

極低温技術—磁気冷凍を中心として—

New Concept of Refrigeration—Magnetic Refrigeration

荻原 宏 康*・中 込 秀 樹**

Hiroyasu Ogiwara Hideki Nakagome

1. はじめに 開発の歴史

「液体ヘリウム」は大気圧下4.2Kに沸点を持つ液体ガスである。今世紀初頭1908年に、それまでの英国ロイヤル・ソサイエティのデュワー卿との激しい国際技術競争を経てオランダのライデン大学のカメリン・オンネス教授によって初めて液化されたものである。気体の液化の長い歴史の終わりを意味すると同時に、超伝導の新しい歴史を作り出す出発点となった出来事である¹⁾。

それまで気体の液化と低温の生成は車の両輪のように進んで来ていた。この二つをつなぐものに熱の解釈に関する気体運動論があった。

ヘリウム液化の完成があっても低温生成の努力は続いており、現在この世で実現されているもっとも低い温度は0.0001K (10^{-4} K 1989年 フィンランドのヘルシンキ大学)のオーダーである。このような超極低温を作るには通常の気液平衡状態での気相の減圧や断熱膨張、ジュール・トムソン膨張ではなく、量子対応状態における断熱膨張を利用している。

気体運動論を支配する力学系の変数は、常磁性体の物性を記述する変数に対応させることができる。たとえば、圧力は磁界だし変数は磁化に、といった具合にである。だから、断熱膨張に対応する断熱消磁によって常磁性体の温度を低温にすることが可能になる。そこには気体を使わない低温生成の可能性が存在する。

実際に常磁性体の磁界中での挙動を利用して冷凍機を作ろうという技術開発が進行中である。これが磁気冷凍機である。

2. 原理²⁾

断熱消磁の原理は1926年にW. ジョークとP.

デバイによって独立に提示された。その後現在にいたるまで、断熱消磁は超極低温生成への基本的な技法として利用され続けている。1970年代の後半になってG. ブラウン(米)、W. スタイヤート(米)、J. パークレイ(米)、A. ラカーゼ(仏)といった人たちが現実の冷凍機を、断熱消磁を利用して作る試みを始めた²⁾。

日本では1980年になって東芝、東工大、日立などで開発研究がはじまり、1982年からは科学技術庁が科学技術振興調整費研究として取り上げたのをきっかけとして科学技術庁金属材料技術研究所も参加して本格的な開発が行われるようになった。

2.1 断熱消磁

どんな常磁性体もミクロに見ると固体の結晶格子を作っているイオンとその周辺にある電子群から成り立っている。

固体の持つ熱は、このイオンの熱運動(熱振動)のエネルギーとして表される。熱運動は固体の温度で決まる。液体水素や液体ヘリウム程度の極低温におかれている固体では、その内部エネルギーを構成する種々のエネルギー(格子振動、電子の熱運動、電子のスピンなどに関連して決まる)の中で電子のスピンの役割が大きくなる。

電子のスピンには、電子自体の仮想的な軸の周りの回転で左周り、右周りの2種類がある。

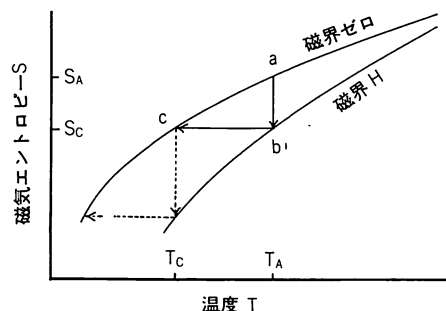


図-1 断熱消磁の経路

* (株)東芝 総合研究所 技監

** (株)東芝 総合研究所 主任研究員

〒210 川崎市川崎区浮島町4-1

通常の状態ではこの軸は電子の熱運動によってバラバラな方向を向いている。このような状態（図-1のa）の常磁性体（の電子群）に外から強い磁界を加えると、スピンの軸をその磁界の方向に整列させることができる。スピンの整列した状態は、運動の乱雑さの少ない状態、つまりエントロピーの低い状態（b）である。

