

## 超低温の生成と測定

益 田 義 賀\*

How to Reach the Ultralow Temperature and How to Measure it.

Yoshika Masuda

Low temperature physicists are making a constant effort to extend the temperature range necessitated in the experimental researches closer and closer toward the absolute zero. These extinctions of the temperature range toward the ultralow temperature always accompanied with the new and fundamentally important discoveries. Three methods for cooling to the ultralow temperature region are the  $^3\text{He}/^4\text{He}$  dilution refrigeration, Pomeranchuk cooling and adiabatic nuclear demagnetization. The experimental investigations lie in this important unexplored territory are hopeful and interesting.

## 1. 超低温とは

低温物理学の歴史を振り返ってみると、それは絶対零度に肉薄しようとする、あくなき努力の積み重ねであるといえる。その進歩は、たんに温度領域の開拓、拡張をもたらすだけではなく、知識の未知の宝庫の開拓へつながっている。Kamerlingh Onnes が気体ヘリウムの液化に成功したのは、1908 年のことである。これによって、いわゆるヘリウム温度 (1-4 K) における物性測定が可能になり、その最初の成果が、1911 年の超伝導の発見として花開く。それ以後、1957 年に Bardeen, Cooper, Schrieffer が決定的な理論を発表するまでの 50 年間、超伝導の研究は、物性物理の分野だけではなく、物理学全般における基本的な重要問題として研究の中心であった。最近の例では Pomeranchuk 法の成功によって 1 mK 近傍の実験研究が可能となり、これが 1972 年の液体  $^3\text{He}$  の超流動の発見につながった。さらに、固体  $^3\text{He}$  の核スピン系の秩序化が  $1 \mu\text{K}$  というような低温ではなく、はるかに高温の  $1.1 \text{ mK}$  で起こることを確認することができた。固体  $^3\text{He}$  が正常固体であれば、核スピンの秩序化の温度は、核磁気モーメント間の双極子相互作用できまるから、Pomeranchuk のように、 $1 \mu\text{K}$  の程度になるはずである。実験結果は、固体  $^3\text{He}$  が量子固体であって零点運動が大きいために、核スピン間には、双

極子相互作用の 1000 倍も強い交換相互作用が働いていることを示している。このように、低温へ、その温度領域を拡張することは、たんに最低到達温度の記録を更新することだけではない。それは低温開拓と、それによる新現象の発見の連鎖とみなすことができる。いま、低温開拓の最先端は、 $1 \text{ mK}$  から  $100 \mu\text{K}$  の温度領域に達しようとしている。この領域の開拓には、量子論的物性物理の成果が用いられる。したがって、この温度領域の開発そのものが、量子論的物性物理の成功の一つなのである。

Kamerlingh Onnes がヘリウム液化に成功した 1908 年は、量子論的現象である超伝導の発見を導き、新しい低温物理の出発点となったという意味で“低温元年”といえる。それ以後の低温開拓の年代史を図 1 (a) に示す。図は、低温生成の新しいイベントの起った年代と、到達した温度の関係を示しているが、曲線の傾斜から明らかなように、温度を 1 けた下げるのに、ほぼ 20 年を要している<sup>1)</sup>。しかし、この 10 年間で到達温度は曲線より急速にずれ始め、最近、いかに低温開拓に精力が傾注されているかを如実に示している。図 1 (b) にそれぞれの冷却法によってカバーされる温度領域と興味ある現象を示す。ここで極低温というのは、ヘリウム温度のことをいう。この呼称は 30 年位まえまで、まだヘリウム液化機が、エリート研究機関のステータス・シンボルであったころの僭称であって、いまや、低温物理学の分野では常温となりつつある領域なのである。眞の低温物理の先兵は、 $100 \mu\text{K}$  の領域にいる。この新しい温度領域を超低温 (Ultra Low Temperature) とよぶ。この領域

\* 名古屋大学理学部物理学教室：〒464 名古屋市千種区不老町

Department of Physics, Nagoya University,  
Chikusa-ku, Nagoya, 464

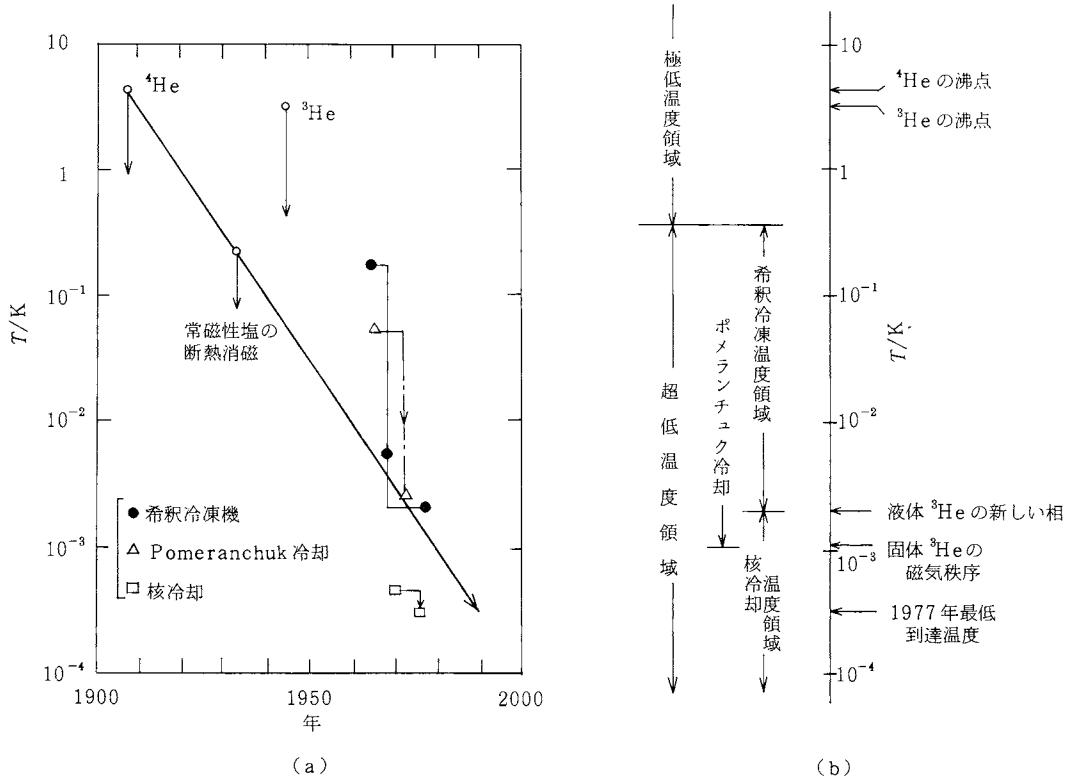


図1 低温の開拓

の開拓と、その領域における物理の研究を目指した第1回国際超低温シンポジウムが、昨秋、箱根で開催された<sup>2)</sup>。“低温70年”はULTの開拓で明けたといってよい。

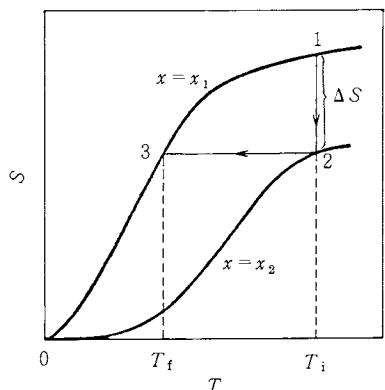
図1の温度は、対数目盛であらわしてある。対数目盛は、過去における低温開拓の歩みの重さと同時に、将来に対する果てしない夢とを明らかに示すものである。この曲線が指し示すように、低温物理が目指す方向は明確なのである。

## 2. 低温生成の意義

低温領域の温度をあらわすには、絶対温度ケルビン(K)単位を用いるのが普通であるが、1mK, 100μKといつても、その数値そのものに重要な意味があるわけではない。温度の本質はミクロな運動の秩序、すなわちエントロピーであるから、低温の生成とは、ミクロな運動を秩序化していくことである。無秩序な運動を順次、秩序化することによって、より低い温度領域が開拓されていく。秩序化の各段階で、新しい目覚しい物理現象が発見され、これがまた、より低温への通行手形になるのである。ある温度  $T_i$  から出発して、より低い温度  $T_f$  を生成する場合、出発温度  $T_i$  におけるミクロな運動が十分に無秩序であるような、すなわち大きなエントロピー

をもつ物質を冷却剤に用いることが必要である。いま、温度以外の例ええば、外部磁場、圧力などのパラメータ  $x$  を変えることによって、エントロピーを自由に制御できるものとする。図2に示すように、エントロピーは温度の低下とともに単調に減少し、 $x$  の値に無関係に、 $T \rightarrow 0$ とともに0に近づいていく。すなわち、熱力学の第3法則が成り立っている。

