令和 5 年度高エネルギー加速器研究機構技術研究会、2024 年 3 月 7～8 日
https://www2.kek.jp/engineer/tsukuba/giken/2023/

液体ヘリウム容器予冷の一例

宗本久弥#
琉球大学 総合技術部（研究基盤統括センター 極低温施設）

概要

内槽の温まった液体ヘリウム容器（> 77 K）は、適切に冷却しなければ使用できない。最近予冷した容器について冷却過程のデータを紹介し、過去の経験も踏まえて考察する。

1. はじめに

液体ヘリウム（-269 ℃、4 K）の容器は、空気混入など問題があると一旦昇温する必要がある。うっかり液を涸らし、昇温してしまうこともある。そんな容器は予冷しないと、液体ヘリウムを入れてもすぐ蒸発してしまい、使用できない。

どう予冷するかは時折話題に上り、例えば分子研の高山氏は 3 通りを比較し発表されている[1]。私も予冷のデータを取って比較してみたいと思っていたが、当施設では容器の昇温が滅多にないため、予冷することもほとんどない。この度 OIST の温まった容器を預かり[2]、久しぶりに予冷の機会を得たので、そのデータを紹介する。

持ち込まれたのは 100 L アルミ容器、Cryotherm 社 Stratos100SL-J である。当施設の主力や分子研と同型容器のため、比較するのにも都合よかった。（図 1）

図 1. 左:予冷した OIST 容器 右:当施設同型容器

2. 液体窒素による予冷

データ取得を目的とし、予冷には液体窒素（-196 ℃、77 K）を選択した。

液体窒素による予冷は一般に、予冷完了時に容器やクライオスタットから液を排出せねばならず、手間が増えるばかりか、排出しきれないミスもよく見聞きする。今回はそれらを避けて予冷完了時に液がちょうど涸れるよう狙い、充填量を控えめの 10 L とした。液体窒素の有無を目視で確認するため、容器のヘッドはあらかじめ外しておいた（図 2）。開口部は仮蓋で着霜を防ぎ、内槽を覗く際は空気の流入で霧が生じないように注意した。

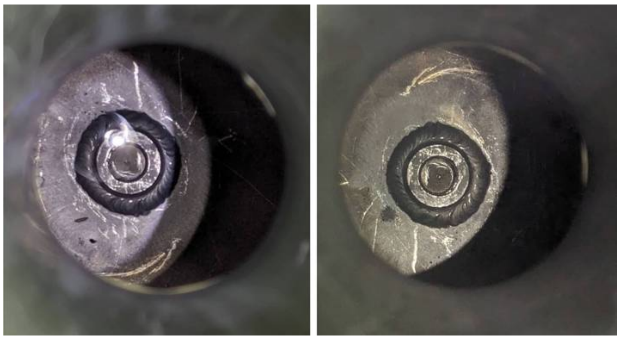

図 2. 液体窒素を目視確認 左:あり、右:なし

また、秤で計量して液体窒素の減り具合も記録した（図 3）。一晩かけるつもりで始めたが、夜中に涸れる見込みとなり、夕刻やむなく液を補充している。涸れた際の質量（のリットル換算）はゼロでなく、密度の大きな冷たい窒素ガスが計量されている。

結果としてこの容器の予冷は、液体窒素が 6 L と、所要時間は 4 時間で充分とわかった。

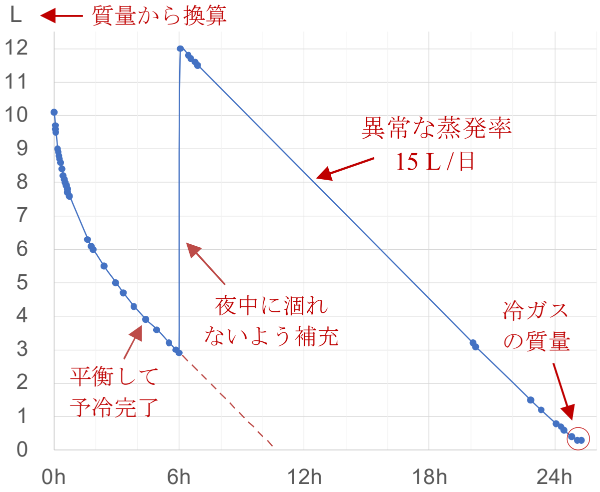

図 3. 予冷用液体窒素の消耗

なお、今回は内槽が熱伝導のよいアルミ製なので、底部の僅かな液体窒素でも全体を冷やせると考えている。未検証だが SUS 容器だとこの方法は恐らく不適切で、Cryofab 社は filling the container at least halfway with liquid nitrogen と指示している[3]。また内部に器材を抱えたクライオスタットでは無効だろう。