この状態で、常磁性体と外部の熱のやりとりを絶ってにおいて磁界をなくすると、電子スピンは常磁性体の格子振動から熱を奪って、磁界のないときの常磁性体の中の電子スピンのエントロピー状態（C）に戻る。電子スピンによって熱を奪われて常磁性体は、より低い温度状態となる。

これが断熱消磁の原理である。さらに低い温度を作ろうとするなら先の到達点に始まる同じような過程をおわせればよい。

ただし常磁性体がこのように顕著な効果；磁気熱量効果を示すのは常磁性体固有の温度範囲の中だけで、しかもかなり急峻なピークを持つので冷却過程の出発温度、到達目標温度などによって最適な常磁性体を選ぶ必要がある。つねに最良の常磁性体が存在するとは限らないところに難点があり、それだけに優れた磁気冷凍物質の研究開発の成果に大きな期待が寄せられている。

2.2 磁気冷凍機のサイクル

これまで説明してきた断熱消磁では冷却される系に理想的な断熱性を仮定しているので適当な一群の常磁性体を利用して断熱消磁を繰り返してゆくことにより低い温度が生成されていく。もちろん、理想的な断熱体も理想的な常磁性体も実際には存在しないから、これは絵空事にすぎない。実際、0.1K、0.01Kを生成することさえかなりの難しさを持っており、まだ、工業技術としての低温発生にはなっていない。物理の領域の問題であり、低温の生成そのものが研究の対象である。

実用技術としての「冷凍」の場面ではどこかで熱発生や熱侵入があって放っておくとじょじょに温度が上がってしまう冷凍負荷を、一定温度の低温に維持するのが冷凍の役目である。

断熱消磁によって冷凍作業を行うということは前項で述べた冷凍過程の最後で、熱流入によって系の温度が断熱消磁の出発点に戻るのを再度、冷凍して一定の極低温に系を保つことである。したがって、磁界の印加、エントロピーの低下、断熱消磁-低温発生、熱流入-温度上昇のサイクルが、種々の熱サイクル（カルノー

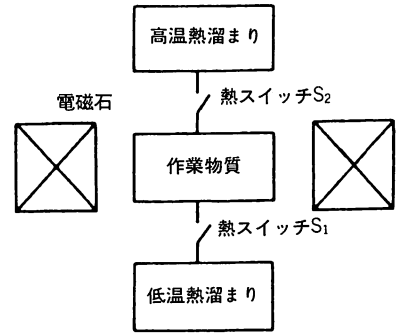


図-2 磁気冷凍機の基本構成

スターリング、エリクソンなど）の特徴を実現するように設計される。

現実には図-2のような基本構成（カルノー・サイクル）を構成する。

図の中心にあるのが常磁性体；磁気冷凍物質である。下には低温熱溜りがあり上には高温熱溜りがある。磁気冷凍物質は下の低温熱溜りから熱を奪って、これを冷やし、その熱を上的高温熱溜りに捨てる。磁気冷凍物質には周りの電磁石によって磁界を加えたり、加えている磁界をゼロに落としたりする。励磁、消磁に応じて磁気冷凍物質の温度が上がったり（高温熱溜りよりも）下がったり（低温熱溜りよりも）するので、上がったときはその熱を高温熱溜りに吐き出し、下がったときには低温熱溜りを冷やしてやるために、それぞれと磁気冷凍物質の間に熱スイッチを入れておく必要がある。

この基本磁気冷凍機は図-3のようにサイクル上をたどって冷凍作業を行う。

熱スイッチS2を閉じ、S1を開いた状態で電磁石

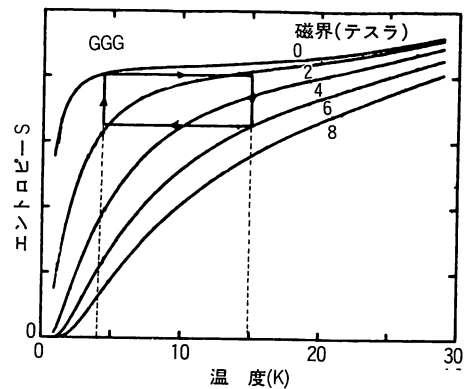


図-3 磁気冷凍サイクルの基本パターン (GGGの場合)

