九州大学学術情報リポジトリ Kyushu University Institutional Repository

希釈冷凍(III)

矢山, 英樹 九州大学大学院理学研究院物理学部門

https://doi.org/10.15017/17873

出版情報:九州大学低温センターだより.4, pp.24-31, 2010-03.九州大学低温センター バージョン: 権利関係:



希釈冷凍(Ⅲ)

九州大学大学院 理学研究院 物理学部門 矢山英樹

本稿は希釈冷凍についての紹介であるが、分量が多いので分割して掲載する予定である。全体の構成は、次のとおりである。

(I) 1. 希釈冷凍の物理的原理 [九州大学低温センターだより No.2 (2008 年 3 月)に既掲載]

(II) 2. 混合器 3. スティル [九州大学低温センターだより No.3 (2009 年 3 月)に既掲載]

(Ⅲ) 4. 熱交換器 5. 1K ポット [本号に掲載]

(IV) 6. 希釈冷凍機の種類 [次号に掲載予定]

4. 熱交換器

希薄溶液と濃厚溶液が流れながら熱交換するための,低温熱交換器は希釈冷凍機の主要 な部品の中の一つである.希釈冷凍機では2つの種類の熱交換器が用いられる.1つは熱 交換器の長さ方向に沿って壁の温度が連続的に変化するものであり,もう1つは壁の温度 が一定のステップ交換器である.最も簡単なものは,熱伝導度の小さい2つの肉薄パイプ の細い方を太い方に挿入したチューブインチューブ型である.良好に動作したキュプロニ ッケル製のチューブインチューブ型熱交換器の特性値を,表6に示す.この種の熱交換器 は,簡便であること,十分低温が得られること(約25 mK),体積が小さいため定常運転ま での時間が短いこと等の特長を有している.この熱交換器の内側のパイプのホットエンド にその内径と同じくらいの線を挿入して,フローインピーダンスを付加することは有益で ある.この副インピーダンスは,³He が蒸発(気化)して好ましくない状況が発生するの を抑えるのに有効である.

内側のチューブ の外径と肉厚 (mm)	外側のチューブ の外径と肉厚 (mm)	長さ (m)	<i>i</i> ₃ (mol/s)	<i>T_m</i> (mK)
0.40×0.08	1.19×0.08	1	1.4×10^{-5}	26
0.40×0.08	1.19×0.08	1	0.9×10^{-5}	23
0.40×0.08	1.19×0.08	1.5	0.9×10^{-5}	22

表 6 チューブインチューブ型熱交換器のパラメータ[1]

熱交換の面積を増加するためには、内側のパイプの径を太くするのが望ましいが、溶液 の流速が減少するため濃厚溶液の相分離が発生する可能性がある.それは、超流動ブロッ クを形成し、動作が不安定になる[1].このため、内側のパイプの外径は0.4~0.7 mm に設 定されている.また外側のパイプの外径は、粘性発熱を減少するためには径を太くするほ うがよいが、そうすると希薄溶液の対流による不安定性が生じるため、両者の妥協による ところで決まる.この不安定性は、熱交換器の下部より上部の方が溶液密度が大きいため

本稿は、ウクライナ科学アカデミー低温物理工学研究所編、矢山英樹、I.B.ベルクトフ訳「超低温の実験 技術」九州大学出版会、2000年、からの抜粋である。

重力によって生じるものである.

熱交換器を設計するときに考慮しなければならない幾つかの重要なファクターがある. 主なものは、カピッツァ(Kapitza)抵抗である.

$$R_K = \Delta T / \Delta \dot{Q} \quad . \tag{14}$$

ここで、 ΔT は液体と固体の間の温度差であり、 ΔQ は界面の単位面積を通って流れる熱量を表わす。カピッツァ抵抗は、データの再現性が悪く、表面の質と処理状態に依存する。しかし、多くの場合、低温で温度依存性 $R_K \sim T^{-3}$ を示すことが多くの研究から判っている。



図 11 ³He と固体の間のカピッツァ抵抗 [20]

したがって*ΔT* << *T* の場合,固体と濃厚相および固体と希薄相の間のカピッツァ抵抗は,そ れぞれ次のように表わされる.

