

極低温理学部の共同利用機器 (MPMS・PPMS) の 保守と利用の要点

極低温科学センター 壁谷 典幸 (kabeya@tohoku.ac.jp)
水上 雄太 (mizukami@tohoku.ac.jp)

1. はじめに

極低温センターでは液体ヘリウム寒剤の供給業務に加え、基礎的な物性測定を行うことのできる MPMS や PPMS (共に Quantum Design (以下、QD と略す) 社製) を学内向けの共同利用機器として提供しています。青葉山キャンパスの極低温理学部では、昨年度 (令和4年度) まで稼働していた最大磁場 1 T の MPMS2 (Ultra low field オプション付き) に加え、新たに最大磁場 5 T の MPMS-XL と 9 T の PPMS が導入されました。ユーザーの皆様においては、研究を効率よく進める上で是非これらの装置を有効活用していただければ幸いです。ここ数年のヘリウム価格高騰と供給の不安定化を受けて、当大学も含め国内のヘリウムリサイクルシステムでは一層の回収率向上が求められています。当装置はヘリウムリサイクルシステムを維持管理する極低温センターが自ら管理する装置であるため、ヘリウム回収に関するモデル設備としての役割も期待されます。

本技術ノートでは MPMS や PPMS の主に保守に関する様々な工夫を紹介します。本記事で紹介されている、もしくは当設備装置に設置されている部品類を導入したい、または図面を入手したいとお考えの方がいらっしゃいましたら、是非遠慮なく極低温センターまでご連絡ください。また、ユーザー側からの利用に関しては、当該装置の外部制御について紹介させていただきます。この記事内容が、同様の装置を維持管理されている方々や、さらに高度な計測を希望される方々への参考となれば幸いです。

2. MPMS の保守管理の要点

A) 回収率の向上のための工夫

MPMS・PPMS はユーザーが簡便に使用できるようにするための様々な工夫が随所に設けられています。一方で、ヘリウム回収にはあまり重点を置いていない様で、納入された状態では回収率を下げる要因がいくつか見受けられます。ここでは既存の装置を少し改良することで回収率を向上できる工夫をご紹介します。

ヘリウムリサイクルシステムが導入されている施設においては、装置から常時蒸発するヘリウムガスと付属の真空ポンプからの排気ガスを回収ラインに流す配管を整備しているかと思えます。それにもかかわらず、MPMS や PPMS のヘリウム回収率は 90%以下になることもあります。その主な原因は、保圧弁周りのリークとトランスファー時のガス損失にあります。ヘリウム損失の大部分はトランスファーの際のヘリウムガス漏出に起因します。一般的なクライオスタットとは異なり、MPMS や PPMS には内部を保圧する弁が取り付けられています。これらの装置のトランスファー時には、①この保圧弁を専用のジグ (トランスファーアッセンブリ) に交換し、②トランスファーチューブを差し込み、③トランスファー後にチューブを抜き、④ジグを外して保圧弁を取り付ける、といった操作を行います。これら四過程全てにおいてヘリウムガスが漏出します。ガスの放出量を正確に見積もることは難しいのですが、類似した状況から推測すると一過程で液体ヘリウム換算 1 L 程度の損失が起きていると考えられます[1]。単純計