いま、ある物体が温度  $T$  Kの熱浴と熱平衡にあるとす

図2 低温の生成、 $x$ をパラメータとした場合のエントロピーの温度変化

る。この物体を構成しているミクロな粒子が、無秩序な熱運動をしている場合、エネルギー $E$ の状態が出現する確率は  $\exp(-E/k_B T)$  に比例している。この物体がとりうる独立な状態の数を  $W$  あらわすと、その物体の無秩序の程度をあらわすエントロピーは

$$S = k_B \ln W \quad (1)$$

で与えられる。 $k_B$  はボルツマン定数である。この物体は、 $T \rightarrow 0$  で最低エネルギー状態におちこむが、この状態は、完全秩序の状態として一義的にきまる。すなわち、

$$\lim_{T \rightarrow 0} S = 0. \quad (2)$$

これが、熱力学の第3法則であって、低温物理の基礎となる原理である。低温物理は、この第3法則を実験的に証明するためにあるともいえる。

図2において、予冷段階できる温度  $T_i$  において、パラメータを  $x_1 \rightarrow x_2$  と等温変化させる ( $1 \rightarrow 2$ )。このさいのエントロピーの減少を  $\Delta S$  とし、変化が可逆的であるとすると、発生する熱量  $T_i \Delta S$  を外部に取り去る必要がある。温度を  $T_i$  に一定に保つためには、外部の温度  $T_i$  の熱留(冷媒)と接触させておけばよい。しかも全過程で、外部と熱接触するのは、このときだけである。次に、外部と断熱にして、パラメータ  $x$  を  $x_1$  に戻す ( $2 \rightarrow 3$ )。可逆断熱過程では、エントロピーは一定に保たれるから、この過程で物質それ自身の温度が低下する。このように、エントロピーの値を制御するパラメータ  $x$  の、等温変化と断熱変化との組み合わせによって、物質を冷却することができる。

ある物質について、そのミクロな外部から制御できる運動をすべて秩序化すると、その物質を用いた場合の最低温度に到達する。より低温に達するには、その温度においてなお無秩序な運動が残っている他の物質が必要になる。また、同じ物質でも、いろいろ異なる種類の力学的自由度が存在する場合がある。例えば、常磁性塩中の電子スピンと核スピンに注目すると、核スピン間の相互作用は、電子スピン間の相互作用に比べて、はるかに弱いから、電子スピンの方向の秩序化が終っても、核スピンの方向は完全に無秩序のままである。したがって、まず電子スピン系を、次に核スピン系を断熱消磁することによって、はるかに低温に達することが可能となる。

他の秩序化の例としては、圧力をパラメータとした液体<sup>3</sup>Heの断熱圧縮がある。この固化的過程において、エントロピーは不变であるから、温度は降下することになる。これがPomeranchuk法である。

室温における気体分子の並進運動は無秩序である。この場合のエントロピーを制御するためには、気体の体積を変えればよい。したがって、気体の冷却には、古典的な断熱膨張やJoule-Thomson効果を用いれば足りる。

気体液化により誕生した極低温物理は、この意味で、古典的な出発をしたといえる。液体<sup>4</sup>He、液体<sup>3</sup>Heなどを蒸発させる場合、液面上の蒸気は希薄な古典気体であるから、温度  $T$  における飽和蒸気圧は、蒸発の潜熱を  $L$  であらわすと、 $\exp(-L/k_B T)$  に比例して低温で急に小さくなる。<sup>4</sup>Heでは、1K程度になると蒸気圧が非常に小さくなり、また超流動にもなるので、この温度が蒸発法による到達温度の下限を与える。これに対して、<sup>3</sup>Heは<sup>4</sup>Heに比べて  $L$  の値も小さく、超流動もより低い温度で起こるから、到達温度も低くなり、その下限は0.3K位である。この古典気体を縮退フェルミ気体で置き換えることにより、到達温度の下限を3けた位下げたのが希釈冷凍法である。

低温の生成法を要約すると、次のようになる：

- (1) エントロピーが外部パラメータ(磁場、圧力等)により変化することを利用するもの
  - (i) 常磁性塩の断熱消磁(外部磁場による)
  - (ii) 核冷却
    - (a) 核断熱消磁
      - (イ) 外部磁場による
      - (ロ) 超微細相互作用によって増強された磁場による
      - (ハ) 回転系による
    - (b) <sup>3</sup>Heの断熱圧縮(Pomeranchuk冷却)
  - (2) 縮退フェルミ気体の断熱蒸発によるもの
    - <sup>3</sup>He - <sup>4</sup>He 希釈冷凍による

このようにして、低温の開発が進み、すべての物質中のミクロな運動が完全に秩序化されると、実際上、到達できる最低温度が得られる。この温度の行き先が、絶対温度と等価と考えられる。

### 3. 温 度 测 定

超低温物理においては<sup>5)</sup>、低温生成の技術的困難もさることながら、到達した最低温度を長時間持続するためには、熱の侵入を最小限におさえ、しかも、測定試料を効率よく冷却して、物性の測定を行うという当然の困難がつきまとっている。そのなかでも、温度の決定は最も大切である<sup>6)</sup>。まず、温度計と被測定物質との間の熱平衡の問題がある。熱平衡やそれに達する速さなどに影響を与えるものは、温度計自身の発熱量、温度計の熱伝導率、温度計と被測定物質との界面における熱抵抗、温度計の熱容量などと数え上げれば際限のない位である。しかし、実際の測定においては、まず、温度計としては、高感度で、レスポンスがきわめて早く、その熱容量も小さく、さらに温度測定のための外部よりの入力が小さいことが必要である。

温度の較正を必要としない一次温度計としては、

(1) 热力学の第2法則に基づく温度計

(2) 核整列温度計

(3) メスバウアー効果温度計

(4) 渗透圧温度計

(5)  $^3\text{He}$  の融解圧に基づく温度計

(6) 热雑音温度計

などがある。二次温度計としては、

(1) カーボン抵抗, Ge 抵抗温度計

(2) CMN 磁気温度計

(3) 核の静帯磁率温度計

(4) NMR 温度計(パルス型, 連続波型)

などがある。ここでは、使用が容易な若干の温度計にふれることにする。

比較的高温(0.1~2 K)で用いる簡単な温度計としては、カーボン抵抗(~1 K), Ge 温度計(0.3~0.015 K)などがある。

比較的高温の領域では、常磁性塩がキュリー則に従うのを利用し、帯磁率  $\chi$  を測定することにより温度を求めることができる。例えば、セリウム・マグネシウム硝酸塩( $2\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 3\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 24\text{H}_2\text{O}$ , CMNと略す)は6 mK以上の温度領域でキュリー則に従うことがわかっている。さらに、この温度領域では比熱も比較的小さいので、二次温度計の較正に使うことができる。温度が下がって、相互作用を無視できない領域にはいると、キュリー則からずれが次第に大きくなるから、 $\chi = C/T^*$ として帯磁率から求めた磁気温度  $T^*$  は、絶対温度  $T$  から大きくなれるようになる。この領域では、 $T^*$  をパラメータとして熱力学的温度を、 $T dS = \delta Q$  の関係を用いて定める。この定義式は、 $T = (dS/dT^*)/(\delta Q/\delta T^*)$  の形に書くことができるから、エントロピー、熱量、 $T^*$  の間の関係がわかれれば、 $T$  がきまる。常磁性塩は初期温度  $T_i \approx 1\text{ K}$  では理想的な常磁性体とみなすことができるから、エントロピーの磁場依存性を正確に計算することができる。したがって、磁場の値をいろいろに変えて、断熱消磁後の帯磁率を測定することにより、 $S:T^*$  の関係を求めることができる。他方、 $(\delta Q/\delta T^*)$  は  $T^*$  を尺度とした比熱であるから、測定が可能である。このようにして、 $T^*:T$  の関係が確立すると、最低到達温度近くまで、常磁性塩を磁気温度計として用いることができる。

核スピン間の相互作用は  $0.1\text{ }\mu\text{K}$  程度の大きさであるから、核スピン系は mK 領域では理想的な常磁性体と考えてよく、温度計として使用するのに適している。核帯磁率の値は非常に小さいから、その測定には SQUID(超伝導量子干渉磁束計)か、核磁気共鳴(NMR)の手段を用いる必要がある。

核整列温度計は、 $^{54}\text{Mn}$  や  $^{60}\text{Co}$  などの整列した放射性原子核が  $\gamma$  線を放射して崩壊する場合に、核スピンの最初の整列方向と崩壊の性質に従って、 $\gamma$  線の強度が空間的に異方性をもつことを利用する<sup>5)</sup>。核のゼーマン準位の占有数は温度に依存して変化し、核スピンは分極を起こす。この分極が  $\gamma$  線の角度異方性を生ずる。放射性元素  $^{60}\text{Co}$  は半減期が 5.26 年で、図 3 に示すように崩壊する。図でエネルギー 1.1732, 1.3325 MeV の 2 個の  $\gamma$  線を出すが、その角度異方性は同じである。

