

極低温電子光学装置のための ^3He 冷凍機的设计

Design of a helium 3 cryostat for an electron optics testbed

○内田昇汰*, 岡本洋*

○Shota Uchita*, Hiroshi Okamoto*

*秋田県立大学システム科学技術研究科

*Graduate School of Systems Science and Technology, Akita Prefectural University

キーワード：クライオ電子顕微鏡(cryo-electron microscopy), ^3He 冷凍機(helium 3 cryostat),

連絡先：〒015-0055 秋田県由利本荘市土谷字海老ノ口 84-4 秋田県立大学 知能メカトロニクス学
科 制御工学研究室 岡本洋, Tel. :(0184)27-2088, Fax. :(0184)27-2187, okamoto@akita-pu.ac.jp

1. はじめに

クライオ電子顕微鏡法 (cryo-electron microscopy, cryoEM) は、近年脚光を浴びている医学生物学分野における高分解能電子顕微鏡法である¹⁾。cryoEM を含む透過電子顕微鏡法(TEM)では高エネルギーの電子を照射するため試料が損傷する。損傷を避ける少ない電子数で十分な SN 比を達成するため、cryoEM における single particle analysis と呼ばれる手法では同一種類の分子を例えば 10^4 個ほど使用し、未知の分子配向に対応するための高度なアルゴリズムを用いた平均化処理をして高分解能を得る。これに対し、細胞薄片などを観

察するクライオ電子線トモグラフィー (cryoelectron tomography, cryoET)などでは、本質的に試料は一つであるから、平均化処理ができず分解能は 4 nm 程度に留まっている。

量子電子顕微鏡は、近年実現に向けた研究が活発化している手法で、原理的には平均化処理をせず照射損傷しやすい試料の分解能を改善できる²⁾。電子ミラーを使った方式などいくつかの方式があるが、我々のグループでは極低温下に置かれた超電導量子ビットを電子顕微鏡に組み込むアプローチを研究している³⁾。小規模な原理実証実験を行うため、我々は超小型電子顕微鏡を組み込める極低温装置を開発中である。

原理実証実験の第一歩は、極低温下に置かれた超電導量子ビットと、その近傍を通過する電子ビームの相互作用を検証することである。以下では、アルミニウム製の超電導量子ビットを用いた予備実験に必要な、サブケルビン温度領域に到達する ^3He 冷凍機的设计について報告する。

2. 極低温電子光学装置

Fig. 1 に作成中の極低温電子光学装置を示す。無負荷で2 Kに到達する住友重工 RP-062BS パルスチューブ冷凍機が直径318.5 mmの大型真空チャンバーに収められている。



Fig. 1 極低温電子光学装置

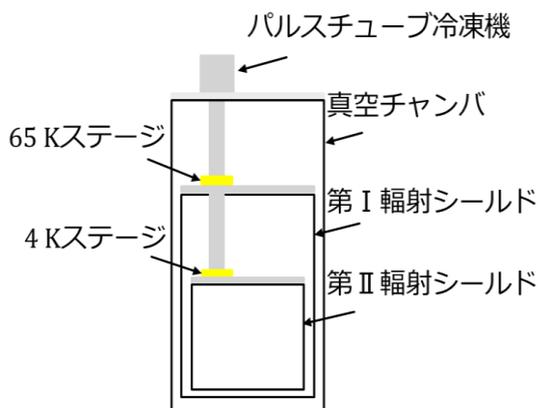


Fig. 2 真空チャンバー内部

Fig. 2 に真空チャンバー内部の概略図を示す。外部からの高温の輻射をより低温の輻射シールドからの輻射で置き換えるために2重の輻射シールドが施されている。パルスチューブ冷凍機の65 Kステージに取り付ける第一輻射シールドはすでに動作実証済みであり、4 Kステージに取り付ける第二輻射シールドは現在作成中である。