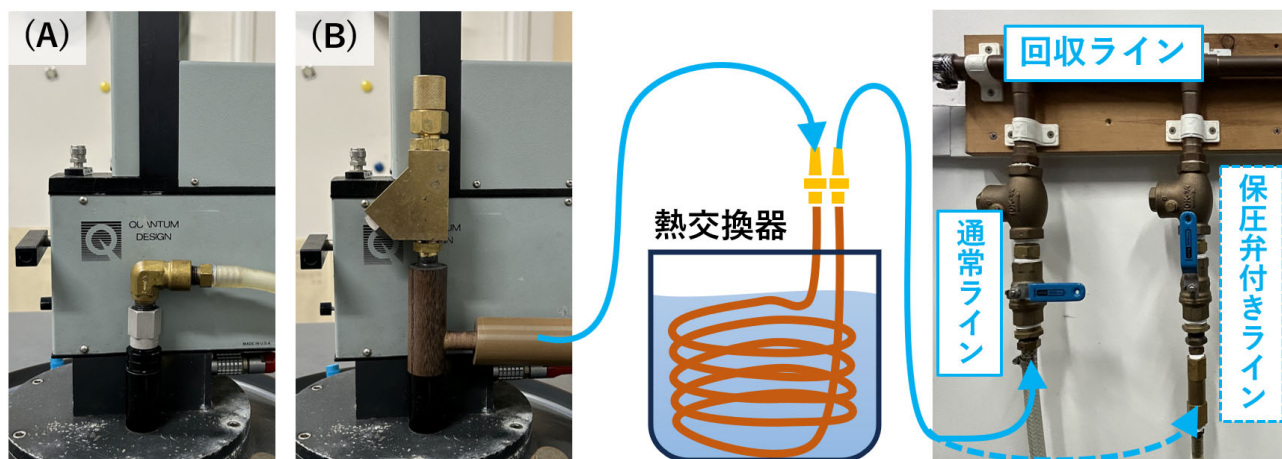


図1 MPMS・PPMSのヘリウムガス回収口。(A) 納入時の保圧弁付きガス回収ポート。(B) 吹き出し防止弁付きのトランスファーアセンブリを常設した状態。トランスファーアセンブリを常設する際の回収配管の模式図。(保圧弁付きラインは設置せずとも装置の動作には支障はないとのこと。)

算すると1回のトランスファーで4Lもの損失が起きることになります。1回のトランスファー量は液体換算 30~50 L程度であると考えれば、この損失で回収率は 90%程度まで下がってしまいます。実際にはその半分以下になるとは思いますが、それでも大きな損失です。

この問題への対策としては、以前本誌で紹介した吹き出し防止弁の設置が効果的です[1]。以下に図1(B), 1(C)に極低温理学部での設置事例を紹介します。保圧弁の代わりに常設されたトランスファーアセンブリには吹き出し防止弁を追加し、低温の回収ガスが通過するホース部分には内径 12mm の耐寒性の真空ホース[2]を用いています。低温ガスにより回収ラインが凍結することを防ぐため、途中になまし銅管をコイル状に巻いた放熱器を蓋つきの水入りバケツに沈めて加温器としてしています[3]。導入時に設置されていた保圧弁は、回収ライン手前に移設してあります[4]。回収ラインは保圧弁のある系統とない系統に分かれており、トランスファーの際にのみ保圧弁のない系統のバルブを開けることで、トランスファー時の効率を上げています。(なお、QD社の技術者によれば、保圧弁の目的は空気の混入を防ぐことであり、MPMS・PPMSの動作に自体には不要であるとのこと。実際に2週間ほど保圧せずにMPMSを使用してみたところ、

特に問題なく動作しました。)この構成にすることで、保圧弁とトランスファーアセンブリの交換によるヘリウム損失をなくし、損失量を半分程度まで減らすことができると期待されます。さらに、吹き出し防止弁でトランスファーチューブの抜き差しの際の漏出対策を行うことで回収率を向上させることができます[1]。これらの対策によって、当該装置の回収率は 98~99%程度を保持しています。簡易的には、図1(B)のようにトランスファーアセンブリを常設することで損失を低減できます。

また、気が付きにくいところでは管用ねじの勘合部からのリークにも注意が必要です。しばしば回収ラインの金属部に設けられる管用ねじは、シールが不完全な場合にヘリウムガスがリークします。仮に 1 cm³/sec. のもれがあると、一日で液体ヘリウムにして約 0.1L 相当が漏出し、装置の蒸発量が 10 L/day 程度であれば約 1%の回収率低下を招きます。管用ねじの漏れ対策としては、単に締め付けを強くするよりも、一液型のシーリング材を塗ってから再組み立てをすることが有効です。リークがあるか否かは、極低温センターで貸し出しているハンディタイプのリークディテクターで調べることが可能ですし、簡便にはせっけん液を塗布する方法もあります。配管からの定常リークは軽視してはならず、管