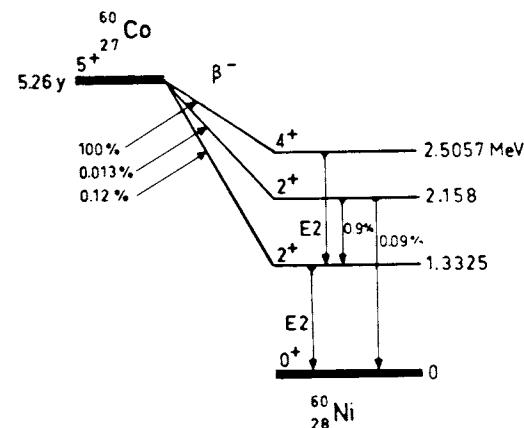


図 3  $^{60}\text{Co}$  の崩壊

3 mK から 30 mK 程度の温度範囲における温度測定を行う場合に、エネルギー準位の占有数に測定可能な差を生じる外部磁場の大きさは、大体 10 T 以上とみてよい。このために、Fe, Ni, Co などの適当な強磁性体の母金属中に放射性核をうめこんで、0.1~1 T 程度の弱い磁場をかけて強磁性体の磁化を飽和させると、超微細相互作用によって、大きさ 10~30 T の内部磁場をうけるようになる。これによって放射性核のエネルギー準位は、ゼーマン分裂を起こす。その有効間隔  $\Delta_{\text{eff}}/k_B$  は  $^{60}\text{Co}$  に対して、Fe, Co, Ni の順序に、7.97, 3.30, 6.23 mK になる。 $^{60}\text{Co}$  の場合の  $\gamma$  線の放射の角度分布を  $k_B T / \Delta_{\text{eff}}$  をパラメータにして示すと図 4 のようである。 $\gamma$  線の角度分布測定は、たんに温度測定のためだけであれば、温度によって強度が一番変化する方向、例えば  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  の場合には  $\theta = 0$  の方向に計数管を 1 本おくだけで十分である。2~30 mK の温度範囲で有効な温度計の一つである。

NMR 温度計は、mK 領域で主役的役割を果たすと思われる二次温度計である<sup>6)</sup>。例えば、銅の核断熱消磁のさい、その一部の銅核の核磁化を温度測定のための変数として用い、その自由歳差を観測して、温度を測定する。温度計となる核は、定磁場  $H_0$  中におかれ。この磁場の方向と直角に、共鳴振動数  $\omega$  をもつ高周波パルスをか

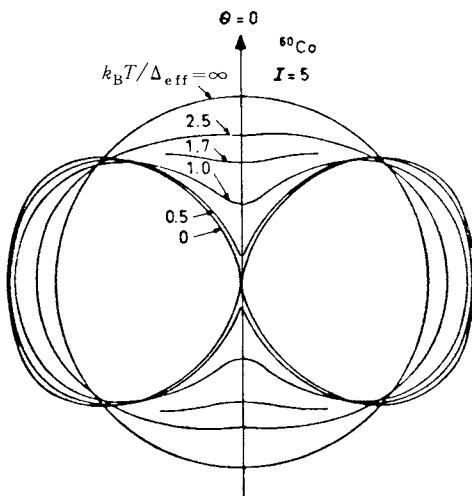


図4  $^{60}\text{Co}$  の  $\gamma$  線の角度分布  
パラメータは  $k_B T / \Delta_{\text{eff}}$

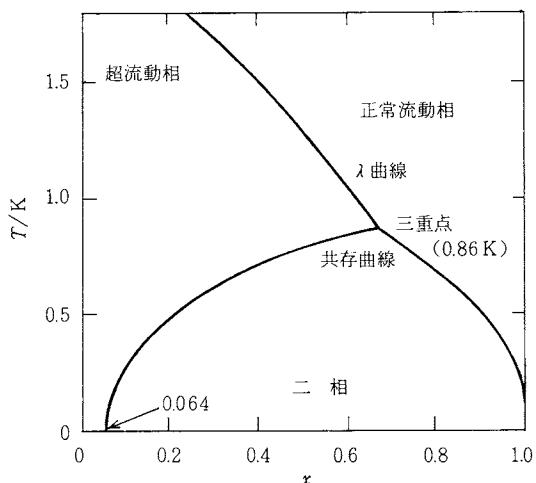


図5  $^3\text{He}-^4\text{He}$  混合体の相図  
 $x$  は  $^3\text{He}$  濃度,  $x = n_3 / (n_3 + n_4)$

ける。このパルスのために、磁化は磁場の方向から角度  $\theta$  だけ回転する。パルスが切れた後は、磁化ベクトルは、 $\omega = \gamma H_0$  の共鳴振動数をもって  $H_0$  のまわりを歳差運動を始める。核磁化は格子と相互作用して、核スピン・格子緩和時間  $\tau_1$  をもって平衡状態へ戻る。そのさい、 $H_0$  と直角の方向におかれた受信コイルに、磁化の回転成分 ( $M_x^2 + M_y^2$ ) $^{1/2}$  と関係した大きさの信号が誘起される。この誘起電圧の初期振幅の大きさが温度に逆比例する。この信号は、スピン・スピン緩和時間  $\tau_2$  をもって減衰する。誘起された信号は、パルスをかけたのちの核磁化に比例しているから、パルスによる発熱の影響はない。また、銅の共鳴だけを観測しているので、不純物の影響を直接うけない。さらに、観測量は核磁化に直接比例するから、温度較正も 1 点だけですむ、核整列温度計で較正するのが普通である。Pt を用いた温度計も広く用いられている。連続波を用いた NMR も温度測定に用いることができる。

#### 4. $^3\text{He}-^4\text{He}$ 希釈冷凍

古典的に考えると、液体  $^3\text{He}$  と液体  $^4\text{He}$  は任意の濃度で混じり合って、理想的な溶液をつくるはずである。この事情は、三重点 (0.86 K) よりも高温においては成り立っているが、0.86 K 以下の温度領域においては、 $^3\text{He}$  を殆んど 100% 近く含む  $^3\text{He}$  濃厚相と、 $^3\text{He}$  を数% しか含まない希薄相の 2 相に分離する。 $^3\text{He}-^4\text{He}$  混合液の相図を図 5 に示す。ここで重要なことは、希薄相における  $^3\text{He}$  濃度が 0 にはならないで、有限値 6.4% にとどまっていることである。古典的な気体の蒸気圧は、すでに述べたように、温度の低下とともに指数関数的に減少し、これが断熱蒸発による冷却法の到達温度の限界をきめる。

いま、ここで考えている 2 相分離した系においては、希薄相中の  $^3\text{He}$  は、現在到達している温度領域ではフェルミ気体であって、絶対零度においても零点運動による有限の大きさの圧力をもっている。 $^3\text{He}$  濃度 6.4% の場合には、フェルミ温度  $T_F = 0.38\text{ K}$  であって、零点圧力は 2 kPa である。希薄相中の  $^3\text{He}$  がフェルミ気体であるのに對して、濃厚相はほぼ純粋な液体  $^3\text{He}$  と考えられるから、2 相分離した系は、恰も液体  $^3\text{He}$  とその飽和蒸気の系のように振る舞うと考えてよい。したがって、この方法は古典的な断熱蒸発法をフェルミ気体に適用したことになる。

断熱蒸発冷却に対応する冷却を行うためには、 $^3\text{He}$  を濃厚相から相分離面を通して希薄相へ溶けこませなければならない。このためには、(i) 希薄相の  $^3\text{He}$  を真空ポンプで外部に取り去る方法と、逆に(ii) 外部から  $^4\text{He}$  を注入して、 $^3\text{He}$  に対して真空の役割を果している  $^4\text{He}$  を増加して真空度を上げる方法がある。現在、実用化されているのは、(i) の方式であって、さらに実際には、希薄相へ蒸発した  $^3\text{He}$  を分留して濃厚相へ戻すことによって、連続運転が可能となっている。この系統図を図 6 に示す。

希釈冷凍機の主要部は分留室、混合室、熱交換器から構成されている。分留室から蒸発してきた濃厚  $^3\text{He}$  ガスは室温にあるポンプ系によって排気圧縮され、液体  $^4\text{He}$  によって、ほぼ 1 K に冷却され、コンデンサーで液化される。この  $^3\text{He}$  濃厚液はインピーダンスを通過する間に圧力を失い分留室で 0.6 K まで予冷され、熱交換器で排出側の  $^3\text{He}$  希薄溶液と熱交換した後、混合室に送られる。 $^3\text{He}$  は上部の濃厚相から一定の割合で、一定の圧力をも