シュテファン・ボルツマンの法則により、輻射熱流の大きさは物体の絶対温度の4乗に比例するので、控えめに冷やされた輻射シールドであっても、低温部に流入する熱量を何桁も低減できる⁴⁾。

3. ^3He 冷凍機的设计

基本仕様として、約0.3 Kの最低到達温度を20時間維持できる ^3He 冷凍機を設計する。パルスチューブ冷凍機は無負荷で2 K (^3He の1気圧下での液化温度3.2 K以下の温度)に到達できるが、実際の冷却能力が ^3He の液化に十分かどうか不明であるため、1 K近傍に到達できる ^4He ポット (^4He の液溜め、1 Kポットとも呼ばれる)も併せて設計し、開発を進める上での選択幅を広く保つ。以下では、 ^4He ポットを使う前提で記述する。設計の主目的は、 ^3He 、 ^4He の両方について①想定される熱負荷を見積もり、それに基づいて②ガスの必要量、すなわち室温部でのタンク体積と極低温の液溜めの体積と、③蒸発冷却に必要な排気管の太さを見出すことである。

設計について述べる前に ^3He 冷凍機の原理を簡単にレビューする。 ^3He を効率的に液化するために、小型の ^4He ポットをパルスチューブ冷凍機の4 Kステージの下部に設置する。室温にあるガスハンドリ

ングシステム(GHS)から導入する ^4He ガスを、順次パルスチューブ冷凍機の65 Kステージと4 Kステージ(無負荷における温度は約2 K)に接触させ、沸点が4.2 Kの ^4He を液化する。続いて液体 ^4He を減圧排気し、約1.5 Kに到達する。

次に、室温から導入する ^3He ガスをパルスチューブ冷凍機の65 Kステージ、4 Kステージ、そしてさらに ^4He ポットに接触させ徐々に冷やす。この過程で沸点が3.2 Kの ^3He は液化するから、これを ^3He ポットに溜める。続いて液体 ^3He を減圧排気していくと液体が蒸発し、気化熱を奪われさらに低温になる。ポンプの性能に依存するが、典型的には約0.3 – 0.4 Kに到達できる。

3.1 ^3He ポット関連部の設計

A. 必要な冷却パワーの算出

熱負荷としては輻射熱、金属部品を通じた伝熱、配管内部のガスによる伝熱、そして低温部に配置された実験装置による熱負荷が考えられる。① ^3He ポット部では、第2輻射シールドの温度が4 K、特徴的面積を(20 cm)²程度であるとすれば、放射率を1としてもステファン・ボルツマンの法則から熱流入は29 nW程度であり、重要ではない。②1 Kポットにつながる金属部品は、SUS304の外径10 mm、肉厚0.5 mm、長さ50 mmの吊り棒が三本と外径5 mm、肉厚0.5 mm、長さ30 mmの排気管がある。SUS304の熱伝導率は0.3 – 1.5 Kで0.03 W/mKから0.09 W/mKに変化するから^{4,5)}、最悪値を想定すると75 μW 程度である。③0.35 Kにおける

^3He の蒸気圧を1 Paと仮定すると、平均自由行程は32 μm であり排気管の内径より十分小さい。よって、ガスを粘性領域にあるとみなすことができる。粘性領域での熱伝導率は

$$\kappa = \eta c_v$$

の式で表される⁴⁾。ここで η は粘性係数、 c_v は質量あたりの定容比熱である。よって、熱伝導率は0.002 W/mKと見積もることができる。④低温部の電子光学ユニットに例えば ϕ 0.2 mm、1.5 K部までの長さが50 mmのマンガニン(熱伝導率は0.3 – 1.5 Kで0.005 – 0.1 W/mK^{4,5)})線が20本接続され、また100 eV、100 nAの電子線による実験が行われるとすれば、熱負荷は合計12 μW 程度と見積もられる。