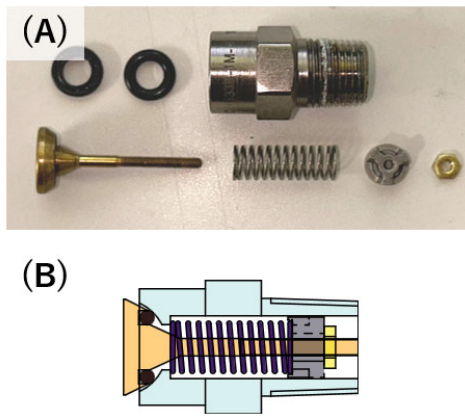


図 2. (A) 分解された 4psi リリーフバルブ。上段左上 2 個の O リングは左が既製品、右が交換品 (AS-568-008)。(B) 内部構造の断面模式図。

用ねじ配管部に対してはリークチェックを十分に行うことが重要です。

B) 試料空間への酸素の混入対策

MPMS の利用時にしばしば問題となるのが試料空間への酸素の混入です [5]。酸素が混入すると 70 K 付近にこぶ状もしくは階段状の信号が現れます。この信号が観測された場合には、酸素を除去するために試料空間を 300 K 程にして 1 時間ほど保持した後に、ブランクプラグを付けてエアロックバルブを開けた状態でパージを繰り返すことが効果的です。

酸素混入の主な経路は、リップシール部分と装置内部のリリーフバルブです。リップシール部分の漏れはユーザーでも対処できます。MPMS 標準の DC モードで使用するリップシールは二重シール構造となっており、その間に常にヘリウムガスが流れることで試料空間への空気の混入を防いでいます。この空間にグリスが詰まることでその機能が失われ、結果として酸素が試料空間に混入することがあります。対策としては、リップシール内部を分解清掃してグリスを取り除くことが効果的ですが [6]、それが難しい場合にはエアダスターなどで詰まったグリスを吹き飛ばすことで状況を改善できます。もちろん、予防措置としてグリスを塗りすぎない様にすることも重要です。

この対策を行っても酸素が度々混入する場合

には、管理者側でリリーフバルブの交換を検討する必要があります。交換用のリリーフバルブはそれなりに高価ですが、道具さえ用意すれば劣化した O リングを交換すること可能です。必要な道具は対辺 4mm のナットドライバ (外径 6.5 mm 以下) と、互換品の O リング (AS568-008) です。交換を検討する際は図 2 の分解写真と内部構造を参考にしてください。

C) インピーダンス閉塞の予防措置

MPMS の管理で発生率の高いトラブルの一つは温度調節の不具合です。特に 4 K 以下の低温が機能しない場合は、高い確率で液体ヘリウムを取り込むインピーダンス部分が閉塞しています [7]。この問題に対する対策として、センターでは液体ヘリウムに含まれる不純物を除去するフィルターの利用 [8] と、装置側からの空気混入経路であるリリーフ弁の移設を行っています。ここでは装置側の問題であるリリーフ弁の対策を説明します。このリリーフ弁は、温度調節空間 (クーリングアニユラス空間) 内の圧力上昇を抑制するために設置されています。4 K 以下から急激に温度を上昇させる操作を行うと、この空間に溜まった液体ヘリウムが蒸発し、一部がこの弁を通して排気されます。その後、リリーフ弁が再度閉じるまでの間に空気が混入し、閉塞の原因となるようです [9]。本来はこの弁の信頼性を高める必要があるのですが、その改造は難しいため、我々はリリーフ弁を移設することで対応しています。図 3 にこの移設の前後の模式図を示します。重要な変更点は、リリーフ弁の排気先を回収ラインに繋ぐことです。この変更により、リリーフ弁からガスが逆流した際においても空気の混入は生じません。この移設のために、MPMS 背面のクイックカップリング配管に別途部品を挿入し、元のリリーフ弁の箇所にはめくらの NPT プラグを設置してあります。表 1 に必要となった部品のリストを記載しました。インピーダンス閉塞に悩まされている場合は、この改造を行うことで改善するかもしれません。