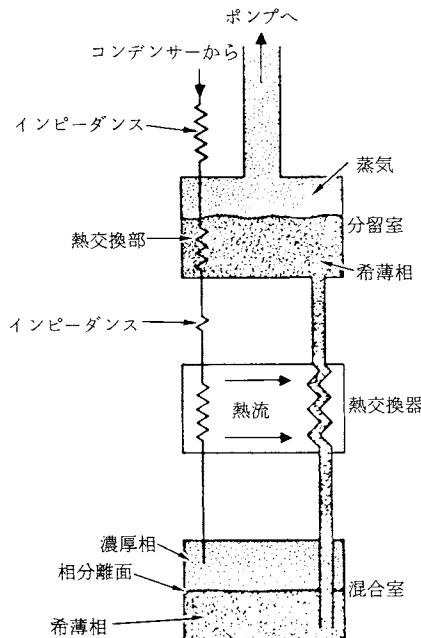


図 6 希釀冷凍機の原理図 普通の段階型では熱交換器を4段ほど用いる

って超流動性を示す希薄相へ溶けこんでいって、温度低下を起こす。

希釀冷凍機では、 $^3\text{He}$  濃厚溶液と希薄溶液との間の熱交換の過程がとくに重要である。液体がたがいに混じり合わぬように、固体の隔壁で分離して間接的に熱交換を行う。この場合、液体と固体との間の熱抵抗、いわゆるカピツア抵抗が問題になる。この抵抗は、密度の違いが大きい物質の間、例えば液体ヘリウムと固体容器との間の熱の界面抵抗であって、熱の担い手であるフォノンの境界面における透過の悪さに由来すると考えられる。このカピツア抵抗は  $T^{-3}$  に比例して増加するので、超低温領域における研究を妨げる困難の一つに数えられる。超低温研究は、この熱交換におけるカピツア抵抗との戦いであったといえる。

熱交換器には、その構造から段階型と連続型の2種類の形式がある。段階型の熱交換器では、その本体を無酸素銅で作り、液体  $^3\text{He}$  の通路となる部分には、金属銅粉を圧縮成型焼結したもの用いる。最近は、銀の微粒子を用いた連続型が流行しだしている<sup>2)</sup>。本来、連続型は、長さ 1 m、外径 1 mm 程度のステンレス管の中に、外径 0.5 mm 程度のステンレス管を通して同軸管とし、内管を  $^3\text{He}$  濃縮流が、内外管の空隙を  $^3\text{He}$  の排気側の流れが通って熱交換を行う形式のものから出発している<sup>7)</sup>。現在、開発されている連続型熱交換器では、CuNi あるいは真鍮板の両面に、厚さ  $t = 1 \sim 2 \text{ mm}$ 、幅  $W = 1.5 \sim 3 \text{ cm}$  に

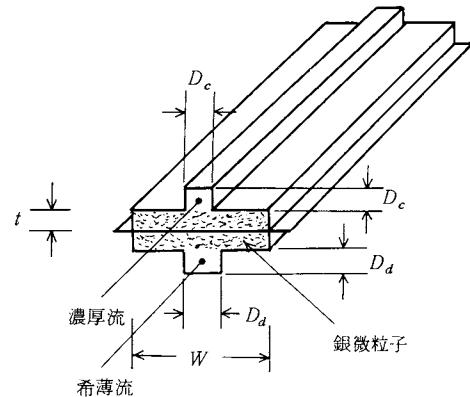


図 7 新しい連続型熱交換器  
銀微粒子を焼結してある<sup>8)</sup>

わたって銀微粒子を焼結し<sup>8)</sup>、図 7 に示すように、両側から 2 個の凸形の金属カバーで焼結板をはさむようとする。それぞれの空隙を  $^3\text{He}$  が通過する間に熱交換を行う。この熱交換器は一つの長さが 25 cm 程度で、これを 6 個、円形に並べて用いる。 $^3\text{He}$  が流れる部分の断面積は、一番小さいもので濃縮  $^3\text{He}$  注入側が  $1.5 \times 1.5 \text{ mm}^2$ 、排気側が  $3 \times 3 \text{ mm}^2$  で、この熱交換器で温度が 20 mK から 8 mK に低下している。この希釀冷凍機は、最低到達温度が 2 mK で、これまで得られた最低記録である<sup>8)</sup>。

混合室の入口における  $^3\text{He}$  の温度を  $T_c$ 、混合室の温度を  $T_M$  であらわして、混合室におけるエンタルピーを考える。熱の漏洩を  $\dot{Q}$ 、 $^3\text{He}$  の循環速度を  $\dot{n}_3$  であらわすと、平衡状態においては、

$$\begin{aligned}\dot{Q} &= \dot{n}_3 (H_{3D}(T_M) - H_3(T_c)) \\ &= \dot{n}_3 (94.5 T_M^2 - 12.0 T_c^2)\end{aligned}\quad (3)$$

となる。ただし、 $H_{3D}(T_M)$  は混合室内の希薄相にある  $^3\text{He}$  のエンタルピー、 $H_3(T_c)$  は混合室の入口における  $^3\text{He}$  エンタルピーである。 $\dot{Q}=0$  のとき  $T_c/T_M = 2.8$  という一定値になるから、 $T_c$  はできるだけ低い温度にしなければならない。いま、 $^3\text{He}$  の流入を止めると(1ショット型)、冷却力は、混合室の温度の 2 乗と循環速度との積に比例することになる。

$^3\text{He}$  循環式希釀冷凍機は、1951 年に London によって提案され、その後、Das ら<sup>9)</sup>、Neganov ら<sup>10)</sup>、Hall ら<sup>11)</sup>によって開発された。装置の総合報告は Wheatley<sup>12)</sup> のものが詳しい。最近の到達温度は、1 ショット型では Peshkov (1972) の 3 mK、連続運転型では Neganov (1968) の 5.5 mK、前述の銀微粒子焼結型熱交換器を用いた Frossatti ら (1977) の 2 mK である。 $^4\text{He}$  循環式には、Taconis ら (1974) の 12 mK がある。

### 5. Pomeranchuk 冷却

4.で述べた希釈冷凍機では、<sup>3</sup>He がフェルミ粒子であることを利用して断熱蒸発を行い、古典的蒸気に対するそれに比べて、約 3 けた近く温度を下げる事ができた。しかし、冷凍機の動作の基礎になったのは、ボーズ粒子<sup>4</sup>He の特性である超流動性である。これに対して、フェルミ粒子<sup>3</sup>He の特性に基づく冷却法が Pomeranchuk 冷却である。

高温の固体<sup>3</sup>Heにおいては、スピンの方向が無秩序であるために、大きいエントロピーをもっている。その大きさは、核スピンの値が 1/2 であるから、1 原子あたり  $k_B \ln 2$  である。図 8 に示すように、融解曲線上における固体<sup>3</sup>He のエントロピーは、スピンの秩序化の起こる温度  $T_N$  の近傍まで、ほぼこの一定値を保っている。これに対して、液体<sup>3</sup>He のエントロピーは、フェルミ温度以下になるとフェルミ統計のために急に減少し始め、固体のそれより小さくなる。融解曲線上で比較すると、エントロピーの交差は 319 mK で起り、それ以下の温度では、固体の方が大きいエントロピーをもっている。この温度領域においては、液体<sup>3</sup>He を断熱圧縮することによって固化すると、エントロピーは一定に保たれているので、温度が低下することになる。この冷却法を、提案者である素粒子論の Pomeranchuk の名をとって、Pomeranchuk 冷却とよんでいる（1950 年）<sup>14)</sup>。

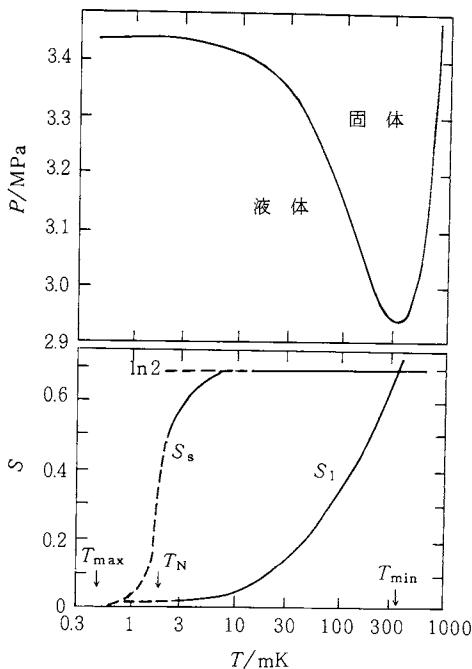


図 8 <sup>3</sup>He の相図とエントロピー曲線

Pomeranchuk 冷却が可能である温度領域では、固相と液相におけるエントロピーの差、 $S_s(T) - S_1(T)$  は正であるから、図 8 に示すように、融解曲線の傾斜  $dP/dT$  は負になっている。したがって、 $P$  は 319 mK で極小値 2.93 MPa をとる。それゆえに、まず Pomeranchuk セル内の液体<sup>3</sup>He を外部圧縮ガスを充てんすることによって  $P$  の極小値近傍まで加圧したのち、例えば 50 mK 位まで外部から予冷し、次に容器を加圧圧縮して固化を行わなければならない。