を励磁する。磁気冷凍物質の温度が高くなるのでその熱をS2を通して高温熱溜りへ捨てて、磁界中にある磁気冷凍物質の温度を初めの温度に戻す(戻す)。ここでS2を切って磁気冷凍物質を断熱状態にした上で印加磁界をゼロに戻す。磁気冷凍物質は等エントロピー的に温度が下がる。S1を閉じて低温熱溜りの熱を磁気冷凍物質に吸い上げて低温熱溜りを冷やす(冷凍する)。

2.3 超電導磁石

磁気冷凍物質に、技術的に十分利用できる程の磁気熱量効果を発揮させるためには強い磁界が必要である。また、実用と云うことには経済的に成り立つということも要件になるので、強い磁界を作るということも経済的にできなくてはならない。強力な磁界を、僅かな電力消費(冷凍に要する)で、小型の電磁石で作れるというのは、まさに超電導磁石の特徴である。磁気冷凍機開発の機運は超電導磁石製作技術の発展を待つ必要があったことになる。また、量子効果としての磁気熱量効果の動作範囲が極低温であり、しかも磁気冷凍機の作る低温を必要とするのは超電導磁石そのものである、ということもあって磁気冷凍機の実現における超電導磁石の役割は極めて大きいものがある。実際、磁気冷凍効果を利用するのに必要な高い磁界は超電導がなくては実現できない。

図-4に現在の超電導磁石製作技術の技術レベルを示しておく。この図には磁気冷凍機が必要とする磁界の強さと磁界空間のサイズを挿入してある。しかし、上記の動作説明からわかるように磁気冷凍機が必要とする磁界は高磁界と低磁界(またはゼロ磁界)の間を交番する交流ないしはパルス超電導磁石である。交番の

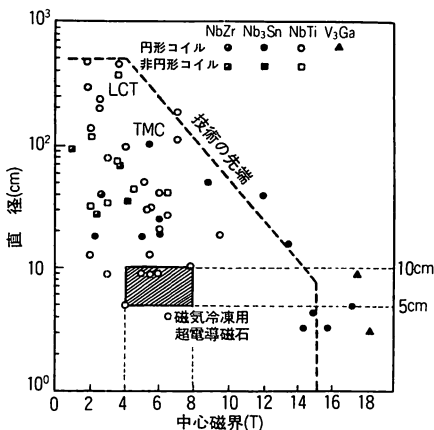


図-4 超電導磁石製作の技術レベル (磁界の強さと超電導磁石の大きさの実績)

速さとパルス波形によって難しさに多少の違いはあるが交流/パルス超電導磁石は、現代の超電導磁石技術にとって最大手の開発課題になっているものである。

3. 初期の試作³⁾

3.1 動作温度範囲

電子スピン比熱にたよる常磁性体の磁気熱量効果は、それをカバーしてしまう格子熱振動が抑えられている領域で利用できる。この領域は低温である。たとえば磁気冷凍材料の代表格のGGG(ガドリニウム・ガリウム・ガーネット $Gd_3Ga_5O_{12}$)の磁界によるエントロピー変化は図-3で示したようになっていて、磁界の変化が大きなエントロピー変化を導くのは極低温領域である。この事情は現在使えるどの常磁性体をとって見ても変わらない。つまり、磁気冷凍は常温用のものも提案されているが実際には今のところ、液体ヘリウムやせいぜい液体水素に結び付く極低温領域向きの技術に限られている。

GGGを作業物質とする磁気冷凍機では、冷凍対象の関連から4.2K液体ヘリウム温度での磁気冷凍機と1.8Kを中心とする超流動ヘリウム(ヘリウム)温度の磁気冷凍機の開発が行われている。

3.2 レシプロ型と回転型

磁気冷凍の基本的動作は作業物質に磁界を加えたりとりさったりすることである。磁界を印加したり消去したり、つまり超電導磁石を励磁したり消磁したりすることを繰り返す方法に三種類のやり方が使われている。