ここで、 A_C と A_D はそれぞれ濃厚相と希薄相の熱交換器の面積である. a と b の値は実験的に決まる. これらの実験データを、図 11 に示す. これらのカピッツァ抵抗 R_{KC} と R_{KD} は熱交換器の計算においては直列につながっており、全抵抗は

$$R_K = \frac{1}{T^3} \cdot \left(\frac{a}{A_C} + \frac{b}{A_D} \right) \tag{16}$$

で表わされる.実験データ[2]から分かるように, $a \cong b$ である.熱交換器中の濃厚溶液から 希薄溶液への熱流は、式(14)~(16)を考慮して、熱交換器の面積と温度の4 乗に比例する. すなわち、

$$\dot{Q} = \alpha \left(T_C^4 - T_D^4 \right) \quad .$$

ここで、 $\alpha = R_0/4$, $R_0 = R_K \overline{T}^3$ であり温度に依存しない.

熱交換器の動作には、粘性発熱が影響することを考慮する必要がある.その場合、溶液 中に発生するパワーは式(5)で表わされ、温度上昇は式(7)で計算される.粘性発熱の計算に 必要な実験データを、表4に示す.

理論的[3]には、 $\Delta T_D \cong 8 \Delta T_C$ である. すなわちこれは、同じ形状で流れが同じであれば、 希薄溶液中の温度上昇は濃厚溶液中のそれに比べて、8倍大きいことを示している. そのた め、条件 $\Delta T_D = \Delta T_C$ を達成するためには、インピーダンスを $\Delta Z_C = 8\Delta Z_D$ とするか、または 式(6)から分かるように、希薄溶液のパイプの外径を濃厚溶液のパイプの 1.7 倍大きくしな ければならない.

粘性発熱を考慮すれば、パイプの径を増加する方が良いが、その場合、溶液の熱容量も 同様に増加する.そのため、粘性発熱を小さく抑え、熱容量を増やさないような最適なパ イプ径が存在する.すなわち、

$$\dot{Q} = \frac{128 l}{\pi d^4} \eta \, \dot{V}^2 + \frac{\pi d^2}{4 l} \kappa \, \Delta T = \frac{\alpha}{d^4} + \beta \, d^2 \, .$$

ここで, κは溶液の熱伝導係数である.パイプの径の最適値は, d_{opt} = (2 α/β)^{1/6}と計算され る[4].

熱交換器の厳密な解析のためには、2つの連立方程式を定義する必要がある[5].それは 熱伝導、粘性発熱、カピッツァ抵抗、およびエンタルピー変化を含んでいる.一般に、そ の方程式は解析的には解けない.しかし、簡単化することにより、実際的な目的に必要な 方程式を得ることが可能である.粘性発熱と熱伝導が小さいと仮定し、カピッツァ抵抗が $R_{K} \sim T^{-3}$ で表わされるとすれば、次のパラメータ間の関係を記述する簡単な方程式を立てる ことが可能である.すなわち、混合器の温度を T_{m} (K)、熱交換器の面積をA(m²)、循環速 度を \dot{n}_{3} (mol/s)、混合器への熱流入を \dot{Q}_{m} (W)とすれば[4,6]、

$$T_m^2 = 6.4R_{Km} \frac{\dot{n}_3}{A} + 1.22 \times 10^{-2} \frac{Q_m}{\dot{n}_3} \quad . \tag{17}$$

ここで、 $R_{Km} = 2 R_K T^3 m^2 K^4 / W$ であり、温度に依存しない.式(17)は、循環速度と熱流 入が分かっていれば、必要な温度を得るための熱交換器の面積を計算するのに有用である. $A \rightarrow \infty$ であれば,式(17)は(4)式に帰着される.そして,Aが非常に小さいときには,式(17)の第2項は無視できる.希釈冷凍機においては, $\dot{Q}_m \sim 10^{-7} \sim 10^{-8}$ Wである.式(17)で計算されるデータは,連続カウンターフロー型熱交換器の実験データとよく一致する.