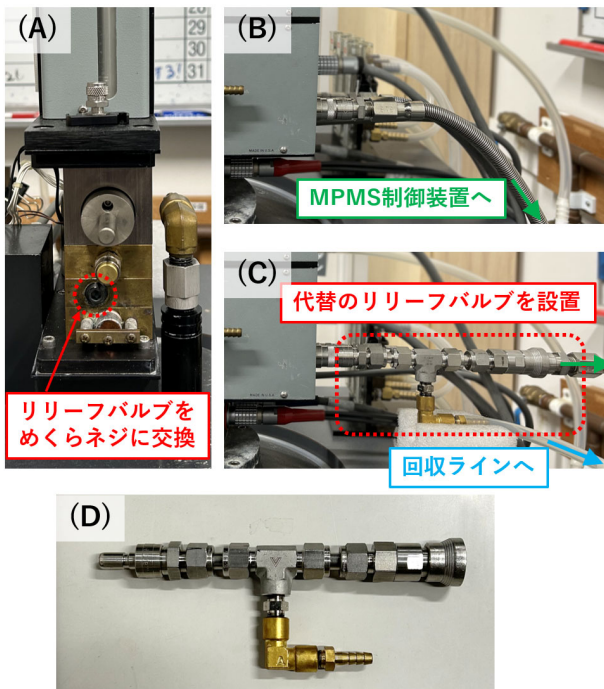


図 3. クーリングアニューラス空間のリリース弁の移設。(A)既設のリリースバルブをめくらネジに交換し、(B) 装置背面のフレキシブル配管の接続部に (C) 代替のリリースバルブを設置。(D) 新たに制作した代替のリリースバルブと分岐配管。(記事末尾の部品表を参照)

D) デュワーの補修

装置が老朽化してくると様々な箇所に問題が生じてきますが、その一つがデュワーのリークです。当センターの装置にもリークが発生し、デュワー交換について問い合わせたところ、QD社にある在庫がなくなったら対応はできなくなるのお話でした。また、交換用のデュワーは当然ながら高額です。今回のケースでは、リークはデュワーの破裂弁の劣化によるものでした。QD社からは修理は不可能と言われましたが、当大学の金属工作室の協力によりなんとか復旧できましたので、その手法をここに記します。今後、デュワー交換の費用捻出が難しい場合や、装置に対応したデュワーが入手できない場合などに参考になれば幸いです。QD社としては推奨しない修理とのことでしたので、その点をご理解いただければと思います。

表 1.リリース弁付き分岐配管図 3 (D) の部品表。

メーカー：[A] アソー、[G] 互省製作所、[S] Swagelok。

品名	規格・型番	個数
クイック継ぎ手 (オス)	SS-QC6-S-600 [S]	1
クイック継ぎ手 (メス)	SS-QC6-B-600 [S]	1
ティーゲージユニオン	VUWTG-9.52A-V [A]	1
チェックバルブ	AT-1011 [A]	1
内ネジエルボ	LF-1011 [A]	1
ホースニップル (7mm)	HN-1107 [A]	1
ステンレス配管	3/8 インチ径、3cm 程度	2
NPT 1/8 プラグ	GD1/8 [G]	1
合計価格 (税込) : 25,000 円程度		

MPMS 用のデュワーには、真空断熱層に破裂弁が設置されており、万一内部が高圧となった場合にも安全に圧力が解放されるように設計されています。しかし、経年劣化によってこの破裂弁自体にリークが生じることがあります。破裂弁部分の写真との構造の模式図を図 4 (A1), 4 (B1) に示します。破裂弁は 0.001 インチ厚の銅箔で構成されているようです。この銅箔部分を交換もしくは補修することは困難だと思われたので、代わりに、銅箔を撤去してデュワーを図 4 (A2), 4 (B2) のように加工し、図 4 (A3), 4 (B3) のように代替の逆止弁を取り付けることにしました。逆止弁の図面を図 4 (C) に示します。弁自体は極めて簡単な構造で、気密性を円筒面の O リングで保ち、内圧が高くなった際には O リングが滑ることで逆止弁自体が外れる構造です。ただし滑り始めの力はグリスの塗り具合などに依存するため (デュワーが破裂する前には外れそうではありますが)、万が一に備えて小型のチェックバルブを追加しています。この逆止弁を取りつけるために、デュワーに溶接されている破裂弁の保護蓋と銅箔周りの接着剤をリユーターで除去する必要がありました。さらに、内面の O リングと密着する部分を滑らかに処理しました。これらの作業は金属工作室に行っていただきました。この改造を施したデュワーを 1 か月程度使用してみましたが、液体ヘリウムの蒸発は修理前よりも緩やかになっており、少なくとも今のところ問題は生じていません。