一つは超電導磁石に励磁電流を流したり切ったりす

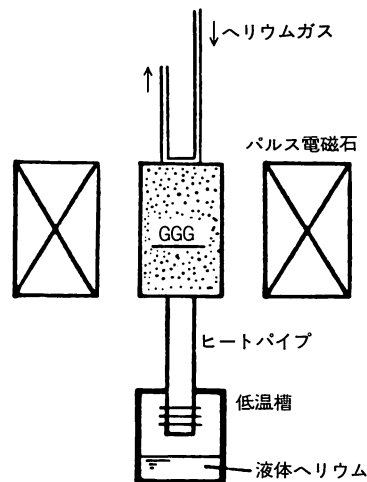


図-5 ヒートパイプを熱スイッチに使った磁気冷凍機

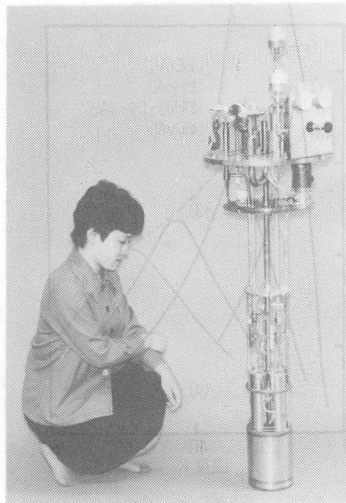


図-6 静止型磁気冷凍機
(超電導磁石を外したもの)

るパルス動作をさせることである。

一般的にいうと超電導磁石にパルス動作や交流動作をさせると損失；交流ロスが必ず発生する。無損失ではない。幸いにして磁気冷凍機は作業物質や熱スイッチのような熱伝導動作をおこなう要素で構成されている。熱の伝導は電気の伝導にくらべるとずっと遅い現象である。磁気冷凍機での励磁-消磁動作の繰り返しは幸か不幸か、準直流動作になっていて大きな交流ロスを発生しない。

熱スイッチには、もちろん実際の接触を行う機械的な接点を使ってもいいが、接点が熱抵抗になったり接点を外から操作する必要があることから、図-5に示すように熱を一方だけに伝えるヒート・パイプを使っている。作業物質四個を並列に動作させる方式の試作機を図-6に示す⁴⁾

二つ目は超電導磁石を励磁したままにしておき作業

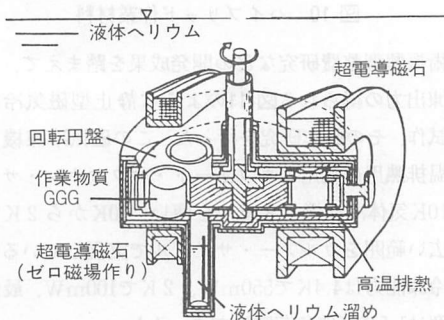


図-7 回転円盤方式磁気冷凍機

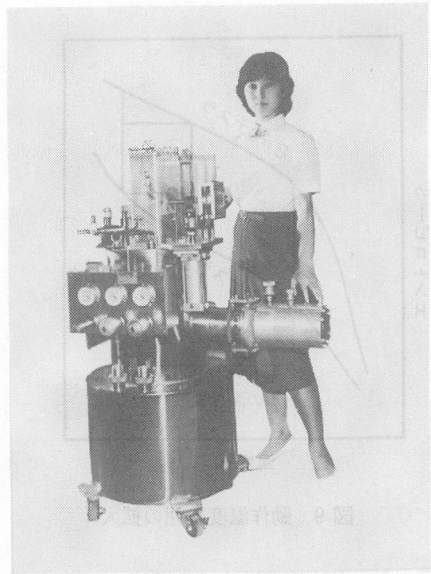


図-8 レシプロ型磁気冷凍機

物質を図-7のように円盤に並べておいて円盤を回転させ磁界のある空間と無い空間を交互に通過させる方式である⁵⁾。

三つ目は、繰り返し動作の遅いことからピストン動作で作業物質を磁界の中に出したり入れたりすることである。この方式で図-8のような本格的な磁気冷凍機が作られている⁶⁾。