(17)から分かるように、希釈冷凍機の冷凍パワー \dot{Q}_m (定常運転状態では、熱流入に等しい)は、循環速度の単調関数ではない.

$$\dot{Q} = 82\dot{n}_3 T^2 - \frac{5.25 \times 10^2}{A} R_{Km} \dot{n}_3^2 \quad . \tag{18}$$

このとき、最適循環速度は条件 $\partial \dot{Q}/\partial \dot{n}_3 = 0$ から見出される.すなわち、

$$(\dot{n}_3)_{\rm opt} = \frac{T^2 A}{12.8 R_{Km}} \quad . \tag{19}$$

これは与えられた温度での最大冷却パワーに相当する.最大冷却パワーは,(19)式を(18)式 に代入することによって分かるように,温度の4乗に比例する.

$$\dot{Q}_{\max} = 3.2 \frac{T^4 A}{R_{Km}}$$
 (20)

式(20)は、カピッツァ抵抗が T^{-3} に比例するとして得られた. 温度が高くなると、条件式(19) は満足されず、 $(\dot{n}_3)_{out}$ は最大循環速度を超える、 $\dot{Q} \sim T^2$.

式(17)による見積もりでは、混合器の温度 $T_m = 25$ mK で循環速度 $\dot{n}_3 = 10^{-5}$ mol/s の 場合、熱交換器の面積は A = 12 cm² が必要である (\dot{Q}_m の値は無視し、キュプロニッケル の場合 $R_{Km} = 1.2 \times 10^{-2}$ m² K⁴/W である[4]). 表 6 に示される熱交換器のパラメータは、こ れらの条件を満足している.

この簡単な熱交換器の短所は,混合器へ流れていく³He に対して大きな抵抗をもっているため,大きな循環速度を得ることができないことである.加えて,循環速度が $\dot{n}_3 = 10^4$ mol/s で温度 $T_m = 25$ mK を得るためには,式(17)から分かるように,熱交換表面積 250 cm² が必要である.この短所はスパイラルインチューブの構造をもつ熱交換器で克服できる[4]. 内側のパイプを長さ数メータ,直径 1.5~2 mm の細いチューブで作ったスパイラルで置き換える.この細いチューブは直径 2~2.5 mm の棒に巻きつけて作る.巻きつけることによってチューブがつぶれて径が小さくなった長さ 1.5~2 m のスパイラルを,ステンレスパイプの中に挿入する.このパイプを引っ張って絞り,スパイラルがステンレスパイプ中にきっちり収まるようにする.外側のパイプは直径 4~5 mm になり,熱交換器の中には直径 2 mm の穴が形成される.これは,チューブインチューブタイプの熱交換器と比べてより大きな熱交換が可能であるので,高い循環速度を得ることができる.このスパイラルインチューブは今日では非常に一般的に用いられている.

温度 2~3 mK が, 銀のパウダーを含む連続熱交換器を用いた希釈冷凍機で実現されている[4,6]. 粒径 700 nm の銀粉を焼結すると,表面積は 1.8 m²/g になる.この焼結体と液体 ヘリウムの間のカピッツァ抵抗の測定から, $R_K \sim T^{-2}$ であることが分かった.式(17)は次 のように変更される.

$$T_m = 2.7 R_{Km} \, \frac{\dot{n}_3}{\sigma} + 0.11 \sqrt{\dot{Q}/\dot{n}_3}$$
 (21)

ここで, R_{Km}=27.8 m² K³/W である. 最適循環速度は絶対温度に比例し, 最大冷却パワー

は絶対温度の3乗に比例する.

式(21)から分かるように、循環速度 $\dot{n}_3 = 2 \times 10^{-4} \text{ mol/s}$ で熱流入 $\dot{Q}_m = 3 \times 10^{-8} \text{ W}$ の ときに温度 2 mKを得るには熱交換表面積 $A = 235 \text{ m}^2$ が必要である. この表面積は質量 129 g,幅 25 mmのストライプ状の銀の焼結体によって得られた[4].厚さ 0.1 mmのキュプロ ニッケルの薄板を,基板として用い,焼結の前に金と銀でメッキする.焼結銀の厚さは 1 mm であり、全長は 104 cm である.この熱交換器は 5 つの部分に分けられる.最初の 2 つは長 さ 13 cm で次の 3 つは 26 cm である.粘性発熱を減少するために四角い断面をもつチャン ネルを、希薄相側と濃厚相側の両方に用いる.5 つの部分それぞれに最適なサイズのチャン ネルを形成する.それらはそれぞれ濃厚相側では、1.6、2.8、3.4、4.2、5 mm、希薄相側では、 4.0、6.8、8.3、10.2、12.2 mm である.希薄相側の熱交換器を出た直後の温度は、測定値でそ れぞれ 6.5、4.0、2.7、2.2、2.0 mK であった.

