

## 第4回「温度」

### 4-3 光電子分光における真空中試料冷却技術～低温 2～

木須孝幸 大阪大学大学院基礎工学研究科  
〒560-8531 豊中市待兼山町 1-3  
E-mail: kiss@mp.es.osaka-u.ac.jp

#### 1. 低温にすることの意義は

物質・材料の性質を研究対象とする物性物理学において物を冷やすあるいは温めるということはどういうことかということを考えてみる。ひとつの答えとしては、温度を変化させるということは、温度変化に伴う性質の変化を引き起こすことであり、その違いを調べる・利用することで機能性材料の創成やそれを実現するための指針を得ることである。いわゆる温度による相転移の研究である。相転移には固相・液相・気相といった転移をはじめ、磁性転移、金属絶縁体転移など様々なものが存在する。物の温度を変化させるということは、その転移温度を超えて発現・変化・消失する諸物性をコントロールすることであり、そのコントロールの中で様々なプローブを用いて物性研究を行っていくこととなる。その中でも温度を下げるということは低温において起こる相転移等の研究を行うために必要なだけでなく、物質の基底状態に迫り、その物性の根源についての知見を得るということである。

放射光を用いたプローブは放射光自身とその利用技術の目覚ましい発展によって多岐にわたる研究が遂行されているが、本稿においては光電子分光を題材として解説を行う。詳しくは後述するが、光電子分光法は photon-in electron-out の実験手法であり、photon-in photon-out の実験と異なり基本的に窓材を用いることができないため試料は真空中に暴露されることとなる。そのため、窓材を使うことができる実験手法と比べ試料の冷却が困難である。条件の厳しい光電子分光における冷却技術は他の放射光利用実験に共通する部分も多く本稿が役に立つ部分もあるかもしれない。

低温で起こる特異物性における電子状態の研究の対象といえばまず超伝導が思い浮かぶ方が多いと推測されるが、価数変化をはじめとする内殻の電子構造の変化など放射光でなくては測定できない研究対象も多く存在する。

20年ほど前から光電子分光において低温技術の導入<sup>1)</sup>が進み、それまでより低い温度における研究が行われるよう

になり<sup>2)</sup>、光電子分光の物性研究における重要度はさらに大きくなってきている。現在においては<sup>4</sup>Heによって1.5 Kほどまで、<sup>3</sup>Heを利用して1 K前後での測定が可能な光電子分光装置も実現されている<sup>3,4)</sup>。このような装置においては低い  $T_c$  を持つ超伝導体の研究を目的とするものが主流であるが、先に述べたように放射光を用いた研究においても非常に有用である。放射光利用研究における低温化の手法は、実験室光源を用いたシステムにおける手法と同様である。

本稿においては最近導入が進んできた<sup>4</sup>He 連続流型クライオスタットを用いたシステムにおいていかに効率よく低温を実現するかについて解説を行う。この方法は<sup>4</sup>He ガス循環型クライオスタットを用いたシステムにおいても有効である。コスト度外視となる<sup>3</sup>He を用いたシステムについては扱わないこととする。

#### 2. 低温化を行うための各要素

ここで、試料を冷却するために、どのような要素が必要となるか挙げてみる。

##### (1) クライオスタット (冷凍機)

試料を冷却するために必要となるのが試料から熱を奪ってくれる装置である。通常クライオスタットと呼ばれるものが用いられ様々な形状のものがあるが、大きく分けると、冷媒をクライオスタット中に導入し、その浴室内で直接冷媒と接触させて冷却を行うもの、浴室から熱伝導によって外部を冷却するものの2種類がある。今回は光電子分光という photon-in electron-out の実験手法であるため、後者の方式で冷却を行うことになる。

光電子分光においては従来から用いられてきた<sup>4</sup>He ガス循環型クライオスタットとこの十数年で普及してきた液体<sup>4</sup>He を冷媒として用いる連続流型クライオスタットが多く用いられている。より冷却性能を追求する場合には溜め置き型クライオスタットも用いられる。しかし、溜め置き型クライオスタットは縦置きとなるのが基本であり横置