結論として、重要な熱負荷は金属部品を通じた伝熱であり、全熱負荷は87 μW 程度と見積もられる。

B. ^3He ガスの必要量の算出

^3He 冷凍機を出力100 μW で20時間稼働させるために必要な吸熱量は7.2 Jである。これを ^3He の蒸発潜熱で賄うことになる。温度が350 mKのときの蒸発潜熱は25 J/molであるため⁴⁾、実験中の吸熱に必要な ^3He は0.288 molである。

また、最初に350 mKに到達するために使われる ^3He の消費量も計算に入れる必要がある。 ^4He を用いて1.5 Kまで予冷された液体 ^3He を、350 mKまで温度を低下させるために、一定割合の液体 ^3He が消費される。ここで液体 ^3He と同時に冷やされる金属容器の重さ当たりの比熱は液体 ^3He の重さ当たりの比熱と比べ4桁ほど小さいため⁴⁾、無視できるものとする。温

度 T における液体 ^3He のモル比熱 $C(T)$ 、潜熱 $L(T)$ 、蒸発モル数 dn について

$$-nC(T)dT = L(T)dn \quad (1)$$

が成り立つから、積分して次を得る。

$$\int_{T_h}^{T_l} \frac{C(T)}{L(T)} dT = \log \frac{n_f}{n_i} \quad (2)$$

ここで n_i, n_f はそれぞれ最初と最後の ^3He のモル数である。 $C(T)$ 、 $L(T)$ 、について文献値を使い⁴⁾ $T_h = 1.5 \text{ K}$ から $T_l = 350 \text{ mK}$ まで積分すると、 $n_f/n_i = 0.86$ を得る。よって実験中の吸熱に必要な ^3He ガス量と、初期冷却に必要なガス量を加算して、 ^3He のトータルの必要量 0.344 mol を得る。

室温では ^3He を理想気体であるとみなせるから、GHSの ^3He タンクの必要な容積は 7.2 L となる。また 350 mK の液体 ^3He の密度は 0.081 g/mL であるから⁴⁾、 ^3He ポットの容積は 12.3 mL と計算される。

C. 排気管の太さの見積もり

排気管の太さを求めるにはコンダクタンス C の定義式⁶⁾

$$Q = C \cdot \Delta P \quad (3)$$

を用いる。ここで ΔP は排気管両側の圧力差であり、スループット Q は

$$Q = Q_m \frac{kT}{M} \quad (4)$$

と表される。ここで Q_m は質量流量、 k はボルツマン定数、 $M = 3.016 \text{ g/mol} = 5.0 \times 10^{-27} \text{ kg}$ は ^3He 原子の質量である。いま冷却パワーが $P_c = 100 \text{ } \mu\text{W}$ 、また温度が 350 mK のときの蒸発潜熱が $L = 25 \text{ J/mol}$ であるため⁴⁾、 $Q_m = P_c M / L = 1.1 \times 10^{-8} \text{ kg/s}$ である。

排気管内の流れの性質は平均自由行程

$$l = \frac{kT}{\sqrt{2}\pi d^2 P} \quad (5)$$

と⁶⁾、配管の太さ D の比によって判定できる。ここで d は原子の直径であり、 ^3He の場合 $2.2 \times 10^{-10} \text{ m}$ である⁶⁾。大雑把には、 $D < l$ なら分子流であり、 $D > l$ なら粘性流である。