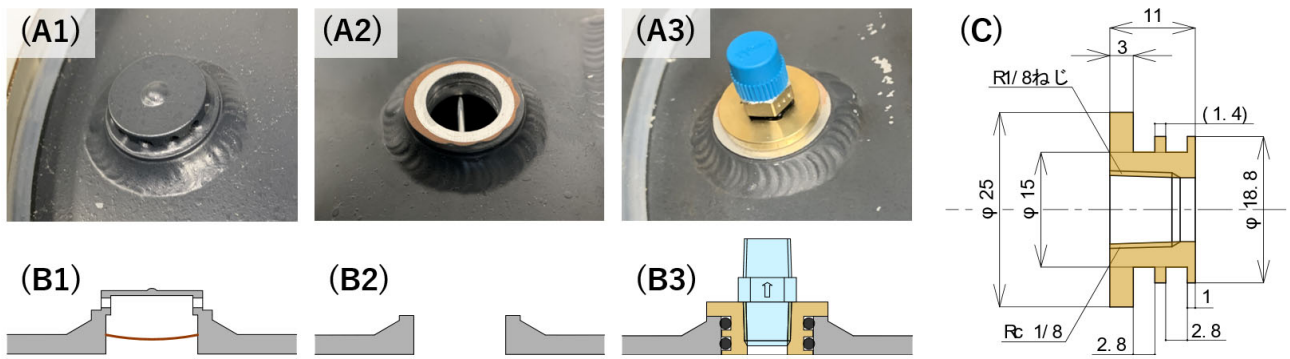


図 4. MPMS・PPMS のデュワーの破裂弁部分の (A1) 通常時、(A2) 弁除去後、(A3) 代替リリース弁設置時の写真と、(B1~3) それぞれに対応した断面の模式図。(C) 代替リリース弁の図面。

E) 制御用パソコン (PC) の交換

機器が古くなってくると、制御用 PC が不安定になり交換の必要に迫られることがあります。QD 社に依頼して新しい PC を購入するのも選択肢の一つではあるが、経費が限られている場合には手持ちの PC を流用することも可能です。制御用ソフトウェアは QD 社に問い合わせることで入手できます。英語版の Windows OS が必要な場合は、対応 OS の日本語版がインストールされた PC (32bit, 64bit のいずれも可) に英語版をインストールして使用することが可能です (日本マイクロソフトに問い合わせ済み)。

3. PPMS の保守管理の要点

A) ヘリウムリーク箇所の補修について

PPMS の利用において、ヘリウム回収率を低下させる要因は、当然 MPMS 利用におけるものと多く共通します。PPMS においてヘリウム回収率を下げる要因は、主にヘリウムトランスファー時のガス漏出と、デュワー本体や配管からのヘリウムガスリークになります。ヘリウムトランスファー時のガス漏出の対策については、MPMS 同様に吹き出し防止弁 [1] を設置していません。PPMS のデュワー本体や配管においてヘリウムガスリークしやすい個所としては、図 5 (A) に示す PPMS 本体トッププレートからリード線が出る出口、および図 5 (B) に示す保圧弁につながるポートの PPMS 本体トッププレートへのねじ込み口 (二か所) になります。後者について