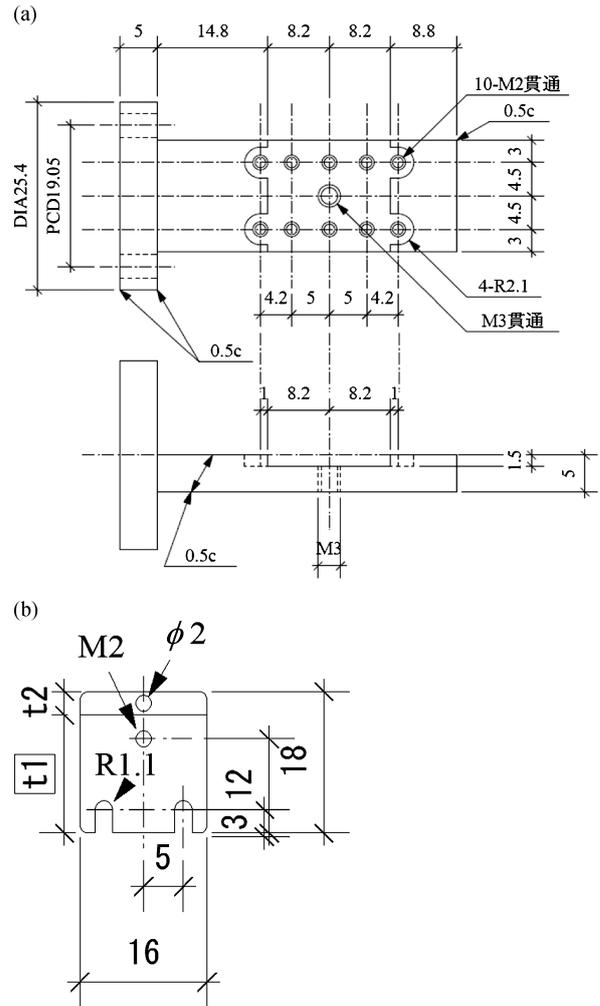
**Fig. 1** (Color online) 超高真空対応液体 He 連続流クライオスタット Custom RC-110 UHV の写真。仁木工芸株式会社と米国 Cryo Industries of America 社による提供。詳細は HP 上に掲載<sup>5)</sup>。

きにはできない。設置の向きが比較的自在である連続流クライオスタット(下からの冷却は基本的に避けた方がよい)とガス循環型クライオスタットを目的によって選択することになる。なお、1 K 以下を目指すために  $^3\text{He}$  を用いる場合は溜め置き型クライオスタットをベースとして設計を行う。

ここではクライオスタットの例として、筆者が仁木工芸株式会社・米国 Cryo Industries of America と共同開発し、現在標準品としてカタログに掲載されている連続流型クライオスタット RC-110 UHV の写真<sup>5)</sup> を Fig. 1 に示す。このクライオスタットは、冷却効率と温度制御の安定性を追求し、従来の同社のクライオスタットとトランスファーチューブに大きな改良を加えたものであり、加えてクライオスタット先端部を戻りガスのエンタルピーを用いた熱輻射板で覆えるよう途中にツバを溶接で取り付けている。冷却能力は従来比 2 倍程度、ヘリウム消費量は温度にもよるが数分の 1、温度安定性は安定した減圧のもとで 10 mK 以下を達成している。温度計は通常はシリコンダイオードセンサーを用い、クライオスタット内部先端と外部に 2 つ用意する。外部温度計は後述するフィンガーのサブストレート設置位置そばに取り付ける。縦置き型クライオスタットで 2 K 以下を目指す場合はシリコンダイオードセンサーではなく Cernox センサーを用いる。

## (2) サブストレート・フィンガー (試料台)

試料を張り付け移送するためのサブストレートとそれをクライオスタット側に装着する部位となる試料台である。これらの形状やシステムは各研究グループごとにそれぞれのノウハウによって異なっている。サブストレートがサブストレートとサブストレート台に分離しているものが主流である。Fig. 2 に筆者が用いている角度固定フィンガー(a)とサブストレート(b)の簡単な図面の一部を示す。



**Fig. 2** (a)金メッキしたフィンガーの例と別のフィンガーの図面。(b)サブストレート。

## (3) 減圧装置

冷媒として液体 He を用いる場合に非常に有効な部分である。減圧排気による冷却は液体と気体のエントロピー差を用いた蒸発冷凍であり、利用する冷媒の蒸気圧曲線に従って温度が下がっていく。また、非常に高価である液体 He の使用量を大幅に削減することが可能であり、液体 He を用いる場合には必ず用意しておきたい。クライオスタットと減圧装置の機構にもよるが減圧しない場合と比べて半分程の温度まで冷却が可能になるうえ、液体 He 消費量を 1~2 割程度に抑えることも可能である。注意点として液体  $\text{N}_2$  を冷媒として用いる際には動作させてはならない。 $\text{N}_2$  は沸点と凝固点が近いため、減圧してしまうとクライオスタット内で凝固してラインを塞いでしまい内部の圧力が高まり爆発してしまう危険性があるからである。この減圧装置の概略図を Fig. 3 に示す。図に示す通り減圧する際のメインラインに加えて、減圧しない状態で用いるバイパスライン、初期減圧と冷却能力を調整する場合に用いる調整ライン、クライオスタット側の圧力を知るためのプ