第一のものを静止型、二番目をロータリィ（回転）型、三番目をレシプロ型という。

なお、いずれの場合も高温熱溜り（排熱先）には10～20Kで動作する別の冷凍機を使っている。

3.3 効率とその問題点

熱機関の中でカルノー・サイクルはもっとも高い効率を持つサイクルである。しかし、実際の磁気冷凍機でカルノー・サイクルをおこなわせようとしても、作業物質としての常磁性体を中心とする熱のやりとり、流れが理想的な単純な熱サイクルを実現してくれない。そのことは図-2の基本構成の沢山の構成要素からも明らかであろう。この組合せの上を熱が通過して冷凍動作をおこなう。熱通過に対する接点の抵抗、構成の広がりのための熱通過の遅れ（排熱の不完全さ）などが原因となって理想的な効率からのずれが起きるのである。

4. 作業温度の拡張

4.1 課題 液体窒素温度へ

冷凍技術は超電導磁石を液体ヘリウム温度のような極低温に冷やしておくためだけの器械ではない。任意

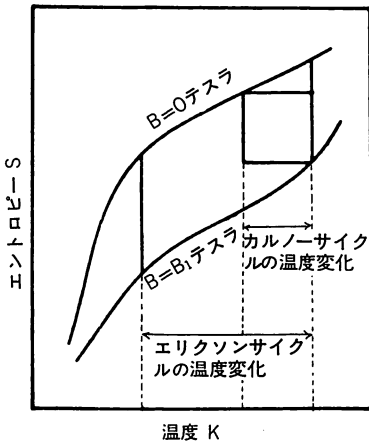


図-9 動作温度範囲の拡大

の温度のところで利用できる冷凍機として開発したい。少なくとも高温熱溜りに液体窒素が利用できれば高温側の冷凍機が必要ではなくなって磁気冷凍機の使いやすさが一遍に改善される。

この問題は、等磁化過程や等磁界過程で断熱過程を連結するスターリング・サイクルやエリクソン・サイクルを使えば解決できる²⁾。

4.2 ハイブリッド作業物質

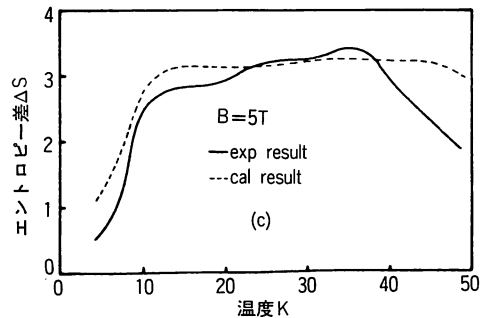
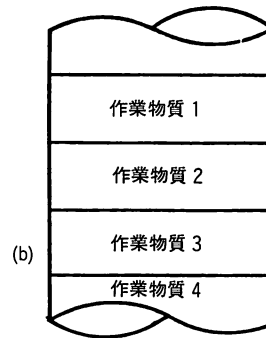
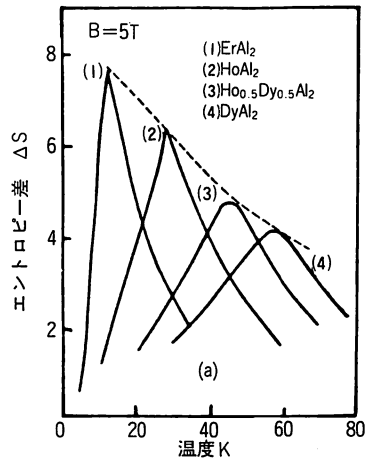
エリクソン・サイクルの場合をカルノー・サイクルと比較したものを図-9に示す²⁾。図からわかるようにこの場合には大きな温度差をカバーする作業物質と、エリクソン・サイクル(スターリング・サイクルも)の等磁化過程を実現する蓄熱材を必要とする。先にも述べたように常磁性体の熱的性質は比較的狭い温度範囲でしか高い値を持たない。全体として目的となる温度範囲をカバーする一連の常磁性体群をハイブリッド構造に積み上げて一つの、幅広い動作温度範囲を持つ蓄冷材にする研究が進められている(図-10)⁷⁾。まさに最近はやりの傾斜機能材料の考え方の先取りである。

4.3 室温磁気冷凍機の夢

液体窒素温度(77K 約-200°C)で超電導状態を保つ高温超電導体;超電導酸化物の実用化が進んでいる現在では、これと組み合わせて利用できるような液体窒素温度の磁気冷凍機がほしい。こちらのほうはまず、適当な動作温度を持つ常磁性体作業物質の開発が当面の研究開発課題である。