hisa@eve.u-ryukyu.ac.jp

3. 液体ヘリウム充填

続いて、予冷できた容器に以下の作業をした。

① 容器のヘッドを元に戻す
② 貯槽からの液体ヘリウム移送管を挿入
③ 真空ポンプで内槽の窒素ガスを排気（< 1 Pa）
④ 真空ポンプを切り離す
⑤ 移送管の弁を開き内槽にヘリウムガスを導入
⑥ 内槽が大気圧になったらガス回収ラインを開通
⑦ そのまま液体ヘリウムを充填
⑧ 液が少量貯まった頃合いで充填終了して放置
⑨ 後日満タンまで再充填し、OIST が引き取り[2]

予冷したとはいえまだ 77 K なので、ゆっくり充填した（弁の開度や送受の圧力を調整）。第 7 章の理由により、敢えてすぐ満タンにはしていない。

OIST 容器は液面計が付いていないため、貯槽の液を 46 L 消費した時点(35 分経過)で打ち切ってみた。すると容器には 18 L 貯まっており、その 7 時間後には蒸発率が平常の 1.2 L / 日に落ち着き、液は 16 L 残っていった（図 4）。当設備は通常 16 L 貯めるのに 21 L 消費する計算なので、77 K → 4 K の完全冷却に

$$46\ \mathrm{L} - 21\ \mathrm{L} = 25\ \mathrm{L}$$

を費やしたことになる。

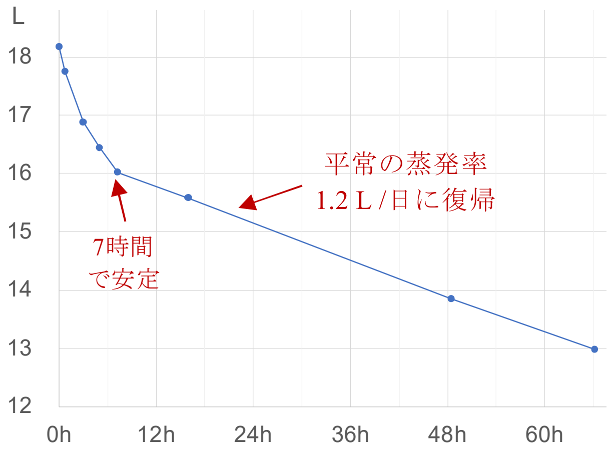

図 4. 初期充填液体ヘリウムの消耗

4. 断熱不良?

4.1 蒸発率

この容器の液体ヘリウム蒸発率は問題ないが、予冷時の液体窒素蒸発率は 15 L / 日と異常に高かった（図 2)。これは液体窒素容器だと使い物にならない悪さである。現行品マニュアルは不明だが、古い紙マニュアルには、液体窒素は満タンの 15 %までとし二日後に残液を排出するよう書かれていた。現状そのとおりには実行できないが、予冷期間が短縮されるのは助かる。

4.2 低真空

液体窒素の蒸発が多いのは真空断熱層の圧力が高いせいで（低真空）、図 5 のように外槽表面が少し冷えている。しかし液体ヘリウムを充填すると内槽壁真空面に設けられた吸着剤がクライオソープションポンプとして働き、圧力は劇的に低下する（高真空)。したがって、もし液体窒素予冷で外槽が冷えても、断熱不良で使えないと判断するのは早計である。

図 5. 外槽温度　左：液体窒素予冷中の容器 18℃
右：液体ヘリウムで運用中の同型容器 28℃

低真空の原因として FRP のヘリウム透過も考えられるが、SUS 容器でも低真空だった経験があるので、工場出荷時からとも思われる。排気には時間がかかるため、どうせクライオソープションポンプが効くのだからと、工場での時短を想像していた。

4.3 熱スイッチ

しかし今回ふと、これは意図的に低真空にしているのではないかと思った。（6.3 節参照）

二重ガラスデュワー（大小二つのデュワーを入れ籠にしたもの）で予冷のため内デュワーを低真空にしておくことがある。外デュワーに液体窒素を注ぐと内デュワーは断熱不良で中が予冷され、次いで内デュワーに液体ヘリウムを注ぐと今度はクライオポンプで真空断熱はよくなる。一種の熱スイッチであり、媒体は熱交換ガス又は単に交換ガスともいう。