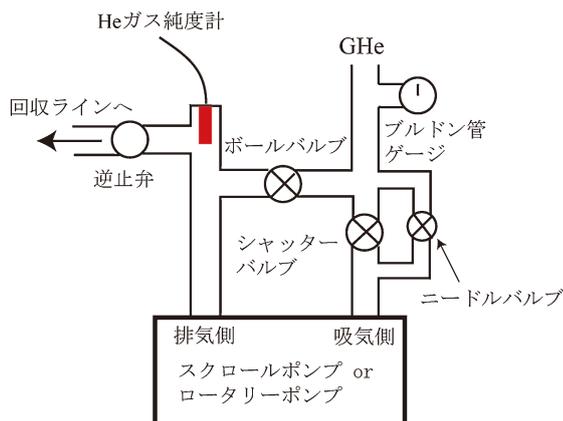


Fig. 3 (Color online) 減圧装置の概略図。

ルドン管などが用意されており、減圧状態を知るとともに弁の開閉時に必要な情報が得られるようになっている。

#### (4) 熱輻射板

試料部位の最低冷却可能温度はクライオスタット先端部の熱浴（コールドヘッド）から奪われる熱量と、熱浴に接続されたサブストレートを含めたフィンガー全体が受ける輻射熱のつり合いで決まる。冷却した熱輻射板を導入することで室温からの輻射を取り除くことが可能であり、極低温領域まで試料を冷却するためにはきわめて重要である。熱輻射板はクライオスタットそのものから導入可能なものに加え、用途やスペースに応じてクライオスタットと対向あるいは横方向から導入した He 循環型クライオスタットを加え、シングルあるいはマルチレイヤーで構成される。クライオスタットに取り付ける熱輻射板の形状は試料の移送やアナライザーとの位置関係、クライオスタットを回転させるか、などによって制限を受けるが、固定された He 循環型クライオスタットに取り付ける熱輻射板は入射光・アナライザー電子取り込み口・覗き穴等必要最低限の穴を用意するだけでよく、効率的に輻射熱を遮蔽することが可能となる。熱輻射板冷却において He 循環型クライオスタットの振動が問題となる場合は He 循環型クライオスタットは独立で懸架し、測定層とは溶接ベローズニップルにて接続することになる。

#### (5) 液体 He（寒剤）

連続流クライオスタット、溜め置き型クライオスタットを用いる際には液体 He などの寒剤が必要となる。本稿では液体 He での冷却を前提とする。液体 1 L はガス約 0.7 m<sup>3</sup>、125 g であることを覚えておくくと便利である。また、溜め置き型クライオスタットでは He をタンク内に保持するための輻射・熱流入対策として液体 N<sub>2</sub> も必要である。我が国においては液体ヘリウムは全量輸入に頼っているため高価である。利用したガスは回収して再凝縮して再利用

することが望ましいが、大気放出前提での利用も可能である。価格は前者の場合液化設備と回収率にもよるが 200～1000 円/L、後者の場合 2000～3000 円/L 程度である。先に述べた減圧を有効に活用して消費量を抑えることがランニングコストに直結するので液体 He の利用と減圧はセットで考えておく。

光電子分光における試料冷却においてはこれら 5 点について目的の温度やランニングコストを考えて取捨選択を行うことになる。例えば <sup>4</sup>He ガス循環型クライオスタットをベースに考える場合、そのみで大体 15～20 K、熱輻射板を導入して 6～10 K 程度となる。<sup>4</sup>He 連続流型クライオスタットの場合、クライオスタットの長さ大きく依存する（後述）が、そのまま 15 K 程度、減圧を行って 4～12 K 程度、熱輻射板を導入して 2.3～4 K 程度となる。さらに溜め置き型クライオスタットにおいては減圧と熱輻射板を導入することで 1～1.5 K までの冷却が可能である。