は、ポートのねじ込みが緩くなっていないことやオーリングが劣化していないかを定期的に確認することでリークを防げますので、より対処が難しい前者について書かせて頂きます。前者のリード線出口ですが、当該箇所はリード線が図 5 (A) 中のコの字型の部品を貫通し、この部品と本体トッププレートの間にあるオーリングがつぶされることでヘリウムガスを止める構造になっております。しかしながら、当該オーリングは、コの字型部品上のねじ二つのみによっておさえられており、当然ながら現在のヘリウム回収率の基準では、ヘリウムリークが止められる構造にはなっておりません。当該箇所から出るリード線は、超伝導マグネットやヘリウムレベルメーターに関するものであり、コの字型部品は、PPMS 本体のチャンバーを取り出さない

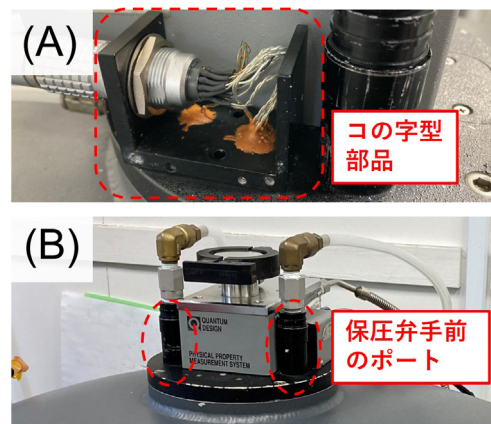


図 5. (A) PPMS 本体トッププレートにおけるリード線の出口とコの字型部品。(B) 保圧弁へつながる PPMS のポート。

と取り外せない構造になっております。従って、当該箇所をユーザーが修理することは上記リード線等の損傷、および装置根幹部分の故障の原因となり、当然のことながら QD 社からは推奨されておりません。その点を十分ご理解頂いた上での対策としては、コの字型部品が止めているオーリングを、太い規格のものに交換すること、また、コの字型部品と本体トッププレートの隙間をシーリング材等で埋めることとなります。当該部分は基本的には外すことが想定されていない部分ですので、シーリング材としてはスタイキャストなど、一度硬化すると除去が難しいもので処置することも可能ですが、センターでは CAF4 というシーリング材を用いております。CAF4 は塗布後数時間で固まりシーリング材として機能しますが、柔らかいため除去が容易です。この二つの対策により、現在はハンディタイプのリークディテクターLD 239 (GL Sciences Inc.)においては、ヘリウムガスリークが検出されない状況となっております。当該箇所においては、この他にもリード線とその被覆の間からリークするといった可能性も指摘されております。センターにおいてはそのようなリークは検出されておりませんが、もしリークが生ずるならば今後その対処法につきましてもご報告させていただきます。

B) 窒素ジャケットの閉塞防止

センターの PPMS は、ヘリウム蒸発率を低減させるための窒素ジャケットを内蔵しております。このオプションは MPMS にもありますが、この種の窒素ジャケットを持つクライオスタットの一般的な問題として、窒素ガス出口の閉塞とそれによる窒素ジャケット内の圧力の上昇が挙げられます。QD 社の PPMS の窒素ジャケットポートには基本的にはリリーフ弁が付帯されておりますが、それでもこのリリーフ弁の周辺に水分が付き、大きな氷の塊が形成されるといったトラブルが度々報告されております。窒素ジャケット内部の圧力を知る手立ては通常はありませんので、ユーザーや管理者としては、大

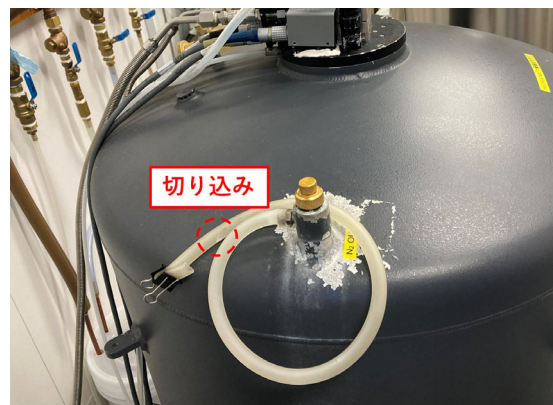


図 6. 窒素ジャケットの閉塞防止用のゴムチューブ。

変気を遣う点であります。

この対策は、一般的ではありますが、図 6 に示すようにリリーフ弁に適度な長さのゴムチューブを取り付けることで、窒素ガス出口における閉塞を防ぐことができます。ここで、ゴムチューブの他端はクリップ等で塞いでおき、チューブ横に少し切り込みを入れ、簡便な逆止弁として働くようにしておきます。これにより空気の混入を防ぎつつ、圧力が上昇した際には窒素ガスを逃がすことができます。