5. 断熱に必要なこと

5.1 放射と反射

よく真空断熱というが、高真空で防げるのは気体の熱伝導と対流だけで、断熱のためには熱放射も防がなければならない。例えば地球は宇宙空間で真空断熱されているが、太陽の熱は光（主に可視光線）で届いている。放射温度計や図 5 のサーモグラフィーは物体から放射される赤外線を捉えている。

放射は鏡で跳ね返すことができ、また物体表面に光沢があると放射が減る。ガラスの魔法瓶に銀メッキを施すのはそのためである。（実験用のガラスデュワーは内部観察用に未メッキのスリットを設けるが、断熱を犠牲にした無メッキ品もある）

反射率 ＋ 透過率 ＋ 吸収率 ＝1
放射率 ＝ 吸収率

5.2 遮蔽（シールド）

放射エネルギーは絶対温度 T の 4 乗に比例するため（シュテファン-ボルツマンの法則）、周囲温度 T_1 より低温の物体 T_2 で断熱対象 T_3 を遮蔽することも有効である（$T_1 > T_2 > T_3$）。例えば NMR 装置や輸入用のヘリウムコンテナ[4]、二重ガラスデュワーなどは液体窒素シールドになっている。周囲温度 300 K、液体窒素 77 K として、放射率の違いを無視すれば、放射エネルギーは

$$77^4 / 300^4 \quad 1 / 230$$

に減る。（その代わり液体窒素も減る）

6. 液体ヘリウム容器の構造

6.1 ガスシールド（?）

現代の液体ヘリウム容器（50～数千 L 程度）は放射シールドが液体窒素でなく、**自己蒸気冷却多層シールド**（通称ガスシールド）である。（図 6）

断熱性能は液体窒素シールドに及ばないが、断然扱いやすい（液体窒素補充の手間、重量、外形に対する内容積など）。液体ヘリウムを長期間貯えておくことは目的でなく、使用量に比べれば蒸発量はずっと少ないので、あまり問題にならない。

しかしガスではシールドしていないのに、この通称は紛らわしい。（初期の容器は正に「ガスシールド」だった、10 章参照）

6.2 ネック（首管）で熱交換

液体窒素容器の真空多層断熱[5][6]（通称スーパーインシュレーション[7][8]）は MLI（Multilayer Insulation: 多層断熱材）で内槽を包んでいるだけだが[9]、液体ヘリウム容器の MLI はアルミ箔がネックに繋がれ、蒸発してきた冷たいガス（ヘリウム蒸気）と熱交換する[10]。ガスは温まりながらネックを上って容器外へ排出され、MLI は冷やされて遮蔽効果が高まる。また、ネック自体の熱伝導による上部からの熱侵入にも抗している。こうしてガスの顕熱が無駄なく利用され、断熱性能を向上している。

6.3 予冷で冷やすもの

容器の予冷では、寒剤が直接触れる内槽壁だけでなく、上記 MLI も冷やす必要がある。

これを促進するため、意図的に断熱層を低真空（断熱不良）にしているのではないかと考えた。しかし容器について、そんな説明は見聞きしたことない。高真空の容器と予冷能率を比較してみたいところである。（高真空ならマニュアルどおり二日かかるのか?）

6.4 寒剤と材料の性質

両寒剤には表 1 の性質があり、この違いが各々の容器構造にも反映されている。

図 6. 液体ヘリウム容器カットモデル[11]

また容器材料（金属等）の比熱は温度に依存し、低温（77 K 以下）では常温（300 K）より 2～3 桁も小さくなり、液体ヘリウムでも冷やしやすい。比熱の大きな範囲を液体窒素で予冷しておくことは、理に適っている。（もしこの現象が逆で、材料の比熱が常温で小さく、低温で大きかったりしたら、液体窒素予冷はあまり意味がないであろう）

さらに液体ヘリウムで運用中の容器は、ネック上部ほど温かく材料の比熱が大きいので、常温との差が小さくなったガスから最後の寒冷を絞り取るのにも有効に思われる（想像なので確信はない）。

なお容器材料と異なり、ヘリウムの比熱は 10 K 以上でほぼ一定（定圧モル熱容量 C_P ≒ 21 J mol^{-1} K^{-1}）である。但し 10 K→300 K で 30 倍に膨張するので、単位体積当りの熱容量はその分減少する。