### 3. 低温技術の基礎知識

上で述べたような冷却システムをどうして・どのように導入するのかを理解するためにここでは低温技術の基本的な部分について簡単に説明を行う。これらのことは低温を専門とされる研究者・技術者にとっては周知のことであるが、放射光のみならず光利用実験研究、あるいは分光研究においては低温になじみが少ない分野の研究もあるため、今後低温を導入しようと考えておられる方々の参考となれば幸いである。低温について詳しい本には<sup>6,7)</sup>があるが、現在両方とも絶版・重版未定となっているため入手が困難である。大学や研究所の図書館には置いている所も多いので必要な時には借りることはそこまで困難ではないと思われる。現在、筆者の知る限り低温技術に絞って記述されている本はないと思われる。

本章では一般的に導入しやすいであろう液体 He 連続流クライオスタットと熱輻射板、減圧装置のフルセットを例に説明を行っていく。

冷却の源となるのはクライオスタットであり、液体 He 連続流クライオスタットの場合、液体 He トランスファーチューブからクライオスタット内部先端に向けて吹き付けられる液体 He である。つまりこの部分をいかに低温に持っていかかが最初のステップである。この熱浴の平衡温度は液体 He による冷却のパワーと室温部分からクライオスタットそのものとガスを通じて熱浴まで流入する熱（熱流入）の釣り合いによって決まる。この部分における輻射熱は先の両者に比べれば非常に小さいため無視してよい。他に先端に吹き付けられ蒸発したガスの対流による熱交換が考えられるが、十分な減圧によって先端部から離れる方向に移動するガスが大部分であり、また圧力も低いことから

これも無視する。なお、計算はそれほど精密に計算する必要は全くなく、オーダー程度で十分である。

#### • 熱流入

長さ方向に様な形状の断面積  $A$ 、長さ  $L$  の棒の両端の温度が  $T_1$ 、 $T_2$  ( $T_1 < T_2$ ) である時高温部から低温部への熱の流入  $Q$  は

$$Q = \frac{A}{L} \int_{T_1}^{T_2} k(T) dT$$

と表される。ここで  $k(T)$  は熱伝導度である。ここでクライオスタットの断面積を  $1.5 \text{ cm}^2$ 、長さを  $1000 \text{ mm}$  として、 $T_1$  と  $T_2$  をそれぞれ  $4 \text{ K}$  と  $300 \text{ K}$  とした場合のステンレス (SUS304) の  $k(T)$  の積分値<sup>36)</sup>を用いて計算すると約  $0.5 \text{ W}$  となる。ガスによる熱流入はクライオスタットガス帰還部断面積  $B$  とガスの粘性度  $\eta$ 、流量と圧力差で決まる  $C_v$  値を用いて

$$Q = \eta C_v B (T_2 - T_1)$$

と表される。 $B$  を  $4 \text{ cm}^2$ 、He の粘性度をだいたい  $0.01 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  (cP)、 $C_v$  値を  $0.005$  程度として大体  $0.06 \text{ W}$  程度となり、ヘリウムを流しすぎると  $C_v$  値が上昇するため無視できなくなるが、基本的には無視してよい。このことからわかるように、クライオスタットを通じての熱流入に関してはその長さや断面積にかなり大きく依存するため、より低温にするためにはできるだけ長いクライオスタットを導入することが重要であることがわかる。(クライオスタット管の厚さは強度的にも薄くするわけにはいかない) しかし、クライオスタットを横置きにする際には長くしすぎると自重によるたわみが無視できなくなり、厚みを増して強度を得ると熱流入が増えてしまう。一方で短くすると熱流入が増大しヘリウム消費量の増大と最低到達温度の向上を招いてしまう。そのため、現実的にはクライオスタットの長さは  $800 \sim 1500 \text{ mm}$  程度にしておくのがよいが設置環境などでこの範囲に収められない場合は以下に述べる減圧などをしっかり行うことで対策可能である。

#### • 減圧による He の蒸発熱

全く減圧を行わない場合、He トランスファーチューブから液体が噴き出す際に多少の拡散が起こるが基本的には  $4.2 \text{ K}$  のヘリウムの常圧による気化熱のみである。このため常圧においては  $4.2 \text{ K}$  以下に下がることはない。減圧を行うことによってより効率的に冷却能力を得ることが可能となるが、その蒸発熱はだいたい  $1 \text{ g}$  当たり約  $20 \text{ J}$  である。そして、He の  $3 \text{ K}$  における飽和蒸気圧は約  $24 \text{ kPa}$  であるからクライオスタット内部先端をこの圧力まで下げた時に内部では  $3 \text{ K}$  になっていることになる。ま