コンダクタンスを表す式は、ガスの流れが分子流か粘性流かによって変わる。分子流の場合は

$$C = \frac{D^3}{6L} \sqrt{\frac{2\pi kT}{M}} \quad (6)$$

であり⁶⁾、粘性流の場合は

$$C = \frac{D^4 \pi (P_h + P_l)}{L \cdot 256\eta} \quad (7)$$

である⁶⁾。ここで P_h 、 P_l は排気管両側のそれぞれの圧力、 D は排気管の内径、 L は長さ、 η は粘性係数である。粘性係数は

$$\eta = \frac{1}{3\sqrt{2}\pi d^2} \sqrt{\frac{8kTM}{\pi}} \quad (8)$$

で表される⁶⁾。

さらに、 ^3He 冷凍機の排気管の形状を設計した。Fig. 3に概念図を示す。設計においては排気管をいくつかの領域に分け、各領域の長さや領域間の境界における温度を任意に設定した。やや粗い近似であるが、各領域内の温度は一定とし、その温度は領域上端と下端の平均値とした。各領域毎に分子流か粘性流かを判別し、(6)、(7)式のうち適切なものを用いてコンダクタンスを計算した。4 Kから60 Kの領域は粘性流から分子流へ遷移するため、(6)、(7)式の平均を採用した。全ての温度領域で質量流量 $Q_m = 1.1 \times 10^{-8} \text{ kg/s}$ が一定である条件か

ら、各領域における配管の直径を算出した。

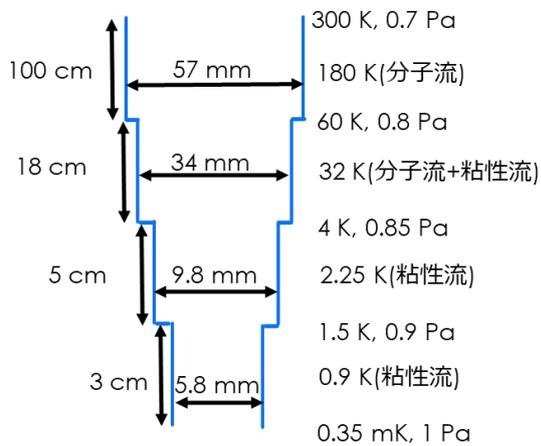


Fig. 3 ^3He 冷凍機の排気管の設計

3.2 ^4He ポット関連部の設計

概ね ^3He の場合と同様に計算できるから、数値的結果の他は ^4He に固有の部分に絞って記述する。

A. 必要な冷却パワーの算出

熱負荷は①輻射熱流入が28 nW程度である。②金属部品に沿った伝熱は、1.5 – 4 K領域の SUS304 の熱伝導率 0.09~0.4 W/mKから⁴⁾、最悪値を想定すると870 μW 程度である。③配管内の ^4He ガスによる伝熱については、1.5 Kにおける ^4He の蒸気圧が300 Pa程度であることからガスは粘性領域にあり、熱伝導率は 0.004 W/mKである。よってガスによる伝熱は金属部分の伝熱に比べて重要でない。

結論として、重要な熱負荷は金属部分の伝熱であり、全熱負荷は870 μW 程度と見積もられる。以下、余裕をもって2.0 mWの冷凍パワーを想定する。

B. ^4He ガスの必要量の算出

冷凍パワー870 μW および稼働時間40時間を想定すると吸熱量は125 Jである。 ^4He の蒸発潜熱は1.5 Kで88 J/molであるため⁴⁾、まず1.4 molの ^4He が必要である。

次に ^4He ガスの計算にユニークな点として、 ^3He を4 Kから1.5 Kまで冷やするためにも ^4He が消費される。ただしパルスチューブ冷凍機によって ^3He が4 Kまで冷やされると仮定した。このとき奪わなければならない熱は、液化に伴う潜熱と、気体・液体双方の冷却に伴う比熱から計算される熱である。 ^3He の沸点は圧力によって変わるから、4 Kから1.5 Kの範囲で、比熱の総量と潜熱の和が最も大きくなる沸点を想定した。すると沸点が1.5 Kのとき比熱の総量と潜熱の和が最大になり、その値が96.5 J/molであった。よって、 ^3He を4 Kから1.5 Kまで冷やすのに必要な ^4He の量は最大で0.36 molである。