C) 外部機器を用いた測定

PPMS を用いることで、電気抵抗や比熱、熱輸送係数といった様々な物理量を簡便に測定することが可能です。一方、ユーザーとしては測定機器として PPMS 付帯のものではなく、外部の測定機器を用いたいという状況もあるかと思われます。PPMS 付帯の機器では測定できない物理量を測定する場合は当然ですが、例えば PPMS で測定可能な電気抵抗でも、より高精度に測定したいといった状況があるかと思われます。センターの PPMS 付帯の抵抗測定機器である Model 6000 においては、PPMS のマニュアル [10]によると電圧の原理上の測定分解能は最小レンジで 3.81 nV になります。これが、測定機器内部や周辺環境におけるノイズにより 20 nV 程度まで分解能が下がると記載されております。しかし、実際にはこれよりもさらに数倍以上分解

能が下がることが多く、この状況では低抵抗の金属などの低温における電気抵抗測定は困難となる場合があります。

そこで、PPMS において外部の計測機器により測定を行うことができれば、PPMS の優れた温度制御機能を活かしつつ、ユーザーが独自に構築している既存の測定系を用いた実験が可能となります。センターでは、温度や磁場制御は PPMS の制御ソフトウェアである MultiVu で行いつつ、電気抵抗を外部機器により測定することを行っております。まず、試料の電気抵抗の信号を外部機器で読む必要がありますが、PPMS 本体の上部裏側から出るケーブルを新しく外部機器に合うように作り変える必要があります。PPMS 側のケーブルコネクタの型番は FGG.3B.314.CLAZ であり、ケーブルのもう一端を外部測定機器に合うように変更することになります。また、PPMS 用の制御 PC とは別にもう一台 PC を用意し、この PC により外部機器制御しつつ、PPMS 用の PC と通信して、MultiVu を介して温度磁場制御やそれらの値の読み取りを行っております。実際、QD 社の方でもそのような利用方法が想定されており、外部通信に QDInstrument_Server.exe と呼ばれるソフトウェアが配布されております。これを PPMS 用の制御 PC で動作させ、外部 PC において LabVIEW 等のソフトウェアを用いて、PPMS 用の制御 PC と通信し、温度や磁場の読み込みや制御を行っております。これにより、様々な測定系の構築が可能となります。

D) ピストンシリンダー圧力セルの利用

PPMS においては、圧力セルを用いた圧力下の物性測定も可能となります。これは既にある程度確立しており、活用されている研究者の方も多い状況かと思われます。センターの方で改めて紹介する必要はないかもしれませんが、今回の機会に備忘録として記載させていただきます。

PPMS の低温試料空間は、上下方向約 11 cm 程度にわたって温度が均一となるように設計されており [10]、さらに高い冷却能力および温度調

整機能を有しております。従って、サイズや熱容量が比較的大きくなる圧力セルを冷却するためには適した環境となります。PPMS の試料空間の内径は 26 mm であり [10]、例えばセンターで用いている内径 24 mm のピストンシリンダーセルであれば、無理なく挿入が可能です。実際に圧力セルを PPMS で利用するにあたっては、圧力セルを装着して試料チャンバーへ挿入可能なインサートを作製する場合や、PPMS の試料パック上部に圧力セルを取り付け、通常の試料パックと同様に Puck-Insertion Tool を用いて PPMS へ挿入する場合があります。センターでは後者の方法を採用しておりますが、図 7 に示すように①ピストンシリンダーセルを装着するためのねじを上部に加工した PPMS 試料パック、②ピストンシリンダーセル下部ナットと試料パックをつなぐアダプター、③ピストンシリンダーセル上部ナットに装着する Puck-Insertion Tool でグリップ可能な溝を持つ部品、を作製する必要があります。配線が下部ナットの底面から出るピストンシリンダーセルの場合は、配線が側面から出るようなスリットを持った下部ナットを新しく作製する必要があります。このような加工は、既に圧力セルを取り扱ういくつかの業