したがって、熱交換器に沿っての温度勾配は混合器に近いほど小さく、最終段では 0.2 mK である.これは、この連続熱交換器の特性が、構成や技術的な面でより簡単なステップ 交換器の特性に近いことを意味している.

チューブインチューブやスパイラルインチューブなどの連続カウンターフロー型の熱 交換器は、20 mK以下の温度を得るために、通常、分離型(またはステップ型とも呼ばれ る)の熱交換器とつながれる.ステップ交換器の数は、重要である.熱交換器を出た直後 の希薄相と濃厚相の温度が等しくなるような理想的な熱交換器の解析は可能である.混合 器の直前に置かれた一番下のステップ交換器の場合、次のように書ける.

 $\dot{Q}_i + \dot{n}_3 [H_3(x_C, T_{i-1}) - H_3(x_C, T_i)] = \dot{n}_3 [H_3(x_D, T_i) - H_3(x_D, T_m)]$ (22) ここで、 \dot{Q}_i は熱交換器への熱流入であり、 T_{i-1} はステップ交換機から出て行く濃厚相の温 度であり、エンタルピーの値は図3に示されている。もし、混合器の温度 T_m が与えられれ ば、式(3)によって T_i を求めることができ、それから T_{i-1} も求めることができる。熱流入が 全くないと仮定した計算では、3つのステップ交換器の条件を $T_i = 28$ mK, $T_{i-1} = 66$ mK, $T_{i-2} = 179$ mK, $T_{i-3} = 730$ mK = T_s とした場合、混合器の最低温度が10 mK となる。しかし、 実際には多くの熱流入があり、熱交換器の表面積も限られているため、状況は厳しい。

熱交換器の解析のためには、2つの連立方程式を解かなければならない[5].

$$a_{j}\left[\kappa_{j}\frac{d^{2}T_{j}}{dx^{2}} + \frac{d\kappa_{j}}{dT_{j}}\left(\frac{dT_{j}}{dx}\right)^{2}\right] - \frac{dA}{dx}\int_{T_{B}}^{T_{j}}\frac{dT}{R_{K}} + \eta\dot{V}^{2}\frac{dZ}{dx} = n_{3}C_{j}\frac{dT_{j}}{dx} \quad .$$
(23)

ここで、j = Cおよび j = Dである. 濃厚相の方程式は、式(23)においてjをCで置き換えることによって得られ、希薄相の方程式は、jをD で置き換えることによって得られる. ここで、 a_j は溶液が流れるところの断面積であり、 κ_j は溶液の熱伝導度、 C_j は溶液のモル比熱、Zはインピーダンス、xは流れに沿って測った長さ、 T_B は熱交換器の温度であり一定であると仮定する.この解は、繰返し法による数値計算で求められる[5].式(23)の左辺は、第1項が熱伝導を表わし、第2項がカピッツァ抵抗の影響を表わし、第3項が粘性発熱の影響をあらわす.一方右辺は、エンタルピー変化を表わす.これらの方程式は、解析的には解けないが、境界条件を与えて数値的に解くことができ、濃厚相と希薄相の溶液の温度分布が求まる.

熱交換器に関する計算は, 簡単な物理的モデルに基づいて行われている[1, 5, 7, 8, 9, 10,

11, 12, 13, 14, 15, 16, 17, 18]. 焼結型ステップ交換機の構造を,図12に示す.この熱交換 器は、ステンレス製の上下の蓋と洋銀製の隔壁でできている.金属粉末は隔壁の両側に焼 結されている. 焼結の際に放射方向に粉末が縮むのを避けるために、最初に薄い層の焼結 体を作り、その後、残りの粉末を成形してプレスし焼結するという方法が用いられている. 蓋の部分は、濃厚相と希薄相の溶液の通り道となるチャンネルをもち、厚さ0.3 mmの板を コールドプレスすることによって作られている.粉末を焼結した隔壁と2 枚の蓋はアーク 溶接を用いて接合されている. 焼結体の温度はあまり上がらないようにされているため、 溶接後も熱交換器は微粒子の状態を保持しており広い表面積を確保している.