最後に、 ^4He 液体自体が最初に1.5 Kに到達するために使われる ^4He の消費量も計算に入れる。 ^3He の場合と同様に金属容器の比熱を無視し、同様に(2)式を用いて温度 $T_h = 4$ Kから $T_l = 1.5$ Kまで積分すると、 $n_f/n_i = 0.67$ を得る。

上述のすべてを加算して、 ^4He のトータルの必要量2.6 molを得る。

^3He の場合と同様の計算により、室温部の ^4He タンク容積65 L、また液体 ^4He の密度0.15 g/mL (1.5 Kにおける値⁴⁾) を使って ^4He ポット容積72 mLを得る。

C. 排気管の太さの見積もり

^3He のときと同様に求める。冷却能力が870 μW 、原子量が4.00 g/mol、温度が1.5 Kのときの蒸発潜熱が88 J/molであるため⁴⁾、質量流量は 1.3×10^{-7} kg/sであ

る。また分子の質量は 6.6×10^{-27} kgである。

^3He のときと同様に、 ^4He 冷凍機の排気管の太さを見積もった。得られた ^4He 冷凍機の排気管の概略図を Fig. 4 に示す。

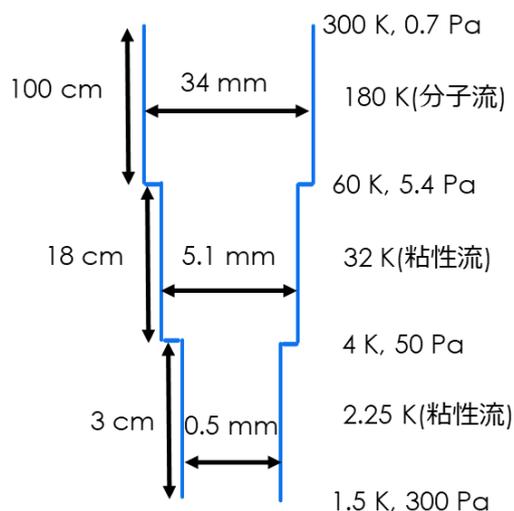


Fig. 4 ^4He 冷凍機の排気管の設計

計算された ^4He の排気管直径は低温部で小さく、固体空気によるブロックなども懸念されるため、現実には太く設計すべきである。

4. 今後の予定

最初のステップとして ^4He 冷凍機を作製し動作実験を行う。 ^4He リーク等を起こさない技術・ノウハウを得た段階で、高価な ^3He を用いた ^3He 冷凍機の作製に進む。

長期的には、超電導量子ビットを用いる実験を念頭に、別途開発する極低温用超小型電子顕微鏡をキャラクターゼーションする実験に進む。

本研究は、科学研究費基盤研究 (C) 19K05285 の支援を受けている。本研究に

これまで関与した多くの学部生・大学院生と、技師の三浦茂男氏に感謝する。

参考文献

- 1) K. Murata and M. Wolf, Cryo-electron microscopy for structural analysis of dynamic biological macromolecules, *Biochimica et Biophysica Acta* **1862**, 324/334 (2018).
- 2) P. Kruit, R.G. Hobbs, C-S. Kim, Y. Yang, V.R. Manfrinato, J. Hammer, S. Thomas, P. Weber, B. Klopfer, C. Kohstall, T. Juffmann, M.A. Kasevich, P. Hommelhoff, K.K. Berggren, Designs for a quantum electron microscope, *Ultramicroscopy* **164**, 31/45 (2016).
- 3) H. Okamoto, Possible use of a Cooper-pair box for low-dose electron microscopy, *Phys. Rev. A* **85**, 043810 (2012).
- 4) 田沼静一: 低温 (実験物理学講座 15), 15/18 78/79 288/290 共立出版株式会社 (1974).
- 5) Frank Pobell: Matter and Methods at Low Temperatures, 39/40 67/68, Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2007)
- 6) Robert C. Richardson, Eric N. Smith: Experimental Techniques In Condensed Matter Physics At Low Temperatures, 55/58, Key-Westview (1998)