冷却能力  $\dot{Q}$  は、

$$\dot{Q} = T(S_s - S_1) \dot{n}_s \quad (4)$$

で与えられる。 $\dot{n}_s$  は固体<sup>3</sup>He の量の変化速度である。 $S_s - S_1$  は 6–25 mK の温度範囲で温度に無関係にほぼ一定であるから、 $\dot{Q} \propto T$  と考えてよい。希釈冷凍機では  $\dot{Q} \propto T^2$  であるから、数十 mK 以下の温度領域では、Pomeranchuk 冷却機の方が冷却能力は大きい。動作物質の量が 0.1 モルである場合について、Pomeranchuk 冷却、希釈冷凍、CMN による冷却のそれぞれの冷却能力を示すと、表 1 のようになる。

表 1 0.1 モルの動作物質を用いた場合の冷却能力

温度	Pomeranchuk 冷却	希釈冷凍機	CMN
5 mK	$2.6 \times 10^3 \mu\text{J}$	$2.1 \times 10^2 \mu\text{J}$	$4.2 \times 10^2 \mu\text{J}^*$
25	$1.2 \times 10^4$	$5.2 \times 10^3$	$1.1 \times 10^3 **$

\* は 2 → 5 mK, \*\* は 2 → 25 mK の吸収熱を示す。

Pomeranchuk 冷却法が提案されてから 15 年間も、実験研究が行われなかった理由は、まさつによる発熱を生じないで<sup>3</sup>He の圧縮固化が可能であろうかという懸念からであったと思われる。液体<sup>3</sup>He を等温圧縮固化するのに要する仕事  $\Delta W$  は、 $\Delta W = \Delta n_s P(V_1 - V_s)$  で与えられる。ここに、 $P$  は融解圧力、 $V_1$ 、 $V_s$  は液相および固相におけるモル体積である。このときの冷却能力は、 $\Delta Q = T(S_s - S_1) \Delta n_s$  で与えられるから、

$$\frac{\Delta Q}{\Delta W} = \frac{T(S_s - S_1)}{P(V_1 - V_s)} = \frac{T}{P} \left( -\frac{dP}{dT} \right) \quad (5)$$

の関係が成り立つ。式 (5) の値は、6 mK <  $T$  < 25 mK の温度範囲で、 $T$  を mK であらわして、 $T/850$  の程度になる。したがって、 $T \sim 8$  mK で圧縮の仕事のうちの 1% が熱に変われば、温度はもはや降下しない。

Pomeranchuk 冷却は、液体<sup>3</sup>He を断熱圧縮して固化する 1 ショット型の冷却法である。セル中の<sup>3</sup>He は液体と固体が雑多にいりまじっていて、その混合状態を推測することができないという欠点はあるものの、<sup>3</sup>He そのものの物性測定にとっては、カピツツア抵抗の問題もないから、むしろ最善の方法といえる。しかし、この方法

で<sup>3</sup>He以外の物質を冷却するのは困難である。例えば、Pomeranchukセルは1.5 mKに到達したが、これを用いて他の容器中の1 cm<sup>3</sup>の<sup>3</sup>Heを冷却する場合、2.6 mKまでしか降下しなかったほどである。このためには、装置を大型化して、多量の液体<sup>3</sup>Heを使用する必要がある。また、到達温度を低くするには、断熱固化の開始温度を低くする必要がある。例えば、3 mKに到達するためには、断熱固化を40 mKで始めると32%の固化が必要であるのに対して、7 mKで開始すると7%の固化でよい。固化の少ない方が加圧のさいに、まさつ熱の発生が少なくてすむから、最低到達温度に接近するためには、できるだけ固化の開始温度を下げる必要がある。

液体<sup>4</sup>Heの超流動転移温度は、圧力を増加すると低下するが、液体<sup>3</sup>Heのそれは、圧力とともに高くなり、融解曲線上で最大になる。Pomeranchuk冷却は、融解曲線にそって<sup>3</sup>Heを冷却するから、超流動状態に早く到達する。しかし、低圧における超流動状態を、Pomeranchuk法で実現するのは困難であるから、他の磁気冷却法などで<sup>3</sup>Heを冷却しなければならない。

Pomeranchukセルの一例を図9に示す<sup>15)</sup>。断熱固化を開始する温度まで予冷するには、希釈冷凍機を用いる。希釈冷凍機の混合室に、Pomeranchukセルを機械的に固定する。その接触面にはカピツア抵抗が介在する。さらに、液体<sup>3</sup>Heの比熱が大きいことと相まって、予冷に長時間を要するという欠点がある。例えば、3 cm<sup>3</sup>程度の液体<sup>3</sup>Heを20 mKまで予冷するのに50時間以上を

要する。予冷の段階において、<sup>3</sup>Heをガス圧充てんするさいの加圧系には、液体<sup>4</sup>He槽で冷却した活性炭を充てんした容器内に<sup>3</sup>Heを十分に吸着させ、これを蒸発使用するものが操作簡便である<sup>16)</sup>。

希釈冷凍機の混合室内の液体<sup>3</sup>HeをそのままPomeranchuk冷却の動作物質に用いることができれば、予冷時間が短縮される可能性がでてくる。この目的のために、<sup>4</sup>He循環式の希釈冷凍機とPomeranchuk冷却とを結合させる試みがある<sup>17)</sup>。予冷時間が短縮されるばかりでなく、<sup>3</sup>He加圧系が不用となり操作も容易となるから、大型化も可能と思われる。

Pomeranchuk冷却による最低到達温度は、Johnsonら(1970)<sup>18)</sup>の1.5 mK、Osheroffら(1972)<sup>19)</sup>の2 mK以下、Halperinら(1973)<sup>19)</sup>の1 mK以下、Alvesaloら(1974)<sup>20)</sup>の1 mK、Smithら(1975)<sup>21)</sup>の1.5 mKなどである。

Pomeranchuk冷却によってもたらされた最大の成果は、液体<sup>3</sup>Heの超流動状態の発見と、固体<sup>3</sup>Heの核スピニ系の秩序化の温度の確認である。これらの二つの事実は、いずれも理論的には古くから、例えば超流動の存在は、超伝導のBCS理論が提案された1957年直後から予想されており、また、核スピニ系の秩序化温度が、正常固体で予想される1 μKというような低い温度ではないということも予想されていたことではある。しかし、液体<sup>3</sup>Heの超流動状態は当初予想されていたような単純なものではなくて、<sup>3</sup>P状態の原子対が形成されており、しかも超流動状態もA、Bの二つの相をもっていることなどが明らかにされた。秩序化の温度が1.1 mKであることは、Pomeranchuk冷却による到達温度の下限を与えたことになる。この核磁気秩序も、まだ実験的には確定されてはいないが、一種の反強磁性と考えられる。一般に、反強磁性体のネール点は外部磁場によって下がるから、高温において、エントロピーの減少をもたらさない程度の強さの磁場にかけると、Pomeranchuk冷却の到達温度の下限を下げうる可能性がある。

## 6. 核 冷 却

磁気冷却法の歴史は古い。すでに、1926年にDebye、1927年にGiauqueによって、常磁性塩の磁気冷却の可能性が指摘され、1933年にGiauqueが0.22–0.08 Kの生成に成功した。しかし現在では、この温度領域を含めて0.01 Kまでの生成には、連続運転可能で冷却力も大きい希釈冷凍機を用いるのが普通で、常磁性塩の磁気冷却は古典となった。しかし、目的によっては、10 mK以下1 mK程度までの低温生成にその余命を保っている。