文献[19]中の解析によると,熱交換器の全表面積が同じであれば,小さな熱交換器を多数直列に接続して用いるほうが,大きな熱交換器を少数直列に接続して用いるより効果的であることが分かっている.



図 12 ステップ熱交換器の模式図 [8]

1 は下の蓋, 2 は焼結体, 3 は隔壁, 4 は上の蓋, 5 はチャンネル, 6 は溶液の 出入口.



図 13 1K ポットの模式図 [19] 1 は外部ヘリウム槽 (4.2 K), 2 はフィル ター, 3 はポンピングライン, 4 は真空容 器,5 はインピーダンス,6 は³He 凝縮器, 7 は 1K ポット.

5. 1Kポット

1K ポットの主な目的は, 戻っていく ³He を凝縮(液化) することである. その他に, 低温部につながるリード線やパイプ類の熱アンカーとして用いられる. この 1K ポットは L. E. De Long, O. G. Symko, and J. S. Wheatley [19] らによって最初に提案された. 1K ポ ットは,時間の制約を受けずに長時間希釈冷凍機を運転できるため,現在では広く用いら れている.

1K ポットの模式図を図 13 に示す.1K ポットには、フィルター、パイプ、インピーダ ンスを通して ⁴He が導入される.1K ポットとインピーダンスは、真空チェンバーの中に設 けられていて、外部のヘリウム槽とは断熱されている.液体ヘリウムはメカニカルポンプ または拡散ポンプによって減圧され、温度が 1.1~1.4 K に下がる.1K ポットの熱負荷は、 戻っていく ³He の凝縮熱である.

1K ポットの内部の液面位置は、熱流入とポンピング速度の比によって決まる.熱流入が、ある臨界値に達するまでは、1K ポットは定常状態で動作する.もし熱負荷が増加(減

少)して熱力学的状態が変化したときには、それを補償するように1K ポット内の液面が減少(増加)し、温度は実質的にほとんど変化しない.1K ポットの熱力学的振舞いを、図14 に示す.1K ポットには、それ以上の熱が供給されると定常動作が壊れて急激な温度の上昇が生じる臨界熱負荷が存在することが分かる.1K ポットの臨界冷却パワー \dot{Q}_{cr} はインピーダンスの値に依存する.インピーダンスの値が増加すれば、冷却パワーは減少し、1K ポットの温度は幾分減少する.1K ポットの動作を決定するパラメータの値を表7に示す.

1K ポットに関する計算は、インピーダンス Zの値の決定に帰着される. すなわち、ポ ンピング速度 V が与えられれば、1K ポットの圧力つまり温度を決めるインピーダンスの値 が決まるからである. 圧力 P とポンピング速度 V とヘリウムの消費速度 n の関係は次の実 験式によって与えられる.

$$P = 25 \left(\frac{\dot{n}}{10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}} \right) \left(\frac{0.01 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}}{\dot{V}} \right) \quad .$$
 (24)

この式から, *n*と*v*を求めることができ,式(13)を用いてインピーダンス Zを計算できる. 1K ポットの冷却パワーは*n*と蒸発熱の積で与えられる.すなわち,インピーダンスの 値が増大すると冷却パワーは減少するが,低温が得られる.なぜなら,パイプ中のヘリウ ムの液面が低くなるからである.

1K ポットの種類は、多数存在する. それらの多くは、スパイラルチューブあるいは焼 結体を用いた ³He 凝縮器と熱交換する容器である場合が多いが、⁴He をポンピングするチ ューブと ³He リターンチューブを渦巻き状にして半田付けしたコールドプレートの形をし たものもある.



図 14 インピーダンスの値をパラメータとし て表わした,1K ポット温度の熱負荷依存性 [19] 1: Z = 6.7 × 10¹¹ cm⁻³,2: 1.26 × 10¹² cm⁻³,3:

 $2.00 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$.