5. 最新の磁気冷凍機

科学技術庁金属材料技術研究所ではこれまでの科学



(a)の材料を(b)のように積んで (c)の特性を得る

図-10 ハイブリッド作業材料

技術振興調整費研究などの開発成果を踏まえて、正味冷凍出力の得られる図-11のような静止型磁気冷凍機の試作, その動作研究を行った。この磁気冷凍機では高温排熱用に汎用のギフォード・マクマホン・サイクル10K気体冷凍機(8W)を使い, 10Kから2Kまでの広い範囲をカルノー・サイクルで実現している。最大冷凍能力は4.4Kで550mW, 2Kで100mW, 最低温度は1.5K(無負荷時)であった⁸⁾。

超電導磁石は最大5テスラで, これを周期30~60秒

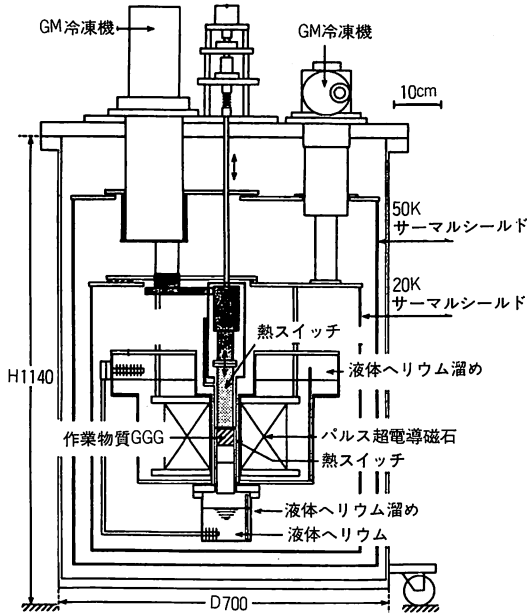


図-11 金属材料技術研究所の静止型磁気冷凍機

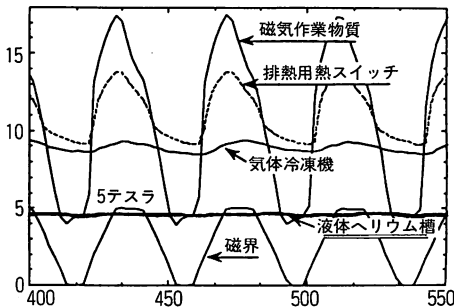


図-12 磁気冷凍機の連続動作状況

で振っている。試験では3時間をこえる連続運転を行った。連続運転時、超電導磁石の励磁・消磁に応じて冷凍機各部、各要素の温度変化を図-12に示す⁹⁾。この間、冷凍負荷である液体ヘリウム槽の温度はほぼ一定に保たれているのを見ることができる。

6. 問題点

作業物質である常磁性体で、常温で作動するもの、広い動作範囲を持つもの、もっと低い磁界で大きな磁気熱量効果を示すものは作り出されていない。このように現象の本質に関係する研究開発課題の外にも、磁気冷凍機そのものが超電導機器だったり極低温機器だったりシステム熱機関だったりするための技術的な課題は沢山ある。しかし、実際に磁気冷凍機を実用にするための大きな問題は次の二つのことではないかと考え

ている。

6.1 冷凍機としての独立性の希薄さ

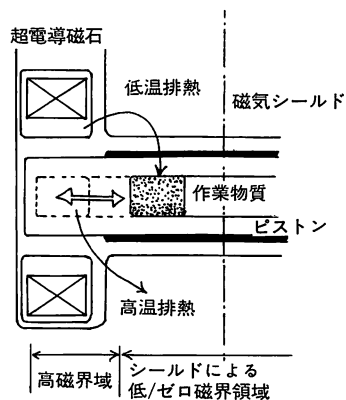
現在、考える限りは超電導磁石が作る強磁界が不可欠である。その超電導磁石自体、医療用磁気共鳴イメージング診断システムのようにすでに実用化されマーケットを持っているものもあるがやはり、科学技術としてのニューフェイスで開発中というイメージが強いので、開発の中心にあるのが冷凍機なのか超電導システムなのかという、冷凍機そのものの独立性が弱い。