7. 液体ヘリウムの初期充填量

3 章で述べたように、液体窒素予冷直後は液体ヘリウムをすぐ満タンにせず少量の充填にとどめた。その理由は、やはり顕熱利用にある。

表 1. 寒剤の性質（NIST Chemistry WebBook[12]よりデータ作成、L_{liq} は液 1L 分の物質量）

（1 気圧）	沸点 K	蒸発潜熱 kJ / L_{liq}	顕熱$_{沸点→300K}$ kJ / L_{liq}	特徴
ヘリウム	4.2	2.56	192	液は僅かな熱で蒸発してしまう　蒸気の寒冷利用が肝要
窒素	77.4	161	189	液が蒸発するとき熱をたくさん吸収して対象物を冷やせる

4 K まで冷えていない容器でも満タンにはできるが、液は内壁で膜沸騰していると思われる（ライデンフロスト効果で断熱されて液が貯まると想像しているが、容器内は観察困難で、内壁温度を測ったこともなく、定かでない）。その際液が満タンだと、内槽全面で沸騰が起こるため蒸発が多く（蒸発量は液量と比例に近い関係があると推測）、また蒸発したガスは内槽に留まるスペースがないので冷たいまま外へ出ていってしまう。

回収ラインで霜や液空を作っても無駄なので、ガスの顕熱は容器冷却に活用したい。そこで蒸発量を減らし、冷ガスを内槽に貯えるべく、液の充填量を少なめにしている。その結果、完全に冷えるまでに蒸発したのは

18 L – 16 L　2 L

で済んだ。

とは言え 3 章のとおり、18 L 貯まるまでに貯槽の液を 46 L 消費しているので、液が貯まり始めるまでには 20 L 余り蒸発している。

8. 他の予冷方法との比較

8.1 液体窒素予冷（液体ヘリウム即満タン）

図 7 の分子研データ[1]は幸い本件と同型容器で、方法①と方法②-3 が本件と同じ 77 K の予冷である。しかし予冷後すぐ満タンにしているところが異なり、**冷却完了までに 15 L 蒸発**している。個体差などあるかもしれないが、本件では 2 L と圧倒的に少ないので、顕熱利用は効果あったと考える。

但し予冷時間は、方法①液体窒素予冷が 0.5 日、方法②-3 冷ガス予冷が 1 日ということである。各社の容器マニュアルを見ると、どれも液体窒素予冷は 1～2 日放置するよう書かれている。断熱層は毎回高真空に排気しているそうなので、もし予冷時間がさらに長ければ、液体ヘリウムの蒸発量（15 L）がもっと少なかった可能性も考えられる。

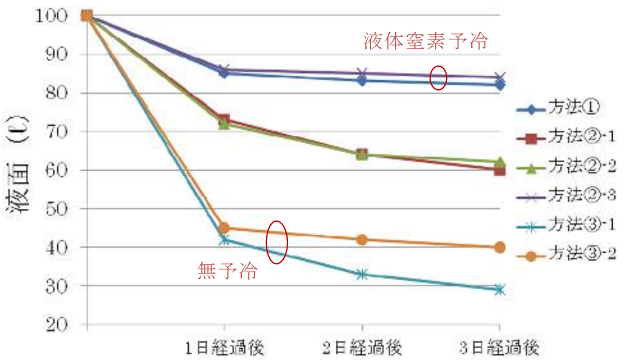

図 7. 分子研高山氏の初期充填蒸発データ

8.2 無予冷

図 7 の方法③-1、方法③-2 は予冷なしだが、私も昔 SUS 容器でいきなり液体ヘリウムを満タンにしたことがある。分子研と同様、やはり半分蒸発してしまった。容器の不良を疑った記憶はあるが、示せる記録はない。しかし実は、そのときの観察から 7 章の初期充填量を考察している。