表 7 インピーダンスが異なる1Kポットの動作特性 [19]

Z (cm ⁻³)	2.0×10^{12}	1.26×10^{12}	6.7 × 10 ¹¹
1K ポットの熱平衡温度(K)	1.26	1.27	1.33
⁴He 消費速度 (mol/s)	$1.85 imes 10^{-4}$	2.4×10^{-4}	3.3×10^{-4}
臨界冷却パワー (mW)	8.2	10.7	15
1K ポットの充填時間 (min)	9	5	2.2

参考文献

- Wheatley J.C., Rapp R.E., Johnson R.T., Principles and methods of dilution refrigeration II, J. Low Temp. Phys. 1971, Vol. 4, No. 1, pp. 1-39.
- [2] Зиновьева К.Н. Теплообмен между твердым телом и жидким гелием ниже 1 К, ЖЭТФ

(Soviet Physics JETP), 1971, Vol. 60, No. 6, pp. 2248-2251.

- [3] Wheatley J.C., Vilches O. E., Abel W.R., Principles and methods of dilution refrigeration I, Physics, 1968, Vol. 4, No. 1, pp. 1-64.
- [4] Frossati G., Obtaining ultralow temperatures by dilution of ³He into ⁴He, J. Phys. (France), Colloq. C6. 1978, Vol. 39, suppl. 8, pp. 1578-1589.
- [5] Siegwarth L.D,m Radebaugh R., Analysis of heat exchangers for dilution refrigerators, Rev. Sci. Instr. 1971, Vol. 42, No. 8, pp. 1111-1119.
- [6] Frossati G, Godrin H., Hebral gb. et al., Conventional cycle dilution refrigeration down to 20 mK, Phys. Ultralow Temp.: Proc. Int. Symp. Hakone, 1977, pp. 205-224.
- [7] Боровик-Романов, Буньков Ю.М., Дмитриев В.В. и др., Криостат ядерного размагничивания и криостат растворения ³Не в ⁴Не большой хладопроизводительности, ПТЭ (Instruments and Experimental Techniques USSR), 1985, No. 3, pp. 185-192.
- [8] Гончаров В.А., Григорьев В.Н., Лукашов В.Н. и др., Мощный рефрижератор растворения ³Не в ⁴Не, Харьков, 1985, 10. с., (Препринт / АН УССР, ФТИНТ; No. 10-85).
- [9] Есельсон Б.Н., Рудавский Э.Я., Чаговец В.К. и др., Простой криостат растворения непрерывного действия для получения температур до 15 мК, Расчет и исследования криогенных систем, Киев: Наук.думка, 1981. pp. 18-22.
- [10] Неганов Б.С., Новый метод получения сверхнизких температур, Вестн, АН СССР, 1968, No. 12, pp. 49-58.
- [11] Alvesalo T., Anufriev Yu., Buch Lund P., et al., A cryogenic system for studying the properties of ³He between 1 and 15 mK, Cryogenics 1974, Vol. 14, No. 7, pp. 384-390.
- [12] Ehenholm G.J., Gylling R.G., A dilution refrigerator with large cooling power, Cryogenics 1971, Vol. 11, No. 1, pp. 39-46.
- [13] Ehenlolm G.J., Soini J.K., A compact dilution refrigerator, Proc. 14th Int. Conf. Low Temp. Phys. (LT14. 1975), Amsterdam-Oxford-New York, 1975, Vol. 4. pp. 21-24.
- [14] Mueller R.M., Buchal C., Oversluizen T., et al., Superconductivity aluminum heat switch and plated press-contacts for use at ultralow temperatures, Rev. Sci. Instr. 1978, Vol. 49, No. 4. pp. 515-518.
- [15] Niinikoski T.O., Construction of sintered copper heat exchangers, Cryogenics, 1971, Vol. 11, No. 3, pp. 232-233.
- [16] Oda Y., Fujii G, Nagano H., Practical design of a heat exchanger for dilution refrigeration, ibid, 1978, Vol. 18, No. 2, pp. 73-78.
- [17] Rosenbaum r.L., Breuer A., Practical model fo the design of step heat exchangers, Rev. Sci. Instr. 1982, Vol. 53, No. 6, pp. 897-904.
- [18] Raudebeau P., Varoquaux E., Copper foil heat exchangers for dilution refrigerators, Cryogenics, 1070, Vol. 10, No. 3, pp. 255-256.
- [19] De Long L.E., Symko O.G., Wheatley J.C., Continuously operating ⁴He evaporation refrigerator, Rev. Sci. Instr., 1971, Vol. 42, No. 1, pp. 147-150.
- [20] Lounasmaa O.V., Experimental Principles and Methods Below 1K, Academic Press, London and New York, 1974.