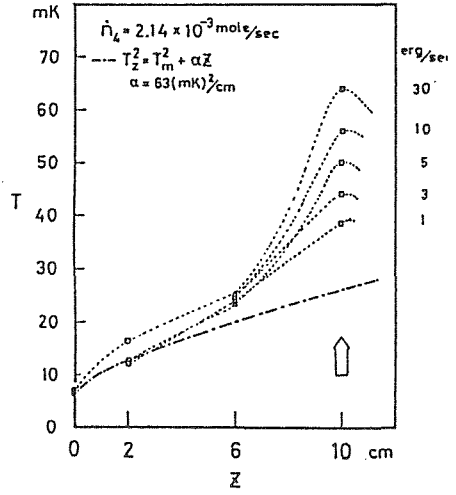


Fig ⑥  $\dot{n}_{4c} < \dot{n}_4$  で熱交換器に外部より加熱した一例

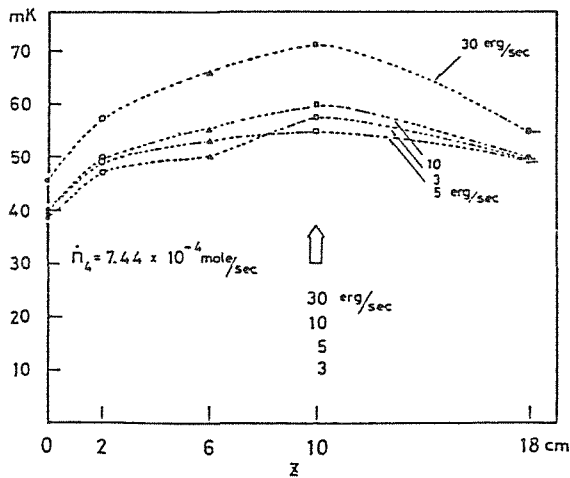


Fig ⑦  $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$  で熱交換器に外部より加熱した一例

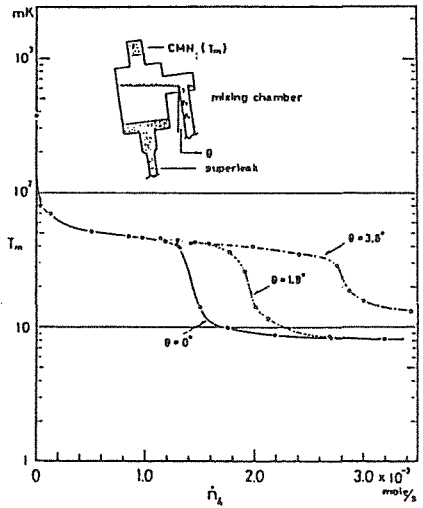


Fig ⑧ 熱交換器を傾けた結果 " $\dot{n}_{4c}$ " の移動



## 論文審査の結果の要旨

超低温を生成する $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ 希釈冷凍機には $^3\text{He}$ を循環する型と $^4\text{He}$ を循環する型がある。前者はほぼ完成の域に達しているが、 $^4\text{He}$ 型は $^3\text{He}$ 希薄相と濃厚相の液が直接接触して熱交換する有効な熱交換機構を利用出来るにもかかわらず、最低到達温度は $^3\text{He}$ 型の約2 mK ( $\text{mK} = 1/1000\text{K}$ ) に対し約8 mKに止まっている。本研究はこの起因をふくめ $^4\text{He}$ 循環型希釈冷凍機の機構を究明し性能を向上する目的で行われたものである。

著者は $^4\text{He}$ 循環量 $\dot{n}_4$ と熱交換器に沿っての温度分布を正確に計測出来、希釈により冷凍の発生する混合室の設計に工夫をこらし、 $\dot{n}_4$ を大きく出来る構造をもつ大型の $^4\text{He}$ 循環型冷凍機を自作し、種々の $^4\text{He}$ 循環量に対する混合室の温度と熱交換器の温度分布を測定した。その結果新たに循環量 $\dot{n}_4$ に臨界値 $\dot{n}_{4c}$ が存在し、 $\dot{n}_4$ が $\dot{n}_{4c}$ を越えると混合室の温度が急激に下り、それに伴って熱交換器の温度分布が変化することを発見した。特に $\dot{n}_4 > \dot{n}_{4c}$ の領域では希薄相と濃厚相液間の熱交換が理想的であると仮定した時の理論温度分布とよく一致する結果がえられた。これに対し $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$ の領域では熱交換器の中間に温度極大を示す異常な温度分布がえられた。ひき続き著者は混合室や熱交換器に局所的に熱を加えた時の温度分布の変化を測定し、 $\dot{n}_4 > \dot{n}_{4c}$ 領域では熱交換が理想的に行われていることの確証をうるとともに、 $\dot{n}_4 < \dot{n}_{4c}$ では熱交換が不完全な上、未解明の機構による熱発生が存在することを示した。また混合室の温度が約30mK以下であることが $\dot{n}_{4c}$ の出現条件であること、熱交換器を傾けると $\dot{n}_{4c}$ が循環量の大きい方にづれることを見出している。これらの実験で $\dot{n}_{4c}$ より大きい循環量で3.4mKの最低温度を記録したがこれは $^4\text{He}$ 型としては画期的な新記録である。

以上のふるまい、特に臨界循環量 $\dot{n}_{4c}$ の出現する機構につき、著者は $^3\text{He}$ 希薄相が液滴状で熱交換器中を落下する時、理想は熱交換が期待するという理論的評価から、 $\dot{n}_4$ の増大とともに熱交換器の内壁にそって流れていた希薄相が壁から剝離して液滴を形成し始め、 $\dot{n}_4$ をさらに増すと剝離効果と液滴数の増大が相乗的に働いて急激に熱交換器管入口から液滴で落ちる状態が実現するという考察を行っている。この考察はガラス製 $^4\text{He}$ 循環型希釈冷凍機での直接観察で定性的に裏づけられている。

以上の研究内容は単に超低温生成技術の進歩に寄与しただけでなく、 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ 混合液の流れに関する物理的問題に対し多くの示唆を与えるもので高く評価しうるものにと、著者が自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有していることを示している。よって佐藤直記提出の論文は理学博士の学位論文として合格と認める。