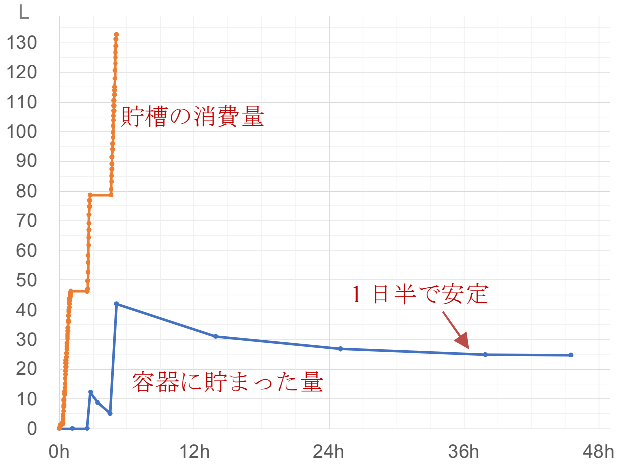

図 8.液体ヘリウム予冷

8.3 液体ヘリウム予冷

常温容器でも液体ヘリウムの初期充填量を抑えれば、液体ヘリウム自体で 4 K まで予冷できないかやってみたこともある。その記録があったので図 8 に示す。（本件と同型容器だが、断熱層が低真空か不明）

当然だが 77 K の予冷済み容器より更にゆっくり充填する必要があり、液が貯まり始めるまで 2 時間半、また途中で液が涸れそうになり補充して、**冷却完了までに 1 日半**かかった。貯槽の液を計 133 L 使って容器に 25 L 貯まったが、25 L 貯めるには通常 33 L 消費するので、300 K→4.2 K の**冷却に 100 L** 費やしている。無予冷（150 L 程度か? 分子研の表[1]参照）よりは少なそうだが、半減には到らない。

8.4 液体窒素予冷（液体ヘリウム初期充填量少）

本件を整理すると、液体窒素予冷に 4 時間、液体ヘリウム充填に 35 分、液体ヘリウムの蒸発が落ち着くまでに 7 時間だったので、液体窒素の充填や窒素ガスの排気など含めても、仮に連続してスムーズに作業できていたとすれば、**計 12 時間で冷却完了**と考えられる。また**冷却に消費した液体窒素は 6 L、液体ヘリウムは 25 L** と少量で済んでいる。

分子研とは条件が異なるため、残念ながら液体窒素や液体ヘリウムの消費量は単純に比較できない。

8.5 ヘリウム冷ガス予冷

他の容器の液充填で排出されるガスを常温容器へ導入する等の方法もあるが、予冷用具を工夫しなければならず、手軽でない。実施例を知らないため、比較ができない。

9. 問題点

予冷は手間と時間が問題になる。

- 通常の液体窒素予冷は液の完全排出が問題となる一方、本件では涸れるのを待ちタイミングを逃さないことが必要。また本件はアルミ容器でうまくいったが、SUS 容器では未検証。
- 液体ヘリウムの初期充填を少量にとどめるには、容器に液面計があるか、秤に載せて充填できればよいが、さもなくば充填停止が勘頼りになり、入

れ過ぎや不足再充填が生じえる。(当施設の容器は全て超伝導式か差圧式の液面計を備えている)
- 液体ヘリウムの初期充填をゆっくりすると、設備を長時間占有して支障をきたすことがある。
- 図 7 分子研の方法①や方法②-3 なら残液が 85 L もあり、そのまま利用者へ供給も可能だが、本件では冷却完了後に再度充填しなければならない。

予冷するメリットは液体ヘリウムの節約にある。しかし、作業効率も重要であり、液化室では液化能力や電気代、人件費との相談になってくる。状況によりベストな方法は異なる。

しかし、ヘリウムを回収できない/しにくい環境のクライオスタット等では、ヘリウムが高騰し入手難も度々の昨今、「ヘリウムの一滴は血の一滴」[13]が再来し、液体窒素予冷は必須であろう。

10. 初期の液体ヘリウム容器

ちなみにオリジナル「石油の一滴は血の一滴に値する」は第一次世界大戦で 1917 年に仏クレマンソー首相が米大統領に支援を求めた電文[14]に由来するといい (仏軍フォッシュ元帥の言葉と伝える文献[15]もある)、後に日本でも「ガソリンの～」と戦時標語となった。

戦後の発展中、今度は「ヘリウムの～」と振られたが (日本のヘリウム液化機導入は 1952 年[16])、当時を想像する参考に、6.1 節で触れた液体窒素シールド容器と本来のガスシールド容器 (内槽の周囲にガスを流していた) をそれぞれ図 9、図 10 に示す。

11. まとめ

液体ヘリウム容器の液体窒素予冷を実施し、一例ではあるがデータを取得した。また液体ヘリウム予冷も過去の記録を見つけて提示した。容器の特性を想像も雑えて考察し、先学の予冷データとも比較し、メリットとデメリットを手間や液の消費量、入手性などから多面的に検討した。