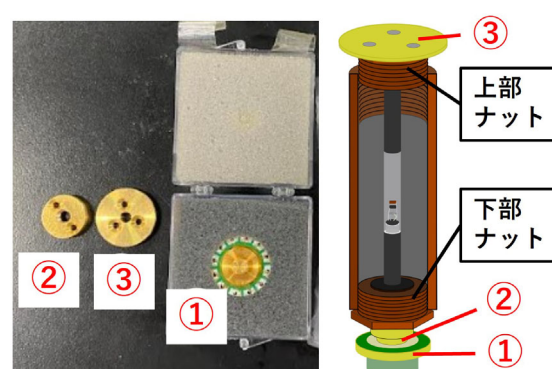


図 7. PPMS で用いるピストンシリンダー圧力セルに必要な部品と組立後の概略図。①ねじを上部に加工した PPMS 試料パック、②ピストンシリンダーセル下部ナットと試料パックをつなぐアダプター、③Puck-Insertion Tool でグリップ可能な溝を持つ部品。

者が実績を持っており、PPMS の試料パックと使用予定の圧力セルの情報を業者に提供し、加工を依頼しております。実際に測定を実施すると、PPMS 内蔵の温度計と、ピストンシリンダーセルに取り付けた温度計とで温度の差がほとんど出でおらず、試料の温度調節が通常の PPMS の利用時と同様に問題なく行えることが確認できております。

4. まとめ

本技術ノートでは、当センターで運用している MPMS・PPMS の保守管理や使用に関する様々な工夫を説明してきました。これらの商用装置は使いやすく便利であり、今後ますます普及していくと思われます。本記事でご紹介した装置のメンテナンス手法や利用方法が装置管理者やユーザーの皆様のご参考になれば幸いです。

謝辞

インピーダンス閉塞対策の方法は、当センターの木村憲彰氏が行った改良を参考にさせていただきました。また、PPMS における圧力セルの利用について、理学研究科物理学専攻の青山拓也氏から有益なご意見を頂きました。ここに感謝を申し上げます。

参考文献

- [1] 壁谷 典幸, 東北大学 極低温センターだより No.19 (平成 30 年 11 月) 技術ノート: ヘリウムガス吹き出し防止弁の試作と評価。
- [2] コクゴ社製クラウン真空エコホースを使用。耐寒ホースであれば大丈夫ですが、PVC 材質のブレードホースは低温で割れることがあるため不可。
- [3] なまし銅管 (外径 $\phi 12 \times t1.2\text{mm}$) を 5 m ほどコイル状に巻き、山研工業社製ラウンドペール (容量 16L) に水を入れて沈め、熱交換機として使用。
- [4] 保圧弁の両端は NPT ねじのため、NPT-PT 変換ソケットをつけることで一般的な管用ねじ配管に固定できます。また、同等の保圧能力を持つ PT ねじ付き保圧弁 (CVF02-02A、PISCO) も入手可能。
- [5] Quantum Design, MPMS Application Note 1014-210.
- [6] 分解・組み立ての際には、次の資料を参照して下さい: Quantum Design, MPMS Service Note 1014-602.
- [7] Quantum Design, Service Note 1070-315.
- [8] 野島 勉, 東北大学 極低温センターだより No.14 (平成 25 年 10 月) 技術ノート: 液体ヘリウムへの水素混入とその対策。
- [9] 多くのリリース弁は解放圧力よりも再封止圧力の方が低い、いわゆるヒステリシス的な動作をします。
- [10] Quantum Design, Physical Property Measurement System, Hardware Manual.
- [11] Quantum Design, Application Note 1070-210.