た、その時のヘリウムの流量と蒸発熱からクライオスタット内部における冷却能力を知ることができる。例えば液体 He の流量が  $3 \text{ L/hour}$  であった場合、約  $0.1 \text{ g/s}$  の蒸発であることから  $3 \text{ K}$  において約  $2 \text{ W}$  の冷却能力を得ていることになる。実際にはこのすべてがコールドヘッドの冷却に寄与しているわけではないため、この値を用いることは正確性を欠くことになる。初めに熱収支の計算はオーダー程度で良い、と述べたのはこれと先に記したクライオスタット内のガスによる熱輸送の不正確性のためである。このためクライオスタットの構造と実際に液体 He を流し減圧したときのクライオスタット内部の温度が実際に試料冷却を行う際の指標となる。試料はこの温度以下に冷却されることはなく、いかにこの温度に試料の温度を近づけるかということが次の段階となる。一般的に減圧ポンプには到達圧力が  $10 \text{ Pa}$  以下となる油回転ポンプかスクロールポンプを用いる。実際の到達圧力はその排気速度は大きければ大きいほどよく、ダイヤフラムポンプ程度や  $6 \text{ m}^3/\text{h}$  のよく用いられるサイズのポンプでも効果を得られるが、効率的な冷却となると  $20 \text{ m}^3/\text{h}$  以上のものを推奨する。より低温を目指すのであれば  $300 \text{ m}^3/\text{h}$  クラスのルーツポンプと  $30 \text{ m}^3/\text{h}$  以上のロータリーポンプのタンデムによるシステムを用いるのがよく、特に縦置き型のシステムにおいて効果を発揮する。注意点としては配管が長くなることに伴うコンダクタンスの低下による実効排気速度の低下がある。これを軽減するために、配管は可能な限り太い管を使い、無駄に長くしないことが重要である。いずれの場合でもロータリーポンプを用いる際は回収ガスへの油の混入を抑えるため、マグネットカップリング方式の物を使い、オイルミストフィルタを取り付けるようにする。

#### • 輻射熱対策

クライオスタット先端の温度は先に述べたように室温からの熱流入と液体 He による冷却の釣り合いによって決まる。試料はここに取り付けたフィンガーに設置されるため、この温度以下に下がることはない。試料の温度を決定づけるのはフィンガーが受ける輻射熱とフィンガー-クライオスタット間の熱接触による。クライオスタット先端の温度と試料の温度の差を小さくすることが試料の低温化といえる。これを小さくするためには熱輻射を可能な限り小さくすることが重要となってくる。

黒体輻射  $P$  は  $P = \sigma T^4$  と表され ( $\sigma = 5.67 \times 10^{-12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$  ( $\text{J} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{K}^{-4}$ )), これは室温 ( $300 \text{ K}$ ) において  $0.046 \text{ W/cm}^2$  という値になる。もちろん装置とその周りの物すべてが黒体というわけではないが、これがいかに大きいかはご理解いただけると思う。先の例だと  $3 \text{ K}$  で  $2 \text{ W}$  もの液体 He による冷却を行ってクライオスタット先端において平衡状態 (つまりこの部分における冷却能力は  $0 \text{ W}$  である) にあったものに、表面積が  $20 \text{ cm}^2$  の何の対策も行っていないフィンガーを付けるだけで、約  $1$

W もの熱流入を受けるのである。これだけの熱流入があると液体 He の流量では 20 K 位でないと釣り合わなくなってしまう。

実際に受ける輻射熱は試料部の温度を  $T_1$ 、外部の温度を  $T_2$  として

$$Q = \frac{\sigma \epsilon_1 \epsilon_2 A (T_2^4 - T_1^4)}{\epsilon_1 + \epsilon_2 - \epsilon_1 \epsilon_2}$$

と表される。 $\epsilon_1$ 、 $\epsilon_2$  はそれぞれ試料部、外部の放射率、 $A$  は立体角  $2\pi$  で外部を臨む面積である。

このことからわかるのは以下のとおりである。

- 外部の温度を下げる
- フィンガーの表面の放射率を下げる
- フィンガーの表面積を小さくする

まず一つ目であるが、輻射熱は温度の 4 乗に比例することから、 $T_2$  を 300 K から液体窒素温度 77 K にするだけで受ける輻射熱を 0.4% 程度と大幅に少なくすることができるということである。20 K 程度にすると 0.002% 程度とほぼ無視できるようになる。これが熱輻射板を設置してフィンガーが臨む室温部分を減らすことで低温を達成できる理由である。