鉄族あるいは希土類イオンは、不完全殻電子による磁

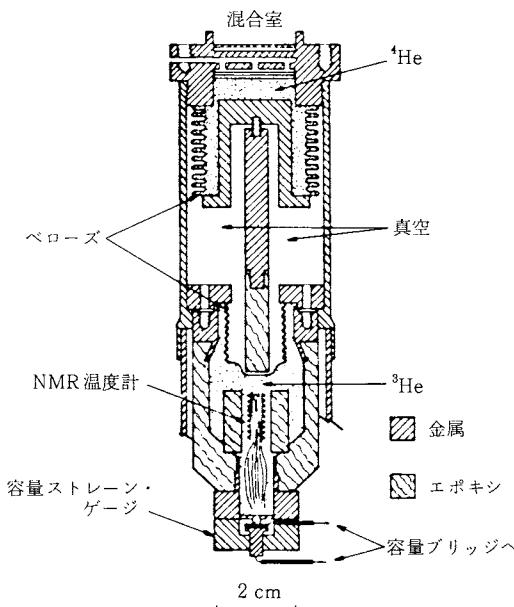


図9 Osheroffらの用いたPomeranchukセル<sup>15)</sup>

気モーメントをもっているから、これらのイオンを含む適当な常磁性塩を用いると、断熱消磁による冷却が可能となる。磁気モーメントの方向は、1K近傍でも無秩序で、スピンを  $j$  あてらわすと、スピン系のエントロピーは1原子あたり  $k_B \ln(2j+1)$  である。これが図2のエントロピーに対応し、パラメータは外部磁場である。この方法における最低到達温度は、外部磁場が0の場合には、スピン間の双極子相互作用によってきまり、スピンの方向の秩序化が起こる温度である。この温度を低くするためには、磁気モーメント間の相互作用ができるだけ小さくしなければならない。このためには、モーメントをもつ磁性イオンの間に、モーメントをもたない非磁性原子がわりこんで、磁性イオン間距離を広げているような、例えばCMNのような常磁性塩が適している。この場合、磁性の扱い手は  $Ce^{3+}$  イオンであって、そのモーメント間の双極子相互作用は2mKに対応する。これが最低到達温度になる。

1mK以下の温度領域の生成には、現段階では核冷却に頼る以外にはない。核冷却の可能性も、すでに1934年にGorterによって指摘されている。この温度領域でエントロピーが有限の値で残っているのは、核スピン系だけだからである。その双極子相互作用できる温度は0.1 $\mu$ K程度である。常磁性塩の場合のモーメントの扱い手が電子であったのに対し、核冷却の場合は核スピンであるから、モーメントの大きさは  $10^{-3}$  になる。したがって、外部磁場を  $10^8$  倍にするか、出発点の温度を  $10^{-3}$  にする必要がある。断熱消磁の出発点における外部磁場を10Tとした場合には、出発温度を数mKにしなければならない。

断熱消磁の出発点における温度を  $T_i$ 、外部磁場を  $H_i$  とする。図2に示すように、  $T_i$  においてパラメータである外部磁場を等温変化させて、核スピン系のエントロピーを減少させる。その後、断熱消磁を行って、外部磁場を  $H_f$  に下げ、低い温度  $T_f$  に達したとする。この場合の到達温度  $T_f$  は

$$T_f(H) = \sqrt{\frac{H_f^2 + h^2}{H_i^2 + h^2}} T_i \quad (6)$$

により与えられる。 $h$  は双極子相互作用の結果として核がみる局所場である。式(6)より、  $H_f = 0$  とすると最低の  $T_f$  が得られるはずである。しかし、断熱消磁により、伝導電子系(格子系)を冷却する場合には、  $H_f = 0$  では磁気比熱係数がきわめて小さくなるために、侵入熱によって格子温度が上昇してしまう。したがって、キュリー則が成り立つ温度領域で

できるだけ格子温度を下げるには、  $H_f = 0$  まで消磁しないで、たとえ  $T_f$  の値が少し高くなってしまっても、  $H_f$  の値を有限にとどめて、磁気比熱を大きくする必要がある。

いま、外部から  $\dot{Q}$  の割合で熱の侵入がある場合、その熱を吸収して核スピンの温度が上がる。核スピン系の定磁場  $H$  における比熱を  $C_H$ 、核のスピン温度を  $T_N$  であらわすと、核スピン系が伝導電子から熱を吸収する割合は、

$$\dot{Q}_N = C_H \dot{T}_N \quad (7)$$

で与えられる。ただし、  $C_H$  はキュリー定数  $\lambda$  を用いて

$$C_H = \lambda (H^2 + h^2) / T^2 \quad (8)$$

と書くことができる。 $\lambda = N_A I (I+1) \mu_N^2 g_N^2 / 3k_B$  であって、  $\mu_N$  は核磁子、  $g_N$  は核の  $g$  値、  $N_A$  はアボガドロの数である。

核スピン・格子緩和時間  $\tau_1$  は次式で定義される：

$$\frac{d}{dt} \left( \frac{1}{T_N} \right) = -\frac{1}{\tau_1} \left( \frac{1}{T_N} - \frac{1}{T_e} \right) \quad (9)$$

$T_e$  は電子と格子の温度であって、その熱容量は無限大、すなわち  $T_e$  は一定と考える。金属の場合には、一般に  $\tau_1$  と  $T_e$  との間にはコリンハの関係

$$\tau_1 T_e = \kappa \quad (10)$$

が成り立っている。 $\kappa$  はコリンハの定数とよばれる。代表的な冷却物質に対する値を表2に示す。

$T_N$  一定の状態では、  $\dot{Q}_N$  は  $\tau_1$  に支配される。核スピン系の磁化が、消磁後の温度領域においてもキュリー則に従うと仮定すると、  $\dot{Q}_N = \dot{Q}$  の条件が成り立つ温度になると、格子温度は一定値  $T_e$  におちつくことになるから、

$$\dot{Q}_N = \frac{\lambda (H^2 + h^2)}{\kappa T_N} (T_e - T_N) \quad (11)$$

の関係が成り立つ。さらに、

$$\frac{T_e}{T_N} = 1 + \frac{\kappa \dot{Q}}{\lambda (H^2 + h^2)} \quad (12)$$

の関係式が得られる。最低温度をうるために消磁を止めるべき磁場は  $dT_e/dH_f = 0$  からきまるから、  $H_f \gg h$  と仮定して

$$H_{f,\text{opt}} = (\kappa \dot{Q} / \lambda)^{1/2} \quad (13)$$

表2 冷却物質の性質

金属核	スピン $I$	$\lambda V^{-1}/\mu\text{Kcm}^{-3}$	$\kappa/\text{s}\cdot\text{K}$	$h_I/\text{mT}$	$h_{eq}Q/\text{mT}$
$^{27}\text{Al}$	5/2	0.87	1.80	0.75	
$^{51}\text{V}$	7/2	1.91	0.788		
$^{63}\text{Cu}$	3/2	0.57	1.27	0.3	
$^{93}\text{Nb}$	9/2	1.99	0.36		
$^{115}\text{In}$	9/2	1.11	0.086		250
$^{119}\text{Sn}$	1/2	0.015	0.05		
$^{195}\text{Pt}$	1/2	0.019	0.0294		
$^{203}\text{Tl}$	1/2	0.21	0.006		

となる。これが最低の電子温度を与える磁場の値である。

核冷却の冷却物質に銅を用いた場合について考える。 $H < h$ に対するコリンハの定数は  $\kappa = 0.4 \text{ s} \cdot \text{K}$ , キュリー定数は  $3 \times 10^{-7} / \text{mol}$ ,  $h \approx 0.3 \text{ mT}$  であるから,  $(T_e - T_N) / T_N \sim 1.5 \times 10^5 \dot{Q}$  となる。外部よりの侵入熱  $\dot{Q}$  は、大体  $1 \text{ nW}$  の程度であるから、 $H=0$  まで消磁して  $T_N \sim 10^{-6} \text{ K}$  に低下したとしても、 $T_e \sim 10^{-3} \text{ K}$  となり、格子温度はほとんど初期温度のままである。格子温度を最低にするために残すべき磁場の値は、式(13)により  $H_{t,\text{opt}} \sim 20 \text{ mT}$  の程度になる。ただし、 $\kappa$  の値は  $H > h$  に対する値  $1.1 \text{ s} \cdot \text{K}$  を用いた。この条件のもとでは、 $T_{N,t} \sim 32 \mu\text{K}$ ,  $T_{\text{ef}} \sim 64 \mu\text{K}$  となる。核スピンが  $T_{Nf}$  から  $T_N$  まで上昇する時間  $\Delta t$  は、

$$\Delta t = \frac{\lambda (H_t^2 + h^2)}{\dot{Q}} \left( \frac{1}{T_{Nf}} - \frac{1}{T_N} \right) \quad (14)$$

となる。 $\dot{Q} = 1 \text{ nW}$ とした場合に、銅について上記の諸量を計算した結果を表3に示す。 $H=0$  まで消磁した場合は、核スピンが  $T_N \sim 1 \mu\text{K}$  の温度にある時間も短くて、数分で格子温度に戻ってしまう。

核冷却に用いる冷却物質としての必要条件は、(1) キュリー定数  $\kappa$  が大きいこと、(2) コリンハの定数  $\kappa$  が小さいこと、(3) 最低磁場においても、超伝導にならないこと、(4) 熱伝導度が大きいこと、(5) 機械的性質や冶金的性質に優れていることなどが考えられる。