6.2 断熱技術のボリューム

その意識を一層強く感じさせるのが作業部分の、磁気冷凍機全体の体積に占める大きさである。この論文に出ているどの磁気冷凍機試作品を見ても超電導磁石と断熱容器の占めるボリュームに比べると作業物質のボリュームは圧倒的に小さい。作業物質からいって衣の部分が厚すぎるように見える。

7. おわりに 救いはシステム・材料

この救いは超電導磁石が液体ヘリウムを必要としていること、そのことにあるように思える。例えば浮上式リニアモーターカーは超電導磁石を使う。要はその超電導磁石が作り出す磁界そのものを利用することである。図-13のように磁気シールドされた空間を作って、そこと磁界の高い空間の間で作業物質を動かしてレシプロ型または回転型で磁気冷凍回路を構成してやればよい。この使い方は磁気冷凍に固有の使い方である寄生型 (PARASITIC) 磁気冷凍システムと呼んでいる⁹⁾。この方式の実現のためにはもっと低い磁界で大きな磁気熱量効果を示す常磁性体磁気冷凍作業物質が必要である。



(浮上式リニアモーターカーへの組み込み) 図-13 寄生型磁気冷凍機の一例

つまり、システムで問題が解決できそうであるが根本的解決には新材料の出現が必要である、というオーソドックスな図式になる。

しかし、そうなる狙いは際限なく出て来るもので常温で十分な断熱消磁効果を見せる常磁性体が欲しくなるし、それにあわせて常温で使える超電導磁石の方もほしくなる。実際の話、こちらの方は常温、室温といえないまでも高温超電導といえるまでの発見があったことは周知の通りである。

この論文執筆の筆をおくに当たって東工大-東芝エネルギー機器研究所の共同開発を指導して下さいた同大学橋本巍洲教授、その学生で現在、金属材料技術研究所に席をおく沼沢健則博士、最近の研究開発成果を使うことをお許し下さった同研究所の前田弘博士、佐藤充典博士のお名前を記して感謝の意を表したい。

なお、報告内容の大部分は科学技術庁振興調整費研究による研究の成果である。

参 考 文 献

- 1) メンデルスゾーン (大島恵一訳) 絶対零度への挑戦 講談社ブルーバックス
- 2) 橋本巍洲 磁気冷凍と磁性材料の応用 工業調査会 1987年刊
- 3) H. Ogiwara et al Magnetic Refrigerator as Acryocooler for Cryoelectronics, Superconductivity Electronics (Edited By H. Hara) Ohmsha 1987 p.302
- 4) 沼沢, 橋本, 中込, 荻原 低温工学 Vol.20 281 (1985)
- 5) H. Nakagome, T. Kuriyama, H. Ogiwara, T. Yazawa T. Hasimoto Proc. Iccc11 Berlin 246 (1986)
- 6) 中込, 栗山, 荻原, 藤田, 橋本 低温工学 Vol.20 288 (1985)
- 7) 橋本, 葛原, 佐橋, 猪股, 友清, 矢山 低温工学 Vol.21 288 (1986)
- 8) 沼沢, 木村, 佐藤, 前田, 高橋, 袴田, 中込, 坂本 低温工学・超電導学会予稿集 1989年度秋 D3-20 246 (1989)
- 9) 沼沢, 木村, 佐藤, 前田, 高橋, 袴田, 中込 低温工学・超電導学会予稿集 1989年度秋 D3-22 248 (1989)

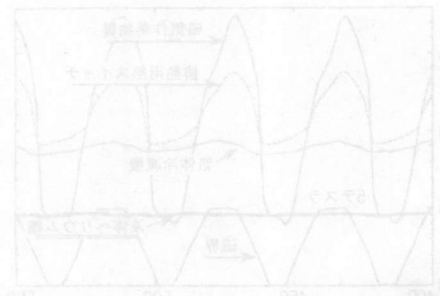


図 12 磁気誘起磁束の観測結果



図 13 磁気誘起磁束の観測結果