二つ目はフィンガーを金メッキすることを示す。フィンガーは無酸素銅やベリリウム銅で作られることが多いがこれらは鏡面研磨状態では放射率は 0.2~0.3 程度であるが、酸化によって放射率が 0.8 程度と大きく増加してしまう。アルミニウムは鏡面研磨後の酸化膜で放射率は 0.3 程度と良好であるが強度が問題となることが考えられる。ベースを無酸素銅として金メッキを施すことが最も手軽に低い放射率を獲得・維持する方法である。無酸素銅への金メッキの施工は直接施す ( $\epsilon \sim 0.3$ ) 方法と Ni を下地としてメッキを施す ( $\epsilon \sim 0.15$ ) 方法があるが、通常は前者で十分である。2~3 K 以下を目指す場合には後者の方が有利であるが磁化状態や近年可能となってきた磁場下などでの実験を行う場合には十分な注意が必要である。

三つ目はフィンガーをコンパクトにすることに対応する。フィンガーがコンパクトになれば自身の熱容量も小さくなり冷却が効率的に行われ、ヘリウムの消費量も抑えることが可能となる。

これらを踏まえたうえで、実際の計算を行うことになるが、熱輻射計算を正確に行うのは非常に困難である。そこで、筆者はかなり単純化して計算を行っているがここではその方法を簡単に説明する。

Fig. 4(a) にそのモデル図を示す。見やすくするため円筒の両端は閉じていないが実際には閉じているものとして考える。周囲を完全に内径 40 mm の円筒形の熱輻射板に覆われている状態から熱輻射板に直径 10 mm の穴をあける。フィンガー表面 (20×30 mm) の中央はその穴の中心の真下、円筒の中心軸上にある。熱輻射板は 20 K 以下

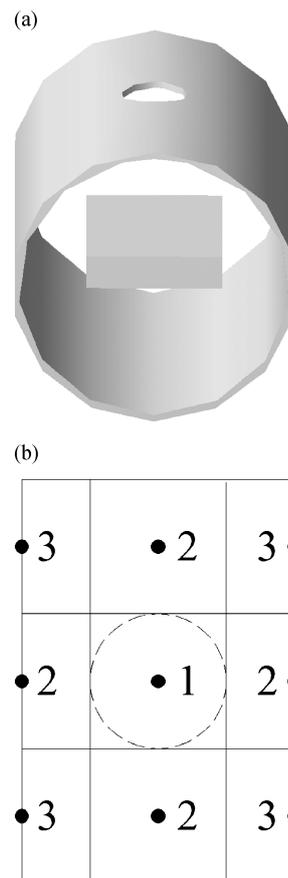


Fig. 4 (a) 輻射熱を計算するにあたっての単純なモデル。内径 40 mm の円筒の両端は実際には閉じている。20×30 mm のフィンガー表面中央の直上に直径 10 mm の穴が開いている。(b) 計算を行うにあたってのフィンガー表面のブロック分け。

に冷却されここからの輻射熱は無視できるものとする。輻射熱を求めるにはまず  $A$  を求めるわけだが、 $A$  は立体角  $2\pi$  が前提となっており、熱輻射板により室温を臨む立体角が一部に制限された状況ではこれを考慮することが必要となる。熱輻射板からの輻射は各点における立体角を求めながらフィンガー表面全体について積分していくがこれを正確に計算するのは面倒なので、例えば 10 mm 四方の部分に区切ってその中心からの立体角を求め、各正方形内では各正方形中心からの立体角を適用して計算を行う。Fig. 4(b) にこのモデルにおける区切りを示す。1 については  $0.25\pi/8\pi = 0.03125$  であるからこの部分の  $A$  は  $0.03125 \text{ cm}^2$  として扱う。同様に 2 は角度が 27 度傾くことからこの点から見える楕円穴の短径は 9 mm 程度、その楕円の中心までの距離はほぼ変わらないとして、だいたい  $0.225\pi/8\pi = 0.028125$  となる。3 も同様に 36 度傾くことから見える楕円穴の短径は 8 mm 程度、中心までの距離も 1 mm 強長くなる程度なので無視すると  $0.2\pi/8\pi = 0.025$  となる。これに同等な部分の数を考慮して合計すると大体  $0.17 \text{ cm}^2$

となる。フィンガーの放射率をやや高め0.5と見積もって室温側を1とするとフィンガーが受ける放射熱は約4 mWということになる。もともと近似したモデルであるので計算の有効数字は1桁で十分である。これらフィンガー形状に対してすべての熱放射板の穴について行えばフィンガーが受ける放射熱を求めることができる。