核冷却の例を示す<sup>22)</sup>。冷却物質は 20 モルの銅(純度 99.999%, 直径 0.05 mm の絶縁銅線 70,000 本を束ねたもの)であって、全長 61.7 cm のうちの長さ 20 cm の部分は、直径が 3.5 cm であって 12 モルにあたる。この部分が、内径 7 cm, 長さ 20 cm, 最大 7 T(平均値は 5 T)の超伝導マグネットの中に入っている。残りの 41.7 cm の部分は、直径が 1.9 cm であって銅の量は 8 モルである。その一端は、超伝導熱スイッチを通して希釈冷凍機の混合室に連結してある。12 モルの銅を 7 T まで磁化すると、60 mJ の等温磁化熱を発生する。これを希釈冷凍機を用いて 24 時間かかる取り除く。このさいの希釈冷凍機は、動作温度 16 mK,  ${}^3\text{He}$  循環速度  $2 \times 10^{-4} \text{ mol/s}$ , 冷却力 1  $\mu\text{W}$  で運転される。この等温磁化を終ると、超伝導熱スイッチを用いて希釈冷凍機から熱的に遮断し、断

熱状態において 36 mT まで消磁する。得られた温度は  $T_{Nf} = 0.30 \text{ mK}$ ,  $T_{\text{ef}} = 0.37 \text{ mK}$  である。温度測定は、 ${}^{54}\text{MnNi}$  の核整列温度計と NMR 温度計を用いて行っている。NMR 温度計は 8 モルの銅の部分の温度を測定している。この位置における磁場は、打ち消し用の超伝導マグネットにより殆んど 0 になっている。核整列温度計と NMR 温度計の位置は異なっており、しかも各部分の熱伝導度も違うので、 $\mu\text{K}$  領域では各場所の熱伝達についていろいろの問題が起こる。しかし、1 mK 以上の高温になると、各部の格子温度が平衡状態に対するので、核スピンの温度も、NMR 温度計で測定したものと一致するようになるとみてよい。

現在までに行われた代表的な核冷却を表4に示す。

最近、液体  ${}^3\text{He}$  を 0.5 mK 以下に冷却して、15 T の強磁场中で実験することを目的にした核冷却が試みられた<sup>23)</sup>。0.4 mK 以下における飽和蒸気圧のもとで、 ${}^3\text{He}$  を冷却し、試料全体を 28 mT の外部磁場中において場合、液体  ${}^3\text{He}$  は 0.5 mK 以下の温度に 30 時間、1 mK 以下の温度に 50 時間保たれた。核冷却には直径 0.2 mm の絶縁銅線(純度 99.999%)を用い、断熱消磁部分を二重構造にしてある。図 10 に示すように<sup>23)</sup> 中空円筒型に 11,500 本の銅線(15 モル)を束ね(長さ 30 cm), その中心に 8,000 本の銅線(10 モル)を束ねたもの(長さ 29 cm)を入れる。この二つの冷却物質は、超伝導熱スイッチで連結されていて、同時に 7 T の超伝導マグネットにより等温磁化、断熱消磁をしたのち、超伝導熱スイッチにより二つを熱的に切りはなす。中心の銅束が、 ${}^3\text{He}$  試料の冷却用として働き、外側の銅束が外部から熱的に遮へいする防護壁の役割を果たすことになる。このようにすると、外部から侵入する 1.2 nW 程度の熱のうち、 ${}^3\text{He}$  試料部分へは、その 20% 程度しか達しない。

もう一つの改良点は、 ${}^3\text{He}$  試料用のセルである。50 mT 以上の磁場中では、銅はその核比熱が低温で大きくなるから、冷却物質として適当ではない。磁場中における銀の核比熱は銅の約 0.5% であるにも拘らず、その他の性質は銅と大差はないので、 ${}^3\text{He}$  試料セルに銀を使用するのが得策である。現在のところ、この装置が最も低い温度(0.4 mK)で運転されているようである。

表3  $\dot{Q} = 1 \text{ nW}$  のとき、銅の核冷却における諸元  
 $\Delta Q$  は  $T_N$  まで温度上昇するときの吸収熱、 $\Delta t$   
 は 10 mK まで上昇するに要する時間をあらわす。

$T_i / \text{mK}$	$H_i / \text{T}$	$T_{Nf} / \mu\text{K}$	$T_{\text{ef}} / \mu\text{K}$	$T_{\text{ef}} / T_{Nf}$	$\Delta t$	$H_t / \text{mT}$	$H_{t,\text{opt}} / \text{mT}$	$\Delta Q / \mu\text{J mol}^{-1}$
10	6	0.5	700	1400	10 m	0	—	0.57
10	6	32	64	2	10 h	—	19	36
10	10	32	43	1.3	28 h	—	32	100

表4 核冷却の代表例\*

	核	$H_i/T$	$T_i/\text{mK}$	$H_f/\text{mT}$	$T_{Nf}/\text{mK}$	$T_{ef}/\text{mK}$	$H_i T_i^{-1}/\text{TmK}^{-1}$
Osgood <i>et al.</i> <sup>a)</sup> (1967)	Cu 8500 本	6	13	200	0.36	0.80	0.46
Ahonen <i>et al.</i> <sup>b)</sup> (1974)	Cu 23 モル	7.5	17	50~100	0.7		0.44
Berglund <i>et al.</i> <sup>c)</sup> (1972)	Cu 20 モル	5	16	36	0.3	0.37	0.31
Hansel <sup>d)</sup> (1973)	Cu 0.93 モル	2.5	16	80	0.54	0.85	0.16
Dundon <i>et al.</i> <sup>e)</sup> (1975)	Cu 12000 本				0.3		~0.7
Symko <sup>f)</sup> (1969)	Cu 8000 本	3.46	20	60	1	2	0.17
	In 粉	3.2	12	40	0.22		0.27
Dundon <sup>g)</sup> (1973)		7			0.25		
Kurti <i>et al.</i> <sup>h)</sup> (1956)	Cu 0.75 モル	2.78	12	0	20 $\mu\text{K}$		0.23
Hobden <i>et al.</i> <sup>i)</sup> (1959)		3.04	12		1.2 $\mu\text{K}$		0.25
Veuro <sup>j)</sup> (1978)	Cu 25 モル	7.0	18	30		0.38	0.39
	時 間	熱漏洩	温 度 测 定	予 冷	他 の 試 料 冷 却		
Osgood <i>et al.</i> <sup>a)</sup> (1967)	7 h (<1 mK)	0.8~1.6 nW	Cu Cont. NMR	CMN	0.45 cm <sup>3</sup> <sup>3</sup> He (4 mK)		
Ahonen <i>et al.</i> <sup>b)</sup> (1973)	20 h (<1 mK)	0.2 nW/mol	Pt NMR	希釈	6 cm <sup>3</sup> <sup>3</sup> He (0.7 mK)		
Berglund <i>et al.</i> <sup>c)</sup> (1972)		12 nW	Pt NMR, NO	希釈			
Hansel <sup>d)</sup> (1973)		10 nW	Cu NMR, NO	CPA			
Dundon <i>et al.</i> <sup>e)</sup> (1975)	12 h (<1 mK)	0.8 nW	NMR	CMN	0.45 cm <sup>3</sup> <sup>3</sup> He (0.3 mK)		
Symko <sup>f)</sup> (1969)	10 m (<10 mK)	20 nW	Cu NMR	CPA			
	80 m (<3 mK)	8 nW	Cu NMR				
Dundon <sup>g)</sup> (1973)	6 h (<0.5 mK)	1 nW	Cu NMR		1 cm <sup>3</sup> <sup>3</sup> He		
Kurti <i>et al.</i> <sup>h)</sup> (1956)	100 s (<12 mK)		x	CPA			
Hobden <i>et al.</i> <sup>i)</sup> (1959)			x	CPA			
Veuro <sup>j)</sup> (1978)	48 h (<1 mK)	1.2 nW	Pt NMR	希釈	3.1 cm <sup>3</sup> <sup>3</sup> He (0.38 mK)		

a) PRL 18 894, b) PRL 33 628, Cryo. 18 521, c) Cryo. 12 297, d) JLTP 13 371, e) JLTP 18 315,  
f) JLTP 1 451, g) PRL 30 843, h) Nature 178 450, i) Phil. Mag. 4 1092, j) Ref.23

\* 馬宮孝好氏による

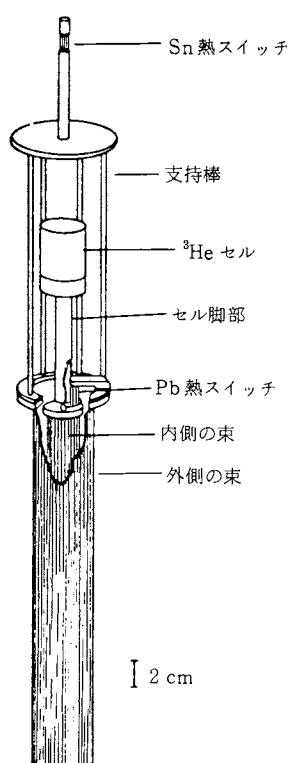


図10 二重構造の断熱消磁部分<sup>23)</sup>

他に、超微細相互作用により増強された内部磁場を用いる核冷却もある<sup>24)</sup>。

## 7. 超低温における物理

このようにして超低温度が実現した場合、どのような興味ある問題が出現するだろうか？すぐに思いつくのは、フェルミ流体である液体<sup>3</sup>Heの性質、とくに超流動相やmK以下の性質の解明である。磁性の分野では、電子磁性における双極子相互作用による秩序の研究、核磁性における固体<sup>3</sup>Heや金属などの核秩序の問題、また、超微細相互作用の研究などがある。希薄磁性合金では、とくに近藤効果や基底状態の本質が明らかになるだろう。超伝導では、低い転移温度をもつ物質の研究、磁性不純物効果やジョゼフソン効果の研究がある。核物性では、核整列の問題、核モーメント、パリティの非保存の問題、中性子物理の問題などが山積している。また、素粒子物理や天体物理の分野でも興味ある問題が発掘されるであろう。