本件手法が、予冷に手間をかけても液体ヘリウムを節約したい場合の参考になれば、幸いである。

最後に、予冷の機会をいただいた OIST 高田一馬氏、資料や助言をいただいた分子研 高山敬史氏、東大物性研 鷺山玲子氏、千葉大学 吉本佐紀氏に感謝する。

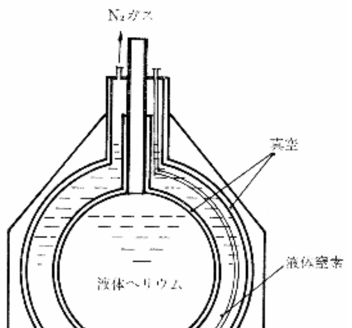

図 9. 液体窒素シールド容器[17]

参考文献 url は 2024 年 2 月 29 日現在

[1] 高山敬史「液体ヘリウム容器の予冷検証実験」分子科学研究所技術課報告 2014 第 30 号 P51 https://tech.ims.ac.jp/kanae
[2] 琉球大学 ヘリウム受託液化 https://www.ltc.u-ryukyu.ac.jp/helium_recycle/
[3] Cryofab CMSH Series Instructions https://cryofab.com/manuals/Cryofab-CMSH-series-instructions/
[4] 大陽日酸 (株) 11,000 ガロンヘリウムコンテナ https://www.tn-sanso.co.jp/Portals/0/uploads/products/product_heliumcontainer.pdf
[5] 大森隆夫「多層断熱技術 I」低温工学 2016 https://doi.org/10.2221/jcsj.51.248
[6] 上岡泰晴「多層断熱技術Ⅲ」低温工学 2016 https://doi.org/10.2221/jcsj.51.376
[7] 中川洋「スーパーインシュレーション」低温工学 1967 https://doi.org/10.2221/jcsj.2.4_1
[8] 石井寿一「スーパーインシュレーション」真空 1970 https://doi.org/10.3131/jvsj.13.318
[9] 千葉大学「液体窒素容器の切断」 http://physics.s.chiba-u.ac.jp/cryo2/vessel_cut2.html
[10] 千葉大学「液体ヘリウム容器の切断」 http://physics.s.chiba-u.ac.jp/cryo2/vessel_cut.html
[11] 東大物性研 液体ヘリウム容器のカットモデル https://www.issp.u-tokyo.ac.jp/labs/cryogenic/gallery/youki.html
[12] NIST Chemistry WebBook - SRD 69 Thermophysical Properties of Fluid Systems https://webbook.nist.gov/chemistry/fluid/
[13] 田島節子「ヘリウムリサイクル文化の定着に向けて」低温工学 2021 https://doi.org/10.2221/jcsj.56.117
[14] 江坂徳藏「我が國液體燃料の將來」燃料協会誌 1924 https://doi.org/10.3775/jie.3.415
[15] 渡邊扶「石炭乾餾工業と燃料問題」燃料協会誌 1931 https://doi.org/10.3775/jie.10.590
[16] 野島勉「東北大学片平地区における極低温の研究」伝熱 2022 https://www.clts.tohoku.ac.jp/files/hito_to_netsu_9.pdf
[17] 田中聖三「液体ヘリウムの輸送」低温工学 1977 https://doi.org/10.2221/jcsj.12.196
[18] 米満博夫「極低温技術」真空 1963 https://doi.org/10.3131/jvsj.6.301

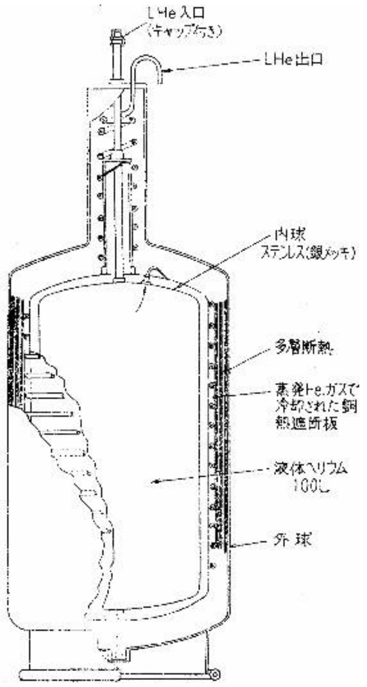

図 10. (本来の) ガスシールド容器[18]