光電子取り込み口などすべての穴を考慮すると放射熱は大体数十 mW から100 mW 程度となる。熱放射板がない場合と比べると大きな違いとなることがわかる。

しかし、放射熱対策を行うにあたっては、励起光エネルギーが高くなってくると励起光による熱流入が放射熱と同程度にまで大きくなっていくことに留意しておく必要がある。真空紫外領域の8 eVでは光子数 $10^{12}$ 個/秒で大体 $\mu$ Wのオーダーであるが、これが8 keVの硬X線になるとmWのオーダーであり、高次光の影響も考えると10 mW以上のオーダーになることも考えられる。この場合、もちろん丁寧な放射熱対策は重要であるが、効率を考えるとある程度手抜きした対策でそれなりの効果を得る位でもよいかもしれない。この場合、コールドヘッドにおける冷却能力と励起光による熱流入と放射熱の合計が釣り合う温度が最低温となる。現実的な目安としては、真空紫外領域で3 K、軟X線領域で5 K、硬X線領域で8 Kを得られれば十分に対策がなされているといえる。

#### • 熱接触

先に述べたように、放射熱とコールドヘッドにおける冷却能力が釣り合ったところが試料の最終的な温度となる。当然ではあるが、この放射熱の分コールドヘッドにフィンガーを取り付けない状態での温度より上昇することになる。放射熱を抑えることでこの温度上昇は抑えることができるが、それもコールドヘッドとの効率的な熱交換が行えてこそである。この熱交換がうまくいかないとコールドヘッドの冷却能力がうまく伝わらず、放射熱をうまく奪えず試料温度は上昇する。これは温度が下がらないだけでなく液体Heの流量が増えることにも繋がるため、可能な限りコールドヘッドとフィンガーの間の熱接触をよくすることが求められる。

コールドヘッドとフィンガーを直接接続する際には厚さ20  $\mu$ m程度の金箔を挟み、ねじをしっかりと締めて両者を強く接着させることが重要である。実験室光源の場合、ほとんどがこの方式であるが、放射光を利用する場合は試料電流などを取得するためにフィンガーを電氣的に絶縁する必要がある場合が多い。この場合、0.2~1 mmの厚さのサファイアを挟み込んで接続することになる。サファイアの両面には熱接触を高く取るために金箔を両面に挟み込み、ねじを絶縁して締める。ねじはより強く締めるため、PTFEなど絶縁体製のものではなく通常のステンレス製のものを用い、PTFE製のツバ付きブッシュを挿入することにより、絶縁を保ちつつより強い力で締め込むことが

でき熱接触をよくすることが可能となる。しかし、サファイア板を挟んで熱接触よく接続するのは非常に難しく、締め方や金箔の状態などに大きく左右される。フランジ締めの基本と同様に慎重に各ねじのトルクを合わせながら締め込んでいくことになるが、これが慣れるまではなかなかうまくいかない。そのため、納得できる接続ができるまで冷却テストを行いながら、接続のやり直しを繰り返す必要がある。その余裕がない場合は、より慎重に締め込んでいくしかない。熱放射板も取り付けの際は金箔を用いるが、熱放射板自体は20 Kまで冷却できれば十分なので、それほど慎重に行う必要はない。

これらの対策を行ったのに冷えない、という場合は、先に述べた励起光エネルギーやクライオスタットの冷却能力不足でなければ、熱接触が問題になっている場合が多く、もう一度丁寧に取り付けなおすことで解決することがしばしばある。また、2 K以下を目指す場合には、フィンガーが受ける放射熱の多くを占めるアナライザーの光電子取り込み口を冷却する、など徹底的な対策が必要となってくる。

## 4. 実際に冷却してみる

実際に液体He連続流クライオスタットとHe循環型クライオスタットによって冷却された熱放射板および減圧装置(30 m<sup>2</sup>/h)を用いて冷却を行った結果を示す。Fig. 5は大阪大学において建設したレーザー光電子分光装置のクライオスタットと減圧装置の部分である。トランスファーチューブのベッセル側には流量調整バルブがついており流す液体Heの量を調整することができる。連続流クライオスタットを用いて最低温度を目指す場合、減圧を最大にした状態で最適な液体Heの流量を模索することになる。トランスファーチューブ側の流量調節バルブは全閉の状態から2~3回転程開けておく。ベッセルは回収ライン側のバルブを開けておき常圧で用いる。温度安定性の観点から連続流クライオスタットにおいては基本的にベッセルの加圧は行わない。初めの予冷では減圧装置の流量微調整用ニ-