超低温度における物性研究のもつ重要な目標の一つは秩序相の解明である。その究極の目標は1  $\mu\text{K}$ 程度の超低温度で起こる核相互作用の解明にあるが、量子固体である固体<sup>3</sup>Heは、すでに述べたように異常に高い1.10 mK(24.2 cm<sup>3</sup>/mol)に核磁気秩序転移点をもっているので、研究の第1目標としてきわめて適当である。しかも、

その核スピンは1/2、結晶構造もbccであるから、比較的単純な磁気構造が期待される。しかし、最近、徐々に現われ出した実験結果によると、その磁気構造は当初、予想されたほど単純なものではない。その解明のためには、さらに多くの実験と理論が必要であると考えられるので、ここでは超低温物理の例題として簡単にふれておく。

固体<sup>3</sup>Heに関する実験研究は、1970年頃より1974年にわたって、転移温度より高温において、帯磁率、融解曲線、比熱、磁気圧力等が測定されている。その結果によると、相互作用としては最近接相互作用だけでなく、第2近接相互作用も考える必要がある。上記の測定のうち、磁気圧力以外のいずれの測定においても、最近接および第2近接相互作用は、ともに反強磁性的である。これに反し、磁気圧力の測定結果を説明するためには、第2近接相互作用が強磁性的である必要がある。

磁気転移温度近傍の測定結果は、超低温技術の進歩とともに、1974年以降、徐々に集積されつつあるといふものの、その量、質ともに不十分で、固体<sup>3</sup>Heの磁気構造を解明するにはいたらない。1.10mKにおける相転移が第1次相転移であることは、エントロピーおよび帯磁率の測定から矛盾なく説明されている。しかし、転移温度の磁場変化を説明するには、4体相互作用まで考慮しなければならない。4体スピン交換を取り入れた理論によると、固体<sup>3</sup>Heは単純な反強磁性体ではなくて、副格子の磁気構造が異なるいくつかの反強磁性相をもつことが予測されている。副格子が二つの単純な場合と、四つの場合とがあるが、副格子が四つの場合は、4体相互作用の大きさにより、磁気構造が異なるだけでなく、1次の相転移の場合と2次の場合とが起こる。いままで、説明不能であった転移点近傍における磁化の異常の実験結果は、4体交換相互作用を取り入れた理論によって説明できることが、最近、われわれの理論計算によって明らかになった。

相互作用の大きさは、量子効果のために、格子間隔(モル体積)に強く依存する。したがって、格子間隔をバラメータとして、圧力の温度変化から相転移温度のモル体積依存性を調べる必要がある。静帯磁率の測定をSQUIDを用いて高磁場まで行い、その磁場依存性から、磁気相を確定し、相互作用の大きさを決定する。また、高磁場におけるスピンドロップ強磁性相への転移等、興味深い実験が予想される。

超低温度における比熱測定では、熱流入と長い緩和時間のために、熱平衡に達するのが困難である。しかし、相転移の確認とその種類の決定のためには、比熱の測定は不可欠である。理論によれば、1mKの反強磁性転移

のほかに1.8mKにおいて異なる磁気構造の反強磁性相転移の可能性もあるので、精密な比熱測定が望まれる。

4副格子の反強磁性相の場合には、光学的スピン波モードが存在する。例えば音波の減衰の測定から、この光学的モードが検出できないだろうか? また、異方性のある場合には、零磁場における反強磁性共鳴の存在が予想される。これらを検出して直接、固体<sup>3</sup>Heの核秩序を確認し、交換相互作用の大きさや磁気構造を直接明らかにできれば、その意義は大きく、<sup>3</sup>Heの凝集体の研究における超流動相の発見に匹敵するものと考えられる。

これらの実験研究は、それ自身、量子固体の研究として重要であるばかりでなく、さらに低い温度(1μK)における核間相互作用の研究の基礎となるものである。

## 文 献

- 1) 中嶋貞雄、超低温のすすめ、極限状態の物理第2章 p.21, 日本物理学会編
- 2) Proc. HAKONE Intern. Symp. Phys. at Ultralow Temp. Phys. Soc. of Japan 1978.
- 3) この領域における唯一の成書は、O. V. Lounasmaa, Experimental Principles and Methods below 1K, Academic Press, 1974.
- 4) D. Thoulouze, J. Physique (Paris) **31** C3-119 (1970); W. Weyhmann, Methods of Experimental Physics-Solid State Physics (R. V. Coleman, ed.), Academic Press, 1973.
- 5) J. R. Sites, H. A. Smith and W. A. Steyert, J. Low Temp. Phys. **4** 605 (1971); W. A. Steyert, Temperature: Its Measurement and Control in Science and Industry **4** 1253 (1973); P. M. Berglund, H. K. Collan, G. J. Ehnholm, R. G. Gylling and O. V. Lounasmaa, J. Low Temp. Phys. **6** 357 (1972).
- 6) M. I. Aalto, P. M. Berglund, H. K. Collan, G. J. Ehnholm, R. G. Gylling, F. M. Krusius and G. R. Pickett, Cryogenics **12** 184 (1972); M. I. Aalto, H. K. Collan, R. G. Gylling and K. O. Nores, Rev. Sci. Instrum. **44** 1075 (1973); L. R. Corruccini, D. D. Osheroff, D. M. Lee and R. C. Richardson, J. Low Temp. Phys. **8** 229 (1972).
- 7) 益田, 柴山, 固体物理, **7**, 634 (1972)
- 8) G. Frossatti, H. Godrin, B. Hebré, G. Shumacher and D. Thoulouze, Ref. 2, p. 205.
- 9) P. Das, R. deBruyn Ouboter and K. W. Taconis, Proc. LT-9, London, p. 1253, 1965.
- 10) B. S. Neganov, N. Borisov and M. Liburg, Sov. Phys. JETP **23** 959 (1966).
- 11) H. E. Hall, P. J. Ford and K. Thomson, Cryogenics **6** 80 (1966).

- 12) J. C. Wheatley, O. E. Vilches and W. R. Abel, *Phys.* **4** 1(1968). J. C. Wheatley, R. E. Rapp and R. T. Johnson, *J. Low Temp. Phys.* **4** 1 (1971).
- 13) K. W. Taconis, N. H. Pennings, P. Das and R. deBruyn Ouboter, *Physica* **56** 168 (1971).
- 14) I. Pomeranchuk, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **20** 919 (1950).
- 15) D. Osheroff, R. C. Richardson and D. M. Lee, *Phys. Rev. Letters* **28** 885 (1972).
- 16) T. A. Alvesalo, Yu D. Anufriev, H. K. Collan, O. V. Lounasmaa and P. Wennerstöm, *Phys. Rev. Letters* **30** 962 (1973).
- 17) T. Satoh, R. G. Jurriens, K. W. Taconis and R. deBruyn Ouboter, *Physica* **77** 523 (1974).
- 18) R. T. Johnson and J. C. Wheatley, *J. Low Temp. Phys.* **2** 423 (1970).
- 19) W. P. Halperin, R. A. Buhrman, W. W. Webb and R. C. Richardson, *Phys. Letters* **45A** 233 (1973).
- 20) T. A. Alvesalo, *Cryogenics* **14** 384 (1974).
- 21) E. N. Smith, H. M. Bozler, W. S. Truscott, R. C. Richardson and D. M. Lee, *Proc. LT-14*, **4** 9 (1975).
- 22) R. G. Gylling, *Acta Polytechnica Scandinavica*, Ph 81, Helsinki, 1971.
- 23) M. C. Veuro, *Acta Polytechnica Scandinavica*, Ph 122, Helsinki, 1978.
- 24) K. Andres *et al.*, *Phys. Rev. Letters* **22** 600 (1969); *Phys. Rev. Letters* **24** 1181 (1970); *J. Low Temp. Phys.* **9** 267 (1972); *Phys. Rev. B* **10** 1967 (1974); *Phys. Rev. B* **11** 4364 (1975); *Proc. LT-14* **4** 1 (1975).