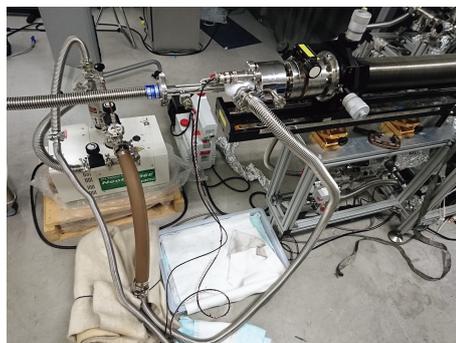


Fig. 5 (Color online) 大阪大学に建設した光電子分光装置の減圧装置。

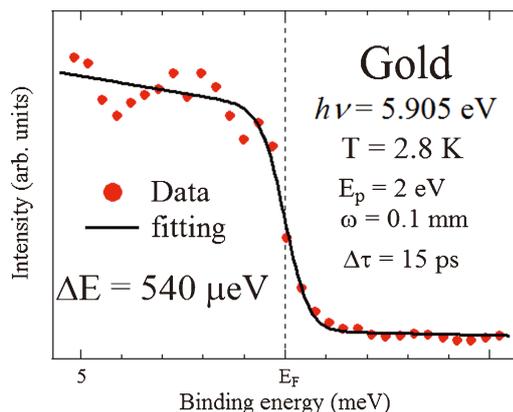


Fig. 6 (Color online) 本装置で達成した最低温度。

ドルバルブのみを開き少量の液体 He が蒸発したガスを用いて冷却を行う。数分して温度が下がり始めたら液体を用いて減圧装置のクライオスタット側のバルブを全開にする。15分もするとその状態における最低温度に到達する。この状態から、流量の調整によって最低温度の探索を行う。トランスファーチューブの流量調整バルブを閉鎖すると温度が変化するが、この曲線は流量に対して温度が凹型の形となっている。流量を変化させながらこの最低温度を探せばそこが現環境における最低到達温度である。実際にこの装置で達成した最低温度を Fig. 6 に示す。この状態における液体 He の消費量は 2 L/h であった。10 K ほどにすると液体ヘリウムの消費量は 1 L/h 以下と大きく減少する。

これだけの対策を行えば 3 K 以下の温度を達成するのは容易である。この状態であれば、より排気量の大きな減圧ポンプを用いることで 2.3 K 位までは比較的容易に達成可能である。

ここまで冷やすことができれば、フェルミ準位極近傍の小さな電子状態の変化として現れる超伝導体等も多くの物質を対象とすることが可能となるし、価電子帯や内殻の光電子強度の温度変化やエネルギーシフトを極低温に渡ってとらえることも可能となる。基底状態に関する研究をはじめ価数の変化が物性に大きく寄与するような物質群の研究

も室温から極低温領域にまで渡る広い範囲で可能となる。

## 5. 最後に

放射光利用研究における低温化技術について、最も困難を伴う実験手法の一つである光電子分光法を例に、これまで低温実験の経験のない研究者にも新たにチャレンジできるよう、実際に低温化を行うために用意すべき構成要素と理解すべき基礎的な低温知識・ノウハウについて述べた。低温技術は着実に放射光利用研究にも浸透してきており、新たに開発される放射光利用技術とともに着実に進化してきている。それでも未だ冷却におけるネックがあったり、冷却そのものに敷居を高く感じたりで、そもそも選択肢に低温化は入っていない、という手法もあるかもしれません。必要となる最低限の知識を持っておけば、何らかの拍子で出てきたアイデアで一気に状況が変わることもあります。光電子分光においてもこの方法によって一気に低温化が進んだということがあり、その後の研究の多様さは目を見張るものがあります。他の放射光利用研究においても低温化による今後の発展は大いに期待されるものと考えます。

最後に本稿が、低温物性に興味のある研究者・大学院生の方に少しでもお役に立てれば幸いです。

## 参考文献

- 1) 木須孝幸, 横谷尚睦, 辛埴: 固体物理 **36**, 83 (2001).
- 2) T. Yokoya, T. Kiss, A. Chainani, S. Shin, M. Nohara and H. Takagi: Science **294**, 2417 (2001).
- 3) S. V. Borisenko: Synchrot. Radiat. News **25**, 6 (2012).
- 4) T. Shimojima, K. Okazaki and S. Shin: J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 072001 (2015).
- 5) Homepage address: <http://www.cryoindustries.com/index.html>  
<http://www.nikiglass.co.jp/supplier/cryo/cryoind/cryoind.html>
- 6) 小林俊一: 低温技術, 東京大学出版会 (1976).
- 7) 低温工学協会: 超電導・低温工学ハンドブック, オーム社 (1993).